



**HAL**  
open science

# Digitation élastique en volume dans les solides mous et les matériaux viscoélastiques

Baudouin Saintyves

► **To cite this version:**

Baudouin Saintyves. Digitation élastique en volume dans les solides mous et les matériaux viscoélastiques. Matière Molle [cond-mat.soft]. Université Pierre et Marie Curie, 2013. Français. NNT : . tel-01272002

**HAL Id: tel-01272002**

**<https://theses.hal.science/tel-01272002>**

Submitted on 10 Feb 2016

**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 DE DOCTORAT  
DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité : PHYSIQUE

*école doctorale 389 : La Physique de la Particule à la Matière Condensée*

présentée par

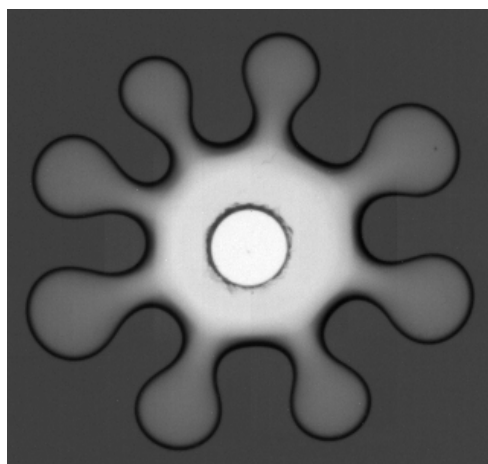
Baudouin SAINTYVES

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE  
CURIE



**Digitation élastique en volume dans les  
solides mous et les matériaux viscoélastiques**



Thèse soutenue le 18 Février 2013 devant le jury composé de :

|                               |                    |
|-------------------------------|--------------------|
| M. Mokthar ADDA-BEDIA         | Examineur          |
| M. Daniel BONN                | Examineur          |
| Mme. Françoise BROCHARD-WYARD | Examineur          |
| Mme. Isabelle CANTAT          | Rapporteur         |
| M. Serge MORA                 | Invité             |
| M. Yoël FORTERRE              | Rapporteur         |
| M. Jon Otto FOSSUM            | Examineur          |
| Mme. Elisabeth BOUCHAUD       | Directeur de thèse |

Université Pierre & Marie Curie - Paris 6  
Accueil, inscription des doctorants et base de données  
Esc G, 2ème étage  
15 rue de l'école de médecine  
75270-PARIS CEDEX 06

Tél. Secrétariat : 01 42 34 68 35  
Fax : 01 42 34 68 40  
Tél. étudiants de A à EL : 01 42 34 69 54  
Tél. étudiants de EM à ME : 01 42 34 68 41  
Tél. étudiants de MF à Z : 01 42 34 68 51  
E-mail : [scolarite.doctorat@upmc.fr](mailto:scolarite.doctorat@upmc.fr)



## Abstract

Systematic experiments have been performed in purely elastic polyacrylamide gels in Hele-Shaw cells. We have shown that a bulk fingering instability arises in the highly deformable confined elastomers. It shares some similarities with the famous Saffman-Taylor instability. In particular, the total adhesion of the elastomer to the glass plates implies a non-gliding condition, crucial for the formation of fingers. However, adhesion does not enter the total energy balance, which is shown by the independence of the instability onset from the shear modulus. A systematic study also shows that surface tension is not relevant either. This instability is sub-critical, with a clear hysteretic behavior. Our experimental observations have been compared very favorably to theoretical and finite element simulations results. In particular, the instability wavelength and the critical front advance have been shown to be proportional to the distance between the two glass plates constituting the cell. We have also shown that in Maxwell viscoelastic fluids, one crosses over continuously from a viscous to an elastic fingering instability. These experiments open interesting perspectives in morphogenesis.

## Résumé

Nous avons mis en évidence l'existence d'une instabilité de digitation en volume, d'origine purement élastique, dans des gels de polyacrylamide confinés en cellule de Hele-Shaw. Cette instabilité partage certaines similarités avec la célèbre instabilité de Saffman-Taylor : l'adhésion totale de l'élastomère a pour conséquence une condition de non glissement cruciale pour la digitation. Bien qu'essentielle, cette adhésion n'intervient pas dans le bilan énergétique, ce qui est prouvé par le fait que le seuil de l'instabilité ne dépend pas du module de cisaillement. Une étude systématique a également montré que la tension de surface n'intervenait pas non plus dans le mécanisme de déstabilisation. Cette instabilité est sous-critique, avec un net comportement hystérétique. Nos observations expérimentales ont pu être comparées aux résultats d'une analyse théorique et de simulations par éléments finis, et ont montré un très bon accord. En particulier, la longueur d'onde et le seuil en avancement du front sont proportionnels à la distance qui sépare les plaques de verre constituant la cellule. Nous avons d'autre part mis en évidence le passage continu d'une instabilité de digitation visqueuse à cette instabilité de digitation élastique dans un fluide viscoélastique de Maxwell, ce qui ouvre peut-être des perspectives intéressantes dans certains processus morphogénétiques.

---

## Remerciements

Ces années de thèse auront été pour moi une expérience passionnante et une période d'accomplissement. Cela n'aurait pas été possible sans l'aide de nombreuses personnes. Je tiens d'abord à remercier Pascal Viot pour m'avoir beaucoup soutenu pour l'obtention de ma bourse. Je remercie Olivier Dauchot pour m'avoir accueilli dans l'ex-groupe instabilité et turbulence du Service de Physique de l'Etat Condensé, d'abord pour un stage passionnant avec lui, puis par la suite en tant que chef de groupe et collaborateur. Ses conseils expérimentaux avisés et les discussions animées que nous avons pu avoir auront été une réelle source d'inspiration. Je remercie également Eric Vincent, alors directeur du Service de Physique de l'Etat Condensé pour son accueil.

Mes remerciements les plus forts reviennent à ma directrice, Elisabeth Bouchaud, pour m'avoir fait confiance pendant ces années et m'avoir soutenu dans tous les moments, y compris les plus durs. Le cadre qu'elle m'a donné est celui dont tout thésard rêverait. Je ne serai jamais assez reconnaissant pour sa disponibilité, sa proximité, son humilité, son humanité et son écoute qui auront rendu très plaisantes toutes les discussions et réflexions que nous aurons pu avoir. Cela me manquera certainement.

Je remercie Isabelle Cantat et Yoël Forterre de m'avoir fait l'honneur d'être rapporteur de ma thèse, et pour leurs remarques constructives. Je remercie Françoise Brochard-Wyart, Mokthar Adda-Bedia, Jon Otto Fossum, et Daniel Bonn d'avoir participé à mon jury de thèse et d'avoir rendu le débat très fructueux.

Je remercie Z. Wei, J.S. Biggins et L. Mahadevan de l'université d'Harvard pour la collaboration passionnante que nous avons eu à la fin de cette thèse. Comparer mes résultats expérimentaux à leur travaux théoriques et numériques et discuter des mécanismes auront été une expérience profondément enrichissante. Je remercie également Serge Mora de l'université de Montpellier avec qui j'ai collaboré sur une autre partie de mon projet. Les discussions que nous avons pu avoir ont cependant grandement éclairé tous les aspects de mes travaux et en particulier la rédaction de ce manuscrit.

Mon travail a été beaucoup aidé par Cécile Gasquet, pour la partie informatique et le contrôle des expériences. Ces dernières n'auraient pas pu être réalisées sans l'ingéniosité et la disponibilité de Vincent Padilla, que je salue également pour la complicité et l'amitié qui a pu naître de notre collabora-

tion souvent très joviale. Son initiation à l'harmonica, au blues et au flamenco auront également touché ma sensibilité de musicien. J'adresse également ces remerciements à Dominique et Jean-Pierre de l'atelier.

Je remercie Sebastien Aumaître, Frederic Restagno, Raphael Candelier pour les discussions passionnantes que nous avons eues et qui m'auront aidé à avancer dans ma thèse. Je remercie Gilbert Zalczer pour m'avoir prêté du matériel et de l'espace pour mes expériences. Je remercie également toute l'équipe de l'ex-GIT pour m'avoir donné un cadre de travail très agréable : François Daviaud, également en tant que chef de groupe à la fin de ma thèse, Arnaud Chiffaudel, avec qui j'ai partagé mon bureau, Marco Bonetti, Bérengère Dubrulle, sans oublier bien sur les thésards, Corentin Coulais, Pablo Guiterrez, Simon Thalabard, Brice Saint-Michel et les ex-thésards, Julien Deseigne, Raphael Candelier, Gilles Colette. Je remercie également Claudine Chaleil pour m'avoir permis de travailler en toute sécurité et m'apporter son aide lorsque j'ai eu besoin de faire de la chimie, domaine peu abordé dans l'ex-GIT. Je remercie les secrétaires du service, Nadine et Corinne, pour leur patience et leur efficacité. Je remercie également Gabriele Fridelance et Elie Raphaël, de l'UMR Gulliver, qui m'auront chaleureusement accueilli à l'ESPCI pendant les derniers mois de ma thèse.

Je remercie également mes proches qui m'auront soutenu pendant toute cette période, Séverine, pour son support "quotidien" et pour l'équilibre qu'elle m'a apporté, mes parents (aussi pour leur relecture), Frederic, mon "grand frère" scientifique et ami, et tous les autres que je n'énumérerai pas faute de place.

# Table des matières

|   |           |
|---|-----------|
| Table des figures   | ix        |
| Liste des tableaux  | xviii     |
| Introduction  | 1         |
| <b>1 Instabilités visqueuses et élastiques</b>              | <b>7</b>  |
| 1.1 La digitation visqueuse . . . . .                       | 7         |
| 1.1.1 Écoulement dans une cellule de Hele-Shaw              |           |
| 1.1.2 Mécanisme de la déstabilisation                       |           |
| 1.1.3 Analyse de stabilité linéaire                         |           |
| 1.1.4 Forme du doigt stationnaire                           |           |
| 1.1.5 La géométrie radiale                                  |           |
| 1.1.6 La digitation avec des fluides miscibles              |           |
| 1.2 Instabilité de flambage dans les élastomères . . . . .  | 21        |
| 1.2.1 Flambage d'Euler                                      |           |
| 1.2.2 Flambage d'une feuille d'élastomère                   |           |
| 1.2.3 Flambage et morphogénèse                              |           |
| 1.3 L'instabilité du "ballon" . . . . .                     | 27        |
| 1.4 Décollement dans les élastomères . . . . .              | 29        |
| 1.4.1 La digitation interfaciale                            |           |
| 1.4.2 De la cavitation vers la digitation sous confinement  |           |
| 1.4.3 La digitation en volume                               |           |
| 1.4.4 Élasticité et tension de surface                      |           |
| <b>2 Rhéologie et digitation dans les fluides complexes</b> | <b>43</b> |
| 2.1 Comportement mécanique des liquides visqueux . . . . .  | 43        |
| 2.1.1 Réponse linéaire : les fluides Newtoniens             |           |
| 2.1.2 Réponse non linéaire                                  |           |



---

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| 2.2      | Comportement mécanique des solides élastiques . . . . .   | 45        |
| 2.2.1    | Réponses aux petites déformations   |           |
| 2.2.2    | Réponse aux grandes déformations  |           |
| 2.3      | Viscoélasticité . . . . .   | 53        |
| 2.3.1    | Fluide de Maxwell   |           |
| 2.3.2    | Description pour une distribution de temps de relaxation :<br>module de perte et module de stockage |           |
| 2.3.3    | Fluide à seuil  |           |
| 2.4      | Expériences en cellule de Hele-Shaw dans les matériaux complexes                                    | 60        |
| 2.4.1    | Digitation dans les matériaux complexes   |           |
| 2.4.2    | De la digitation vers la rupture en volume  |           |
| 2.4.3    | De la digitation vers la rupture interfaciale   |           |
| <b>3</b> | <b>Des matériaux modèles</b>  | <b>69</b> |
| 3.1      | Le gel de polyacrylamide : un matériau purement élastique . . . . .                                 | 69        |
| 3.1.1    | Physico-chimie du polyacrylamide  |           |
| 3.1.2    | Protocole de fabrication  |           |
| 3.1.3    | Propriétés mécaniques   |           |
| 3.2      | Des fluides viscoélastiques modèles . . . . .   | 75        |
| 3.2.1    | Les solutions de micelles   |           |
| 3.2.2    | Microémulsions connectées par des polymères téléchéliques   |           |
| <b>4</b> | <b>Dispositifs Expérimentaux</b>  | <b>81</b> |
| 4.1      | La géométrie circulaire classique . . . . .   | 81        |
| 4.1.1    | Dispositif  |           |
| 4.1.2    | Protocole   |           |
| 4.2      | Le dispositif avec pistons . . . . .  | 85        |
| 4.2.1    | Une même géométrie pour solliciter liquides et solides  |           |
| 4.2.2    | Dispositif  |           |
| 4.2.3    | Protocole   |           |
| 4.3      | L'expérience en front plan . . . . .  | 92        |
| 4.3.1    | Dispositif  |           |
| 4.3.2    | Protocole   |           |
| <b>5</b> | <b>La digitation élastique, premières observations</b>  | <b>97</b> |
| 5.1      | Une instabilité dans le volume . . . . .  | 97        |
| 5.2      | Une instabilité purement élastique . . . . .  | 100       |
| 5.3      | Largeur des doigts et mode de l'instabilité . . . . .   | 105       |

---

|          |   |            |
|----------|---|------------|
| 5.4      | Profils dans l'épaisseur . . . . .  | 108        |
| <b>6</b> | <b>L'expérience en front plan</b>   | <b>113</b> |
| 6.1      | Origine physique de la digitation élastique - approche théorique .                                | 113        |
| 6.1.1    | Le modèle simplifié   |            |
| 6.1.2    | Le modèle quasi-2D  |            |
| 6.2      | L'expérience en front plan : comparaison avec la théorie et les simulations . . . . .             | 120        |
| 6.2.1    | Longueur d'onde de l'instabilité  |            |
| 6.2.2    | Seuil de l'instabilité  |            |
| 6.2.3    | Hystérésis  |            |
| 6.3      | Au-delà de la théorie . . . . .   | 126        |
| 6.3.1    | Régime non-linéaire : amplitude   |            |
| 6.3.2    | Effets de taille finie et de forme initiale   |            |
| 6.3.3    | Contrôle de la digitation   |            |
| 6.3.4    | Régime de rupture   |            |
| 6.4      | Discussion . . . . .  | 135        |
| 6.4.1    | Ondes de Rayleigh et chargement quasi-statique  |            |
| 6.4.2    | Un mécanisme générique  |            |
| <b>7</b> | <b>De la digitation visqueuse vers la digitation élastique dans les matériaux viscoélastiques</b> | <b>139</b> |
| 7.1      | Expérience dans les liquides newtoniens . . . . .   | 139        |
| 7.1.1    | Phénoménologie  |            |
| 7.1.2    | Paramètre de contrôle   |            |
| 7.1.3    | Forme du doigt stationnaire   |            |
| 7.2      | Approximation circulaire . . . . .  | 145        |
| 7.3      | Expériences dans les viscoélastiques . . . . .  | 147        |
| 7.3.1    | Observations  |            |
| 7.3.2    | Seuil de l'instabilité  |            |
| 7.3.3    | Interprétation  |            |
| 7.3.4    | Discussion  |            |
|          | <b>Conclusion et perspectives</b>   | <b>159</b> |
| <b>A</b> | <b>De la digitation vers la rupture dans la laponite</b>  | <b>163</b> |
| A.1      | La laponite . . . . .   | 164        |
| A.2      | Protocole . . . . .   | 166        |

|                                       |            |
|---------------------------------------|------------|
| A.3 Résultats expérimentaux . . . . . | 166        |
| A.4 Perspectives . . . . .            | 169        |
| <b>B Articles</b>                     | <b>171</b> |
| <b>Bibliographie</b>                  | <b>183</b> |

# Table des figures

|     |  |    |
|-----|--|----|
| 1.1 | Gravure de structure dendritique observée dans des roches. Ces dendrites ont été étudiées en détail par le naturaliste suisse, Jean-Jacques Scheuchzer, vers la fin du XVII <sup>e</sup> siècle. L'image de droite est une reproduction qu'il dessina de ses observations expérimentales de la digitation visqueuse en séparant des plaques de verres. D'après [1] . . . . . | 8  |
| 1.2 | Schéma de l'une des cellules de Hele-Shaw utilisées par Saffman et Taylor en 1958. D'après [2]. . . . .  | 10 |
| 1.3 | Schéma d'une perturbation de taille $l$ dans un champ de pression Laplacien. Les courbes représentent des lignes isopressions. On a représenté le cas où le fluide 1 est de viscosité bien inférieure au fluide 2, c'est-à-dire qu'on peut négliger le gradient de pression dans (1) (cas de l'air par exemple) par rapport à (2). . . . .                                   | 11 |
| 1.4 | Relation de dispersion de l'instabilité de Saffman-Taylor, lorsqu'on pousse de l'air sur un fluide. . . . .  | 14 |
| 1.5 | Photos montrant les premières déstabilisations (a) et la compétition entre différentes tailles de doigts (b)(c), suivies ensuite par la formation d'un doigt stationnaire (d). D'après [3] . . . . .   | 15 |
| 1.6 | Courbe représentant la largeur relative $\lambda = w/W$ du doigt stationnaire en fonction du nombre capillaire $Ca$ . D'après [2] . . . . .  | 16 |
| 1.7 | Observation de la digitation visqueuse en géométrie circulaire lorsqu'on injecte de l'air dans de la glycérine. D'après [4] . . . . .  | 18 |
| 1.8 | Observation de la digitation visqueuse sans tension de surface en géométrie circulaire. On injecte de l'eau dans de la glycérine. Dans cette exemple, $Q = 4.1\text{cm}^2$ , $b = 0.30\text{cm}$ . Photographies prises aux instants $t - t_0 = 12, 17, 21, 26$ et $31\text{s}$ respectivement. La distance indiquée est $4.0b$ . D'après [5] . . . . .                      | 21 |

---

|      |   |    |
|------|---|----|
| 1.9  | Schéma représentant l'instabilité de flambage pour différentes conditions aux limites. . . . .  | 22 |
| 1.10 | Photo d'une expérience où on exerce une tension sur une feuille d'élastomère incompressible (polyéthylène). On voit apparaître, pour un déplacement suffisant, des rides à la surface de la feuille. Longueur $L \simeq 25\text{cm}$ , largeur $W \simeq 10\text{cm}$ , épaisseur $t \simeq 0.01\text{cm}$ , sous tension uniaxial de déplacement $\gamma \simeq 0.10$ . D'après [6] . . . . .  | 23 |
| 1.11 | Loi d'échelle vérifiée par la longueur d'onde de l'instabilité de rides observée lors de la mise en tension d'une fine feuille d'élastomère. D'après [7] . . . . .  | 24 |
| 1.12 | a : Goutte déposée sur un film fin de polymère flottant à la surface d'un liquide. D'après [8]. -b : feuille d'élastomère recouvrant une surface hémisphérique. D'après [9]. -d : Indenteur ponctuelle appuyant sur une demi-sphère sous pression. D'après [10]. . . . .  | 25 |
| 1.13 | Expérience réalisée en laboratoire avec des élastomères (a) pour reproduire l'instabilité de boucles observée dans les intestins (b), intestins de poulet. D'après [11]. . . . .  | 26 |
| 1.14 | A-H : Séquence typique de l'évolution de l'instabilité observée dans les tumeurs artificielles pour deux expériences de dimensions comparables. Dans la première expérience (A-D), le module élastique du disque intérieur est inférieur à celui de l'anneau périphérique. La deuxième expérience (E-H) correspond au cas inverse. D'après [12].- I : Instabilité de buckling produite par le gonflement d'un gel de polyacrylamide au contact d'un gel non gonflant. D'après [13]. | 27 |
| 1.15 | Dessin représentant une "hernie" formée lorsque la pression injectée dans un tube en caoutchouc est au-delà du seuil de l'instabilité du ballon, dans l'expérience original de Mallock. D'après [14] . . . . .  | 28 |
| 1.16 | Courbe de Pression normalisée en fonction de l'élongation de la membrane dans la géométrie cylindrique pour différents $J_m$ . . . . .  | 29 |
| 1.17 | Schéma (a) et observation (b) de l'expérience de digitation interfaciale réalisée par Ghatak et <i>al.</i> D'après [15] . . . . .   | 31 |
| 1.18 | Relation linéaire mesurée pour la longueur d'onde de l'instabilité de digitation interfaciale quand l'épaisseur $h$ du film varie. D'après [15] . . . . .   | 32 |
| 1.19 | Schéma représentant la modélisation du problème de la digitation interfaciale, adoptée par Vilmin et <i>al.</i> D'après [16] . . . . .  | 33 |

---

|      |  |    |
|------|--|----|
| 1.20 | Schéma représentant une expérience typique de décollement. La section est circulaire. D'après [17] . . . . .   | 34 |
| 1.21 | Augmentation du rayon de la cavité en fonction du temps pour une grande cavité (1) et pour une petite cavité (2), la pression de Laplace à une plus grande influence. D'après [17] . . . . .   | 36 |
| 1.22 | Observation de la cavitation pour de très grands confinements, à différentes étapes de la sollicitation. La courbe centrale donne l'évolution de la contrainte normalisée en fonction du déplacement imposé. Les images correspondent à différentes étapes de cette courbe. ( $E = 0.2$ MPa, $a_0 = 3000\mu\text{m}$ et $h_0 = 125 \mu\text{m}$ ). D'après [17]  | 37 |
| 1.23 | Schéma représentant les différents comportements en contrainte, observés en fonction de la coalescence ou non des cavités, lorsqu'on contrôle le déplacement. D'après [17] . . . . .   | 38 |
| 1.24 | Observation de la digitation interfaciale pour un faible confinement avec un indenteur hémisphérique ( $E = 10^5$ Pa, $a_0 = 215\mu\text{m}$ et $h_0 = 73 \mu\text{m}$ ). D'après [17]. . . . .  | 39 |
| 1.25 | Observation de la digitation en volume dans une expérience de décollement avec un indenteur hémisphérique. $a_0/h_0 = 5$ . D'après [18]. . . . .   | 40 |
| 1.26 | (a) : Observation de l'instabilité de Plateau-Rayleigh dans un fluide visqueux. D'après [19]. (b) : Observation de l'instabilité de Plateau-Rayleigh dans un matériau élastique. D'après [20] . . . . .  | 41 |
| 2.1  | Viscosité non-newtonienne $\eta$ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ pour une solution de Xanthane (polymère rigide) à 500ppm. À bas cisaillement, la viscosité est constante avec une valeur $\eta_0$ . Pour des cisaillements plus élevés, $\eta$ décroît avec $\dot{\gamma}$ en suivant une loi de puissance de type Ostwald de Waele (trait solide). Pour des valeurs plus élevées, la viscosité est à nouveau stabilisée à $\eta_\infty$ . D'après [21]. | 45 |
| 2.2  | (a) : Représentation schématique du modèle de Maxwell. Un ressort de raideur $G$ est branché en série avec un amortisseur de viscosité $\eta$ . (b) : distribution de temps caractéristiques modélisée par la mise en parallèle de $n$ éléments de Maxwell . . . . .   | 55 |
| 2.3  | Évolution des modules de stockage et de perte $G'$ et $G''$ en fonction de la fréquence angulaire pour un liquide de Maxwell à un seul temps de relaxation. . . . .  | 59 |

---

|     |  |    |
|-----|--|----|
| 2.4 | (a) : Évolution de la largeur relative du doigt stationnaire, en fonction du nombre capillaire $1/B$ pour une solution rhéofluidifiante de xanthane. D'après [22]. (b) : Évolution de la largeur du doigt stationnaire, en fonction de la vitesse du front pour un gel à cheveux, se comportant comme un fluide à seuil. D'après [23]. . . . .   | 62 |
| 2.5 | (a, b, c) Motifs obtenus en injectant de l'eau dans un mélange eau/argile. La concentration en argile est augmentée de gauche à droite. (bas) dimension fractale mesurée pour le premier motif (gauche) et pour le dernier (droite). D'après [24]. . . . .   | 64 |
| 2.6 | Réponse d'une mousse 2D à une injection d'air, en augmentant la pression (a) : Réponse quasi-statique, avec une bulle centrale de forme elliptique. (b) : Régime intermédiaire, où des doigts croissent avec une longueur caractéristique. (d)(e) : régime de fracture fragile à haute vitesse. On peut former soit une fissure unique (d), soit un réseau de fissures branchées (d). Le trait blanc mesure 1cm. D'après [25]. . . . .   | 66 |
| 2.7 | (a) : Observation expérimentale de la digitation viscoélastique. (b) : Régime de rupture à grand gradient de pression. (c) : Courbe théorique représentant $\tilde{\omega}$ en fonction de $\tilde{k}$ . (d) Courbe théorique représentant $\tilde{\tau}$ en fonction de $\tilde{\omega}_{max}$ . D'après [26]. . . . .  | 67 |
| 3.1 | Réaction chimique de réticulation, à partir du monomère d'acrylamide. . . . .  | 70 |
| 3.2 | Mesure du module de stockage $G'$ et du module de perte $G''$ en fonction de la fréquence angulaire, pour un gel de polyacrylamide de module de cisaillement $G=550\text{Pa}$ . . . . .  | 72 |
| 3.3 | <i>Courbe rouge</i> : Mesure du module de stockage $G'$ en fonction du temps pour un gel de module de cisaillement $G = 550\text{Pa}$ . La mesure débute dès le début de la réaction. <i>Courbe bleue</i> : Comparaison avec le module élastique d'un gel de même composition, mais en débutant la mesure bien après le début de la réaction, quand le gel est déjà bien réticulé. Cette courbe montre que l'oscillation du rhéomètre n'influence pas la gélification. . . . . | 73 |
| 3.4 | Comparaison des courbes de module de stockage en fonction du temps pour 4 différents gels. On a pu réaliser, avec différents dosages, différents modules avec les mêmes temps de réticulation. . .   | 74 |

---

|     |  |    |
|-----|--|----|
| 3.5 | Courbes contrainte/déformation pour des gels de différents modules élastiques. On observe un comportement de durcissement à grande déformation, pour les gels de plus bas module . . . . .   | 75 |
| 3.6 | Diagramme des phases d'une solution de Cetylpyridinium Chloride (CpCl) en présence de saumure (NaSal). D'après [27]. . . . .   | 76 |
| 3.7 | Schéma représentant la structure microscopique des microémulsions connectées. . . . .  | 78 |
| 3.8 | Modules de stockage et de perte en fonction de la fréquence angulaire pour une microémulsion connectée. On observe un comportement parfaitement Maxwellien. D'après [28]. . . . .  | 79 |
| 3.9 | Contrainte de cisaillement et première différence des contraintes normales en fonction du taux de cisaillement pour le matériau étudié en figure 3.8. Le comportement non linéaire suit un modèle de maxwell convecté. Le paramètre ajustable est donné par les mesures de la figure 3.8. . . . .  | 80 |
| 4.1 | Dispositif expérimental de la géométrie circulaire . . . . .   | 82 |
| 4.2 | "Galette" de gel bien circulaire lorsque la cellule est remplie . . .  | 83 |
| 4.3 | Rupture initiée dans une cellule de Hele-Shaw linéaire. Les bords latéraux empêchent la fissure de se propager le long de l'axe central. Le matériau utilisé est un gel d'agar. . . . .  | 85 |
| 4.4 | Observations expérimentales réalisées avec le premier prototype à bord mouvant, dans un gel d'agar plus ou moins gélifié. <u>Gauche</u> : avant la transition sol/gel (phase sol). <u>Centre</u> : autour de la transition. <u>Droite</u> : après la transition (phase gel). Les bords mobiles s'écartent dans la direction des flèches. . . . .   | 87 |
| 4.5 | (a) : Schéma du dispositif avec pistons (b) : Photo du dispositif avec pistons . . . . .   | 89 |
| 4.6 | Principe de l'expérience pour le dispositif avec pistons. (a) : Lorsque le matériau est liquide, on observe un doigt dans le sens du mouvement des pistons. (b) : Lorsque le matériau est solide et peu déformable, on observe une fissure dans la direction perpendiculaire à la trajectoire des pistons. (c) : Lorsque le matériau est solide et très déformable, on observe une instabilité de digitation sans directionnalité. . . . . | 90 |
| 4.7 | Principe de serrage de la cellule . . . . .  | 91 |
| 4.8 | Schéma du dispositif de l'expérience en front plan . . . . .   | 92 |



---

|      |   |     |
|------|---|-----|
| 4.9  | Schéma du dispositif de l'expérience en front plan . . . . .  | 94  |
| 4.10 | Moule utilisé, ici pour un gap de 0.6mm. . . . .  | 95  |
| 5.1  | Photo prise par dessus de l'instabilité de digitation pendant une expérience dans le dispositif avec pistons. . . . .   | 98  |
| 5.2  | Schéma illustrant les différentes possibilités pour le profil. (a) : Fissure interfaciale. (b) : Glissement dans toute l'épaisseur. (c) : Déformation dans toute l'épaisseur avec condition de non glissement et adhésion aux parois . . . . .  | 99  |
| 5.3  | Schéma illustrant les différentes possibilités pour le profil. (a) : Fissure interfaciale. (b) : Glissement dans toute l'épaisseur. . . . .   | 99  |
| 5.4  | Courbe d'hystérésis . . . . .   | 101 |
| 5.5  | Perimètre de la forme observée en fonction du temps . . . . .   | 102 |
| 5.6  | Déformation critique $\gamma_c$ en fonction du paramètre de contrôle $b/D_0$ , pour les deux dispositifs utilisés. . . . .  | 103 |
| 5.7  | Déformation critique $\gamma_c$ et déformation à rupture $\gamma_r$ en fonction du module élastique. Pour chaque gel utilisé, avant réticulation, une petite partie de la solution de polyacrylamide est placée dans un rhéomètre pour une mesure simultanée du module élastique et de la courbe contrainte/déplacement. $D_0 = 15mm$ . . . . . | 104 |
| 5.8  | Doigts formés dans les mêmes conditions (même paramètre géométrique) en injectant de l'huile de silicone Rhodorsil V20 (a) ou de l'air (b). . . . .   | 105 |
| 5.9  | Largeur $\delta$ des doigts en fonction du gap $b$ . . . . .  | 106 |
| 5.10 | Largeur $\delta$ des doigts en fonction du rapport $D_0/b$ . . . . .  | 107 |
| 5.11 | Diagramme spatio-temporel représentant $\gamma_{loc}(\theta, t)$ . Le code couleur représente la distance de l'interface par rapport au centre de la bulle initiale. $b = 2.9mm$ . . . . .  | 108 |
| 5.12 | Nombre de doigts $n$ en fonction du gap $b$ . . . . .   | 108 |
| 5.13 | Passage de l'instabilité de digitation élastique (a) à une instabilité du ballon "locale" initié par la digitation (b). $b = 2mm$ . . . . .   | 109 |
| 5.14 | Comparaison entre la forme d'un doigt nucléé par injection d'huile de silicone V20 (a) et la forme d'un doigt nucléé par injection d'air (b). (c) : Les profils d'absorbance des deux doigts mesurés le long de leurs axes se superposent bien, si l'on ne tient pas compte des effets de différence d'indice optique. . . . .                  | 109 |
| 5.15 | Principe de calibration pour obtenir le profil. . . . .   | 110 |
| 5.16 | Profil de la digitation dans le plan $(x, y)$ . . . . .   | 111 |

---

|      |  |     |
|------|--|-----|
| 5.17 | Profil de la digitation dans l'épaisseur en faisant l'hypothèse qu'il est symétrique. . . . .  | 111 |
| 5.18 | Ajustement non linéaire du profil $r(z)$ dans l'épaisseur avant la formation du doigt. . . . .   | 111 |
| 6.1  | <i>Haut</i> - Principe des bandes élastiques indépendantes, pour le modèle simplifié, où le matériau est supposé bidimensionnel dans le plan $(x, y)$ . <i>Bas</i> - Schéma de l'expérience, avec la définition des axes et des longueurs. . . . .   | 114 |
| 6.2  | Energie de cisaillement élastique $E_s$ , en fonction du coefficient de déformation $\lambda_x$ . . . . .  | 116 |
| 6.3  | Schéma illustrant les hypothèses faites dans le modèle quasi-2D. . . . .   | 118 |
| 6.4  | Photo par le dessus, d'un front ayant formé des doigts, pour un gap $b = 3.04\text{mm}$ . . . . .  | 120 |
| 6.5  | Différentes étapes de l'instabilité pour un gap initial $b = 3.05\text{mm}$ .<br>(a) : Le front avance sans se déstabiliser. (b) : Le front s'est déplacé d'une valeur critique, et l'on voit apparaître des oscillations de longueur d'onde bien définie. (c) : Des doigts sont soudainement nucléés sur les maxima d'amplitude des oscillations. . . . . | 121 |
| 6.6  | Front se déstabilisant dans une expérience avec un gap initial de $2.25\text{mm}$ . On observe sur cette image que toutes les zones du front ne sont pas au même stade de déstabilisation. . . . .   | 122 |
| 6.7  | Évolution de la longueur d'onde $\lambda$ de l'instabilité en fonction du gap $b$ . . . . .  | 123 |
| 6.8  | Évolution du déplacement critique du front $W_c$ en fonction du gap $b$ . 124  |     |
| 6.9  | Écart-type des déplacements du front sur toute sa longueur, en fonction du déplacement moyen du front $W$ . . . . .  | 125 |
| 6.10 | Produit du seuil de déstabilisation en déplacement vertical $\Delta z_c$ , avec la largeur $l$ , en fonction du gap $b$ (échelle logarithmique en insertion). . . . .  | 125 |
| 6.11 | Courbe d'hystérésis expérimentale, réalisée avec un gap initial $b = 3.04\text{mm}$ et une largeur d'échantillon $l = 41\text{mm}$ . . . . .   | 126 |
| 6.12 | Courbe d'hystérésis numérique, réalisée avec un gap initial $b = 1\text{mm}$ et une largeur d'échantillon $l = 40\text{mm}$ . . . . .  | 127 |
| 6.13 | Courbe représentant le front, ainsi que les maxima et minima locaux, détectés par le programme de traitement d'image. . . . .  | 128 |

---

|      |   |     |
|------|---|-----|
| 6.14 | Courbe représentant l'amplitude moyenne des doigts, le long du front, en fonction du déplacement moyen de tout le front, pour un gap $b = 2.25mm$ . . . . .   | 128 |
| 6.15 | Amplitudes mesurées en fonction du gap $b$ , dans les expériences et les simulations. . . . .   | 129 |
| 6.16 | Amplitudes mesurées en fonction du gap $b$ , dans les expériences et les simulations. . . . .   | 130 |
| 6.17 | Expérience réalisée en réduisant de moitié la longueur de l'échantillon. $b = 1.92mm$ , $l = 57mm$ , grande longueur = $10.8mm$ . . . . .   | 130 |
| 6.18 | Images du petit côté de l'échantillon en figure 6.17, prises à des instants successifs. . . . .   | 131 |
| 6.19 | Superposition d'un front de longueur "infinie" ,avec le front de longueur finie, présenté en figure 6.17. On visualise bien l'influence des bords. . . . .  | 131 |
| 6.20 | Photos montrant l'influence de la forme initiale du front sur la nucléation de doigts. (a) : Une forme initiale concave tue l'instabilité. (b) : Une forme initiale convexe la favorise. (c) : Pour une courbure suffisamment élevée, on voit nettement que la forme des doigts est modifiée. . . . .                   | 132 |
| 6.21 | Photos prises à des instants successifs, pendant une expérience, ou on perturbe le front à la main, dans sa zone hystérétique. On voit alors qu'on peut nucléer des doigts où on veut. . . . .  | 134 |
| 6.22 | Initiation d'une fracture à l'arrière de la tête d'un doigt. . . . .  | 134 |
| 6.23 | Digitation interfaciale en géométrie linéaire. Motifs observés pour $V \sim 1cm.s^{-1}$ (a) et pour $V \sim 100cm.s^{-1}$ . . . . .   | 135 |
| 6.24 | Aspiration d'une huile de silicone V1000 dans un gel de polyacrylamide avec le dispositif à piston. . . . .   | 137 |
| 7.1  | Photos prises pendant des expériences à différentes vitesses et pour différentes viscosités (huiles Rhodorsil V20 et V200). Les photos du haut correspondent au début de l'expérience, pendant le régime de croissance circulaire. Celles du bas correspondent au régime de doigt stationnaire. $L_0/W = 1.3$ . . . . . | 140 |
| 7.2  | Haut : Définition de la longueur $D_{\parallel}$ et de la largeur $D_{\perp}$ de la bulle à différents stades de sa croissance. Bas : Longueur et largeur en fonction du temps et définition de $t_{max}$ . Huile V100, $L_0/W = 2$ et $V_p = 1.5mm/s$ . . . . .  | 141 |

---

|      |  |     |
|------|--|-----|
| 7.3  | Photos d'une expérience dans une huile V100000 avec $V_p = 10\text{mm/s}$ .<br>On observe une déstabilisation dans le régime transitoire qui conduit<br>à une forme plus complexe qu'un doigt stationnaire. . . . .                                      | 142 |
| 7.4  | Différentes formes obtenues selon la vitesse et le déplacement $L-L_0$<br>des pistons, dans une huile V100 pour $L_0/W = 0.5$ . . . . .  | 142 |
| 7.5  | Largeur relative $\lambda$ en fonction du paramètre $1/B$ pour des rapports<br>d'aspect $L_0/W = 2.0$ et $1.3$ . . . . .   | 143 |
| 7.6  | Doigt se déstabilisant dans son régime stationnaire à grande vitesse<br>(à grand $1/B$ ). Huile V100, $L_0/W = 2.0$ , $V_p = 50\text{mm/s}$ . . . . .  | 144 |
| 7.7  | Largeur relative $\lambda$ en fonction du paramètre de contrôle $1/B$ pour<br>des huiles de viscosités différentes, V20, V100 et V200. . . . .   | 144 |
| 7.8  | Profil expérimental on a superposé la forme du doigt prédite par<br>Saffman-Taylor pour $\lambda = 0.53$ . Huile Rhodorsil V100, $V_p = 4\text{mm/s}$ ,<br>$L_0/W = 2.0$ . . . . .   | 145 |
| 7.9  | Temps $t_{max}$ au bout duquel la bulle sort de son régime circulaire,<br>en fonction de la vitesse des pistons, pour différents rapports d'as-<br>pects, et temps critique théorique de déstabilisation $t_c$ pour une<br>huile Rhodorsil V100. . . . . | 146 |
| 7.10 | Rapport de l'amplitude de la perturbation à $t_{max}$ à l'amplitude<br>initiale de la perturbation initiée à $t_c$ , lorsque $t_{max} > t_c$ sur la<br>figure 7.9. Mode $n = 2$ . . . . .  | 148 |
| 7.11 | Phénoménologie observé lorsqu'on augmente la vitesse des pistons,<br>pour un diamètre initial $D_0 = 11\text{mm}$ (fluide 2). . . . .  | 149 |
| 7.12 | Périmètre $P$ et Indice $s$ en fonction du temps. . . . .  | 150 |
| 7.13 | Déformation critique $\gamma_c$ en fonction de la vitesse des pistons $V_p$<br>pour les fluides 1,2,3. . . . .   | 151 |
| 7.14 | Déformation critique $\gamma_c$ en fonction du module élastique pour les<br>micelles connectées (vert) et pour le polyacrylamide (rouge). Les<br>points en bleu représentent la déformation à rupture $\gamma_r$ pour le<br>polyacrylamide. . . . .      | 152 |
| 7.15 | Déformation critique $\gamma_c$ en fonction de $V_p$ mesurée pour deux fluides<br>de diamètres $D_0 = 13\text{mm}$ (bleu) et $D_0 = 11\text{mm}$ (rouge) sur le<br>fluide 3. . . . .   | 153 |
| 7.16 | Courbes représentant $\gamma_c^{visq}$ en fonction de $V_p$ pour plusieurs modes,<br>comparées aux points expérimentaux des seuils mesurés sur le fluide<br>2. . . . .   | 155 |

|      |   |     |
|------|---|-----|
| 7.17 | (a) Courbe représentant $\gamma_c^{visq}$ en fonction de $V_p$ pour le mode 9 dans le fluide 2 (rouge), courbe représentant $\gamma_c^{visq}$ en fonction de $V_p$ pour une viscosité 10 fois inférieure (orange) et seuils expérimentaux pour le fluide 2 (bleu). (b) : Illustration de l'idée proposée sur une influence stabilisante ou déstabilisante de l'instabilité élastique. . . | 156 |
| 7.18 | Expérience mettant en évidence la transition doigt visqueux/doigt élastique dans une géométrie circulaire classique avec le fluide 4. .   | 158 |
| A.1  | (a) Formule chimique empirique de la laponite. (b) Schéma de la structure physico-chimique de la laponite. (c) Schéma représentant une particule de laponite. D'après [29] . . . . .  | 164 |
| A.2  | Nouveau diagramme d'état de la laponite, proposé par Ruzicka et al [29], synthétisant des données expérimentales de la littérature. SIM fait référence à des simulations numériques. D'après [29] . . .   | 165 |
| A.3  | Diagramme d'état en réponse mécanique, mesurée expérimentalement pour une concentration massique en laponite fixée à 3.0wt%. L'axe des ordonnées représente la concentration en sel $C_s$ et l'axe des abscisses représente la concentration en laponite $C_w$ . Chaque point représente une expérience distincte. . . . .  | 167 |
| A.4  | Champ de déplacement mesuré dans le régime transitoire, en mettant des particules de silice dans l'échantillon. . . . .   | 169 |

## Liste des tableaux

|     |  |     |
|-----|--|-----|
| 7.1 | Propriétés des fluides utilisés. . . . . | 150 |
|-----|--|-----|

# Introduction

Le phénomène de digitation est couramment associé à la digitation visqueuse, qui a été abondamment étudiée depuis les travaux pionniers de Saffman et Taylor. Cette instabilité se manifeste par la déstabilisation d'un front qui sépare deux fluides en milieu confiné, lorsqu'un fluide moins visqueux en pousse un autre, plus visqueux. Malgré une formulation déjà proposée par des mathématiciens russes [30], ils furent les premiers à dégager un mécanisme physique basé sur des observations expérimentales systématiques. L'intense effort de recherche relatif à cette instabilité, et la compréhension fine qui en a résulté, ont été impulsés par l'industrie pétrolière à partir du début des années 50. Les compagnies cherchaient alors à éviter la forte diminution des rendements d'extraction causée par la digitation. C'est d'ailleurs après une visite chez l'une d'entre elles, en 1956, que l'hydrodynamicien G.I. Taylor décida de commencer à s'y intéresser. Pour cette raison, l'étude de cette instabilité touche aussi bien les domaines de la géophysique que de la mécanique des fluides.

Cependant, les premières expériences de digitation visqueuse remontent à bien plus longtemps, à la fin du xvii<sup>e</sup> siècle. Le naturaliste suisse Jean-Jacques Scheutzer s'intéresse alors aux formes dendritiques observées en milieu naturel, dans les roches. Il constate qu'il peut reproduire une forme très branchée et très ressemblante, en plaçant un liquide entre deux plaques de verre horizontales et en tirant l'une d'entre elles à la verticale [1]. Il reproduit cette expérience devant l'Académie des Sciences à Paris en 1699. D'une certaine manière, même si les explications alors avancées s'avèrent peu raisonnable de point de vu de la physique, ce travail est précurseur dans la démarche, des recherches abondantes qui suivront plus tard sur l'étude des formes de croissance dans le monde vivant et inerte : la morphogénèse. D'Arcy W. Thompson et Stephane Leduc furent d'ailleurs, au tout début du xx<sup>e</sup> siècle, sûrement les premiers à rechercher des fondements physiques aux formes de la nature,

basés sur des mécanismes simples, par opposition aux principes téléologiques que sont l'optimisation d'une fonction quelconque du vivant (par exemple la forme branchée d'un arbre, qui optimise la surface de réception de la lumière) ou la croyance aux nombres universels et à "l'Harmonie", qui fut particulièrement vivace par le passé, notamment dans les civilisations grecque et chinoise. Cette approche, beaucoup développée depuis le début des années 80, vient d'une certaine manière compléter une explication génétique à l'origine des formes vivantes.

L'instabilité de digitation est donc d'un attrait particulier en géophysique, mais ses implications sont bien plus larges, même si les compagnies pétrolières ont beaucoup contribué à financer ce domaine de recherche. Bien entendu les observations de la digitation faites par Jean-Jacques Scheutzer, restent assez éloignées des croissances dendritiques, mais son intuition s'est avérée bonne dans le sens où ces deux phénomènes sont très liés, et dans le sens où la digitation est maintenant considérée comme un archétype des modèles de croissance par diffusion. En spécifiant le concept de diffusion, on exclut les phénomènes où il y a apport de matière, tel que la morphogénèse par accrétion, par exemple lors de la formation des coquillages ou des stalactites, qui sont des phénomènes d'un autre ordre de complexité.

Par archétype de modèle de croissance par diffusion, on entend un système simple permettant de faire apparaître une forme grâce à l'action simultanée de la diffusion, déstabilisante, et d'un mécanisme stabilisant. Ces deux phénomènes, en compétition, font émerger une échelle de longueur. Malgré le fait que la notion de morphogénèse est omniprésente dans la nature, l'instabilité de digitation visqueuse n'est pas pour autant visible de manière si courante. Par sa simplicité, elle a cependant permis de développer des outils formels et une intuition pour comprendre une plus grande classe d'objets. On peut par exemple reproduire des croissances dendritiques, dont la forme caractéristique est associée à l'anisotropie cristalline, en introduisant un défaut (en fait une rayure) dans la cellule de Hele-Shaw (deux plaques de verre très rapprochées entre lesquelles on peut injecter un fluide) utilisée par Saffman et Taylor [31, 32]. Dans certains processus chémotaxiques, c'est-à-dire où la diffusion concerne des signaux chimiques, on peut observer de grandes similarités. C'est le cas par exemple de la croissance de colonies de bactéries, lorsque les nutriments sont en faible quantité. Des chercheurs ont également proposé que ce type de mécanisme puisse être en partie responsable de la croissance des veinures des feuilles [33].

Quelle peut être maintenant l'influence des propriétés mécaniques du milieu de croissance ? Les tissus biologiques sont toujours des milieux partiellement élastiques, qui assurent la cohésion des organismes. Mais en réalité, le comportement des amas cellulaires (et donc des tissus, par extension) est d'une complexité surprenante, et dépend fortement des sollicitations imposées. Cependant, de récents travaux montrent que ces tissus peuvent être modélisés avec succès de différentes façons (liquides viscoélastiques, pâtes, mousses, émulsions, etc...) inspirées de la matière molle [34]. Par ailleurs, d'autres travaux récents montrent une influence claire de l'élasticité [11, 12, 35, 36] dans des processus de croissance biologique. L'élasticité a un rôle important dans les mécanismes permettant de comprendre, non seulement les formes, mais parfois même certains processus naturels [37, 38]. Un consensus est apparu sur la pertinence d'utiliser des gels mous pour modéliser des tissus [39]. Des recherches sur les instabilités dans les gels ont donc été initiées. Dans ce travail de thèse, nous nous sommes interrogés sur l'influence de l'élasticité sur le système modèle de la digitation visqueuse.

L'instabilité de Saffman-Taylor modélise uniquement le mouvement d'un liquide aux propriétés linéaires (le liquide Newtonien). Dans l'exemple de la digitation visqueuse observée lors de l'extraction pétrolière, le fluide poussé possède généralement des propriétés fortement non-linéaires, dites non-Newtoniennes. De nombreux travaux ont été réalisés afin de comprendre l'influence de la rhéofluidification, du rhéoépaississement, de l'élasticité ou encore de l'existence de seuils d'écoulement, pour prédire, contrôler ou tenter de supprimer l'instabilité. On rejoint ici des questionnements touchant à la morphogénèse du vivant.

Nous avons essayé de pousser plus loin la question de l'influence de l'élasticité sur la digitation. Il existe un certain nombre de travaux qui s'intéressent à cette question, même si leur finalité est rarement l'étude de la morphogénèse. Dans tous ces travaux, quand la contribution élastique devient grande devant la contribution visqueuse, on observe des phénomènes de rupture. Nous allons montrer dans cette thèse, qu'une phénoménologie différente peut être observée, et qu'on peut passer d'une instabilité de digitation visqueuse à une instabilité de digitation d'origine purement élastique, encore jamais observée de manière systématique. Quel est alors l'influence d'une telle observation sur le mécanisme de digitation et les mécanismes de croissance qui y sont analogue ?

Dans un premier chapitre, nous présenterons de manière détaillée l'insta-



bilité de digitation visqueuse, ainsi que les principales instabilités élastiques répertoriées, liées en général à des effets de confinement, d'incompressibilité et de grandes déformations. Le lien avec la digitation apparaîtra plus clairement, au fur et à mesure que le lecteur avancera dans la lecture de ce manuscrit. Nous aborderons le cas de la digitation visqueuse en géométries linéaire et circulaire, nous présenterons l'instabilité de flambage des élastomères, l'instabilité du ballon, quelques expériences illustrant le lien entre élasticité et morphogénèse, et enfin la cavitation en décollement confiné.

Dans un second chapitre, nous présenterons quelques éléments de rhéologie. Nous rappellerons quelques notions de viscosité non linéaire et d'élasticité aux grandes déformations. Nous introduirons ensuite la notion de viscoélasticité à travers le modèle simple de Maxwell. On en donnera également une description pour les grandes déformations, avant de passer à une brève revue des travaux réalisés sur la digitation dans les liquides non-Newtoniens ou viscoélastiques.

Dans un troisième chapitre, nous décrirons les matériaux modèles employés dans cette étude. Nous aborderons brièvement leur physicochimie et présenterons des résultats de mesures rhéologiques.

Dans un quatrième chapitre, nous présenterons les dispositifs expérimentaux développés au cours de cette thèse. Nous décrirons d'abord (i) un dispositif classique de Saffman-Taylor en géométrie circulaire, puis (ii) un dispositif nouveau dont la fonction est de pouvoir solliciter un liquide et un solide avec les mêmes conditions aux limites et enfin (iii) un troisième qui est une première réalisation expérimentale d'un dispositif de décollement en front plan.

Dans un cinquième chapitre, nous présenterons les premières observations de la digitation élastique en volume dans un gel de polyacrylamide. Nous en donnerons une caractérisation systématique, qui nous permettra d'identifier les mécanismes entrant en jeu.

Dans un sixième chapitre, nous présenterons une expérience dans un dispositif de décollement en front plan, qui nous permettra d'observer la digitation dans une géométrie plus simple. Cette géométrie, plus facile à appréhender du point de vue théorique, nous a permis de débiter une collaboration avec l'équipe de L. Mahadevan à Harvard, qui a développé un modèle théorique et fait des simulations numériques, dont nous donnerons les grandes lignes.

Après avoir montré dans les chapitres précédents, l'existence d'une digi-

tation en volume d'origine purement élastique et après l'avoir caractérisée de manière systématique, dans le dernier chapitre nous présenterons des expériences réalisées dans un fluide viscoélastique modèle de Maxwell synthétisé par S. Mora et C. Ligoure au L2C de Montpellier. Nous montrerons alors qu'il est possible d'observer une transition continue entre digitation visqueuse et digitation élastique.



# Chapitre 1

## Instabilités visqueuses et élastiques

L'approche de ce travail est de regarder ce que devient une instabilité, se propageant dans un matériau incompressible, lorsque celui-ci passe d'une réponse élastique à une réponse visqueuse ou l'inverse. Dans ce premier chapitre nous allons présenter une revue succincte des instabilités observées de manière courante dans les liquides et dans les solides. Dans une première partie on présentera la célèbre instabilité de Saffman-Taylor, dite de digitation visqueuse. Nous parlerons ensuite des instabilités observées dans les élastomères.

### 1.1 La digitation visqueuse

La digitation visqueuse se produit lorsqu'on pousse un fluide moins visqueux sur un fluide plus visqueux dans un milieu confiné. Elle fut observée pour la première fois par le naturaliste suisse Jean Jacques Scheuchzer qui reproduit de manière fidèle ces observations sur une gravure présentée en figure 1.1. Dans les années 50, sous l'influence de l'industrie pétrolière, ce problème fut traité en détail par Saffman et Taylor. Le problème posé par les compagnies était lié à la digitation constaté dans des milieux poreux. On sait cependant depuis Hele-Shaw, qu'on peut utiliser un système constitué de deux plaques de verre très rapprochées (la cellule de Hele-Shaw) comme un analogue d'un milieu poreux [40]. Ce système expérimental est beaucoup plus commode; Saffman et Taylor décidèrent donc de l'utiliser pour comprendre

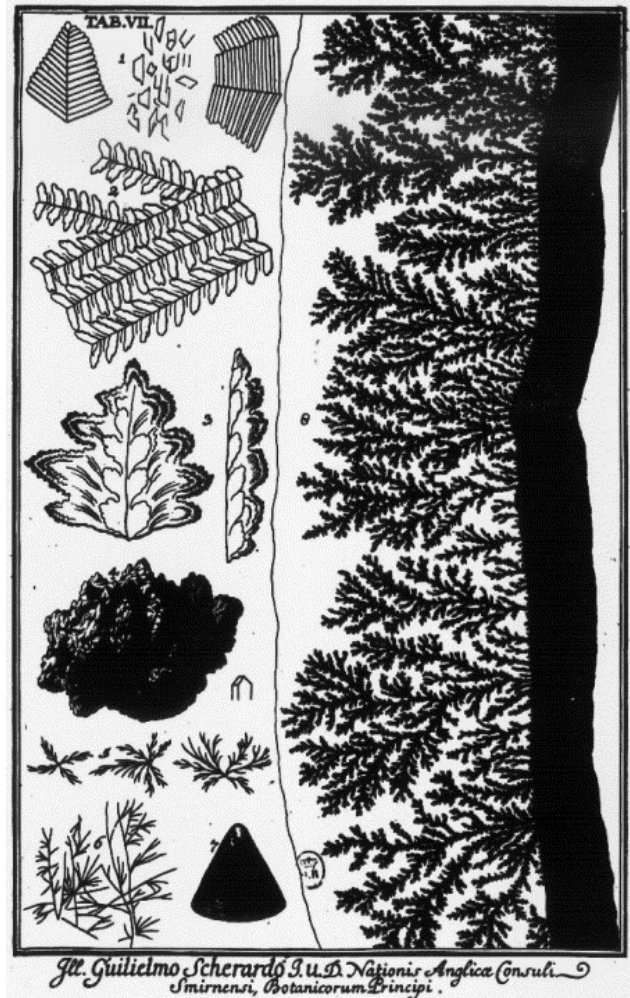


FIGURE 1.1 – Gravure de structure dendritique observée dans des roches. Ces dendrites ont été étudiées en détail par le naturaliste suisse, Jean-Jacques Scheuchzer, vers la fin du XVII<sup>e</sup> siècle. L'image de droite est une reproduction qu'il dessina de ses observations expérimentales de la digitation visqueuse en séparant des plaques de verres. D'après [1]

le mécanisme impliqué dans le problème de la digitation visqueuse. Leurs travaux furent publiés en 1958 [2] et nous nous proposons de présenter leurs principaux résultats dans cette partie. Ce travail, alors inachevé, dépassa le cadre de la géophysique, et fut repris par bon nombre d'hydrodynamiciens pour les questions physiques qu'il soulevait et pour les perspectives qu'il ouvrait dans d'autres domaines, notamment dans l'étude de la morphogenèse.

### 1.1.1 Écoulement dans une cellule de Hele-Shaw

La cellule de Hele-Shaw fut mise au point par Henry Selby Hele-Shaw au début du xx<sup>e</sup> siècle, pour étudier l'écoulement d'un fluide en milieu confiné. Comme dit précédemment, elle est constituée de deux plaques de verre distantes d'une longueur  $b$  très faible devant leur largeur  $W$  (Fig. 1.2). Il est à noter que  $b$  ne peut pas être supérieur à la longueur capillaire du fluide introduit, pour la raison très simple qu'il ferait alors simplement une "flaque" sur la plaque inférieure. Étant un système modèle très commode pour étudier les milieux poreux, la cellule de Hele-Shaw a également été utilisée dans beaucoup d'autres problèmes, notamment dans l'instabilité de Kelvin-Helmholtz [41] [42], l'instabilité de Rayleigh-Taylor [43] [44] ou, plus récemment, la propagation d'ondes solitaires chimiques [45].

On sait depuis D'Arcy que la vitesse moyenne d'écoulement d'un fluide dans un milieu poreux, si la gravité ne joue pas, est donnée par la relation :

$$\langle \mathbf{u} \rangle = -K \nabla P \quad (1.1)$$

où  $K$  est la perméabilité du matériau et  $P$  la pression. Pour alléger la notation,  $\langle \mathbf{u} \rangle$  sera par la suite noté  $\mathbf{u}$ . Cette relation peut être retrouvée en intégrant l'équation de Navier-Stokes. En cellule de Hele-Shaw, on néglige le terme inertiel et l'on ne considère que les composantes de vitesse parallèles aux plaques de verre. On retrouve alors la perméabilité  $K$  pour une cellule de Hele-Shaw qui est donnée par :

$$K = \frac{b^2}{12\eta} \quad (1.2)$$

où  $\eta$  est la viscosité dynamique du fluide. La vitesse d'un fluide soumis à un gradient de pression en cellule de Hele-Shaw est donc donnée par la relation :

$$\mathbf{u} = -\frac{b^2}{12\eta} \nabla P \quad (1.3)$$

D'autre part, l'incompressibilité du fluide, traduite par la relation  $\nabla \cdot \langle \mathbf{u} \rangle = 0$  conduit à :

$$\nabla \mathbf{u} = -\nabla \cdot \left( \frac{b^2}{12\eta} \nabla P \right) = 0 \quad (1.4)$$

soit

$$\Delta P = 0 \quad (1.5)$$

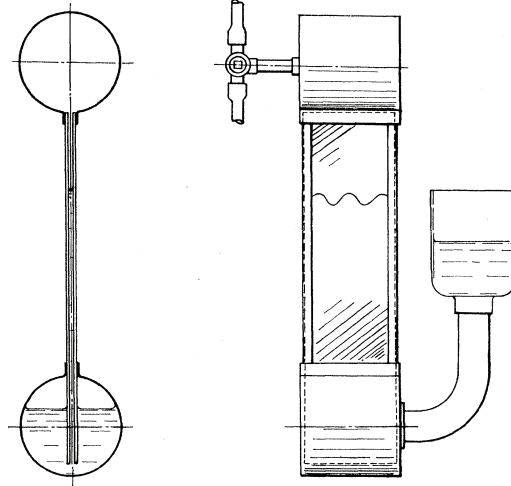


FIGURE 1.2 – Schéma de l'une des cellules de Hele-Shaw utilisées par Saffman et Taylor en 1958. D'après [2].

L'écoulement dans une cellule de Hele-Shaw est donc Laplacien. Cela a pour conséquence que les lignes de courant sont perpendiculaires aux lignes isopressions et que l'écoulement est irrotationnel.

### 1.1.2 Mécanisme de la déstabilisation

Pour simplifier le problème, supposons qu'on pousse un fluide 1 de viscosité  $\eta_1$  sur un fluide 2 de viscosité  $\eta_2$  tel que  $\eta_1 \ll \eta_2$  et tel qu'il n'y est pas de tension de surface. Dans ces conditions, d'après l'équation 6.2, le gradient de pression dans le fluide 1  $\text{grad}P_1$  est négligeable devant le gradient de pression dans le fluide 2  $\text{grad}P_2$  et on peut poser  $P_1 = \text{Cte}$ . En revanche, dans le fluide 2, la pression décroît linéairement (d'après la loi de Darcy) de l'interface vers le bout de la cellule, à pression atmosphérique. Lorsque l'interface est plane, cette dernière correspond à une ligne isobare. Si on fait maintenant une perturbation à un endroit du front (Fig.1.3), alors on voit que le caractère Laplacien du champ de pression conduit à ce que les lignes isobares soient localement resserrées. Or d'après la loi de Darcy, la vitesse est proportionnelle au gradient de pression. La vitesse augmente donc au niveau de la perturbation. Le moindre défaut d'interface sera ainsi amplifié : c'est le mécanisme déstabilisant de l'instabilité. C'est un effet analogue à l'effet de pointe en électrostatique.

Si maintenant on considère qu'il y a une tension de surface, alors il y a un saut de pression associé à la force de Laplace entre le fluide 1 et 2 et l'interface n'est plus une ligne isobare du côté 2. Il en résulte que les isobares coupent l'interface, ce qui permet de diminuer le gradient de pression en avant d'une bosse. Ce mécanisme est donc stabilisant. On va voir dans la partie suivante que la compétition entre le mécanisme déstabilisant et la tension de surface conduit à l'émergence d'une longueur caractéristique.

### 1.1.3 Analyse de stabilité linéaire

L'instabilité de Saffman-Taylor se produit quand une tension de surface existe entre le fluide le moins visqueux et le fluide le plus visqueux. Le mécanisme de déstabilisation est toujours lié à la différence de viscosité entre les deux fluides, mais la tension de surface modifie le mécanisme et les échelles de longueurs par sa tendance à stabiliser le front. Une analyse de per-

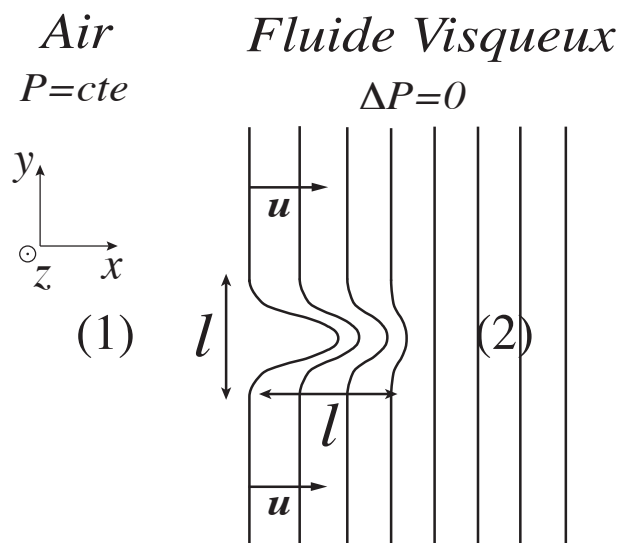


FIGURE 1.3 – Schéma d'une perturbation de taille  $l$  dans un champ de pression Laplacien. Les courbes représentent des lignes isopression. On a représenté le cas où le fluide 1 est de viscosité bien inférieure au fluide 2, c'est-à-dire qu'on peut négliger le gradient de pression dans (1) (cas de l'air par exemple) par rapport à (2).



turbation linéaire va permettre d'extraire la longueur d'onde caractéristique du problème [46, 47, 48].

Soient  $x$  et  $y$  les directions correspondant au plan de la cellule et  $z$  la direction perpendiculaire aux plaques. On va considérer dans toute la suite que le profil en  $z$  est invariant et que l'expérience est faite à l'horizontale, pour utiliser la relation (1.2) qui ne tient pas compte de la gravité. On considère également que le fluide 1 pousse le fluide 2. Dans les deux fluides on a alors :

$$\mathbf{u}_i = -\frac{b^2}{12\eta_i} \nabla P_i \quad (i = 1, 2) \quad (1.6)$$

$$\Delta P_i = 0 \quad (1.7)$$

avec

$$\eta_1 < \eta_2 \quad (1.8)$$

Intéressons nous maintenant de plus près à la vitesse de l'interface. Pour un front rectiligne, cette dernière est notée  $V$ , et elle est égale à la vitesse des fluides au niveau de leur interface repérée par  $x = Vt$  en (1.10). On a alors :

$$V = -\frac{b^2}{12\eta_i} \nabla P_i \quad (1.9)$$

qui, par intégration, et en considérant l'origine des pressions sur le front à la position  $x = Vt$ , où  $t$  est le temps, donne une expression de la pression dans chacun des fluides :

$$P_i = -\frac{12\eta_i V}{b^2} (x - Vt) \quad (1.10)$$

On a donc maintenant une expression de la vitesse de l'interface et du champ de pression dans le fluide pour un front se propageant de manière rectiligne. Le principe de l'analyse de stabilité linéaire est d'imposer maintenant une perturbation à ce front, et d'étudier, en fonction de son vecteur d'onde  $k$ , sa stabilité. Autrement dit, il faut choisir une forme de perturbation permettant de décrire sa croissance ou son évanescence. On peut alors réécrire la position du front en imposant une perturbation sinusoïdale :

$$\zeta = Vt + \epsilon e^{\sigma t} \sin ky \quad (1.11)$$

où  $\sigma$  est le taux de croissance de l'instabilité. On voit bien que pour un  $\sigma$  positif, la perturbation se développera, tandis que pour un  $\sigma$  négatif elle se résorbera. À ce stade, on cherche donc à savoir pour quelle valeur de  $k$ ,

l'instabilité se développera le plus, c'est-à-dire pour laquelle le taux de croissance  $\sigma$  est maximum, et ainsi, déterminer la longueur d'onde caractéristique de plus grande déstabilisation. La relation 1.11 permet de réécrire une expression de la perturbation en pression qu'on notera  $P_{pi}$  ( $i = 1, 2$  selon qu'on se trouve dans le fluide 1 ou dans le fluide 2) :

$$P_{p1} = \frac{12\eta_1\epsilon\sigma}{kb^2} e^{\sigma t + k(x-Vt)} \sin(ky) \quad (1.12)$$

$$P_{p2} = -\frac{12\eta_2\epsilon\sigma}{kb^2} e^{\sigma t - k(x-Vt)} \sin(ky) \quad (1.13)$$

La pression totale dans chaque fluide est égale à ( $i = 1, 2$ ) :

$$P_i^T = P_i + P_{pi} \quad (1.14)$$

La loi de Laplace permet d'exprimer la différence de pression dans les deux fluides en fonction des courbures de l'interface :

$$\Delta P = \gamma(K_1 + K_2) \quad (1.15)$$

où  $K_1$  est la courbure dans le plan  $(x, y)$  (Fig.1.2),  $K_2$  la courbure dans l'épaisseur et  $\gamma$  la tension de surface entre les deux fluides. Cette relation peut être simplifiée en faisant l'hypothèse que dans l'épaisseur les forces capillaires dominent et qu'on a un rayon de courbure égal à la moitié du gap. On a alors :

$$K_1 = \frac{2}{b} \quad (1.16)$$

Ce terme est donc constant le long de l'interface et son effet dynamique peut être négligé. L'équation 1.15 peut donc être réécrite en remplaçant  $K_2$  par  $\frac{\partial^2 \zeta}{\partial y^2}$ , de la manière suivante :

$$P_2^T(\zeta) - P_1^T(\zeta) = \gamma \frac{\partial^2 \zeta}{\partial y^2} \quad (1.17)$$

En utilisant les équations 1.12 à 1.14 et l'équation 1.17, on peut montrer que la relation de dispersion s'écrit alors :

$$\sigma = \frac{\eta_2 - \eta_1}{\eta_1 + \eta_2} V k - \gamma \frac{b^2}{12} \left( \frac{1}{\eta_1 + \eta_2} \right) k^3 \quad \text{avec} \quad \eta_1 < \eta_2 \quad (1.18)$$

Si l'on pousse avec de l'air - de viscosité négligeable - à la place du fluide 1, cette relation s'écrit :

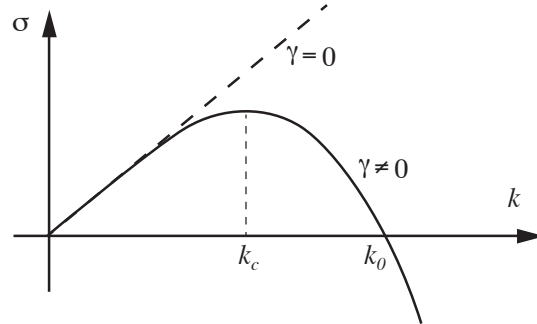


FIGURE 1.4 – Relation de dispersion de l’instabilité de Saffman-Taylor, lorsqu’on pousse de l’air sur un fluide.

$$\sigma = Vk - \gamma \frac{b^2}{12\eta} k^3 \quad \text{avec} \quad \eta = \eta_2 \quad (1.19)$$

La relation de dispersion est tracée en figure 1.4. On remarque que le taux de croissance  $\sigma$  admet un maximum, qui est atteint pour :

$$k_c = \frac{2}{b} \sqrt{\frac{\eta V}{\gamma}} \quad (1.20)$$

ce qui correspond à une longueur d’onde de croissance la plus rapide :

$$\lambda_c = \pi b \sqrt{\frac{\gamma}{\eta V}} \quad (1.21)$$

On a vu que le taux de croissance doit être positif pour que l’instabilité se développe : le front sera donc instable pour tous vecteurs d’onde inférieurs à  $k_0 = \sqrt{3}k_c$ , correspondant au changement de signe de la relation de dispersion. La tension de surface empêche donc la croissance des petites longueurs d’onde. On voit également que la relation (1.21) n’est autre que le rapport entre la tension de surface, qui tend à augmenter  $\lambda$  et donc élargir les doigts, et les forces visqueuses qui tendent au contraire à faire des doigts plus fins. Cette longueur d’onde est, pour cette raison, également appelée longueur capillaire.

On montre en figure 1.5 des photos prises pendant la déstabilisation d’un front initialement rectiligne [2]. L’instabilité de Saffman-Taylor est de nature super-critique, c’est-à-dire que la déstabilisation se fait de manière continue et progressive. Elle n’est cependant pas stationnaire comme dans le cas de

l'instabilité de Rayleigh-Bénard. L'analyse de stabilité linéaire, qui prédit la longueur capillaire, ne décrit que le début de l'instabilité jusqu'à ce que la non stationnarité conduise à un phénomène de compétition des doigts. Cette compétition se termine par la formation d'un unique doigt stationnaire de dimension décorrélé de  $\lambda_c$  (Fig.1.5(d)).

### 1.1.4 Forme du doigt stationnaire

La forme de ce régime de digitation stationnaire a été prédite par Saffman et Taylor [2] en utilisant les transformés conformes. Ils réalisent un calcul 2D en négligeant la tension de surface et donnent une prédiction de la forme des doigts, connaissant leur largeur à priori. Ils n'expliquent cependant pas le mécanisme permettant de sélectionner cette forme, qui sera compris bien plus tard (cf. partie suivante). La forme des doigts est donné par la relation :

$$x = \frac{1 - \lambda}{\pi} \ln \frac{1}{2} \left( 1 + \cos \frac{\pi y}{\lambda} \right) \quad (1.22)$$

#### 1.1.4.1 Largeur du doigt stationnaire

Les premières observations expérimentales [2] ont montré que la largeur relative du doigt finit toujours par saturer à une certaine valeur dépendant de

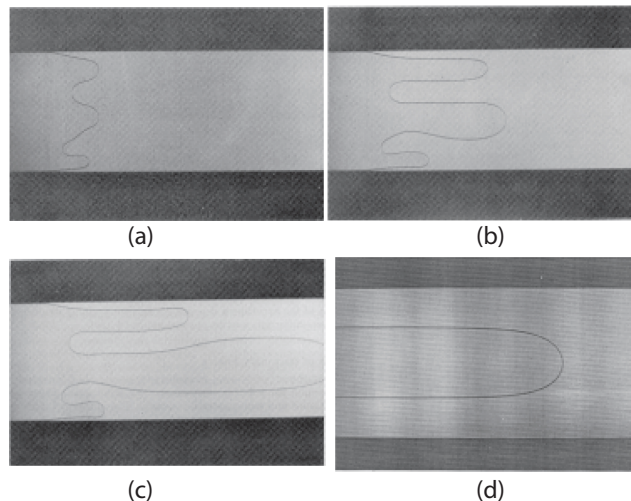


FIGURE 1.5 – Photos montrant les premières déstabilisations (a) et la compétition entre différentes tailles de doigts (b)(c), suivies ensuite par la formation d'un doigt stationnaire (d). D'après [3]

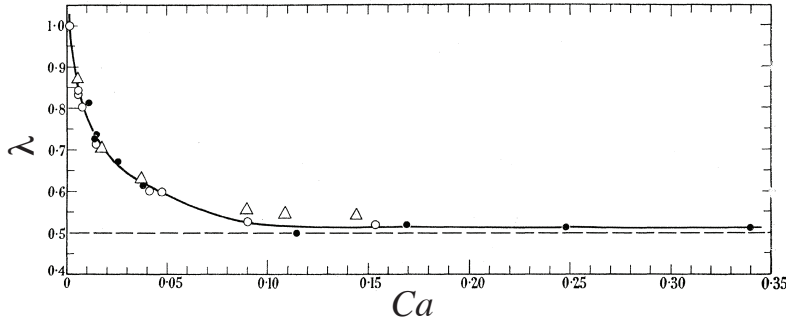


FIGURE 1.6 – Courbe représentant la largeur relative  $\lambda = w/W$  du doigt stationnaire en fonction du nombre capillaire  $Ca$ . D'après [2]

la vitesse pour des fluides donnés (Fig.1.5(d)). Pour les plus grandes vitesses, cette largeur relative est de  $\lambda = w/W = 0.5$ , où  $W$  est la largeur du canal et  $w$  la largeur du doigt. Pour des vitesses encore plus élevées, on atteint ensuite un régime dit de "tip-splitting", c'est-à-dire de branchement, où les doigts se séparent et forment des structures plus complexes. Le paramètre contrôlant la largeur du doigt, trouvé par Saffman et Taylor, n'est autre que le nombre capillaire  $Ca$ , qui compare force visqueuse et tension de surface :

$$Ca = \frac{\text{Force visqueuse}}{\text{Force capillaire}} = \frac{\eta V}{\gamma} \quad (1.23)$$

On donne en figure 1.6 les résultats expérimentaux trouvés pour la largeur des doigts en fonction de  $Ca$  [2]. McLean et Saffman, en 1981[49], ont montré que le meilleur paramètre de contrôle de l'instabilité, est donné par un nombre capillaire modifié, tenant compte du confinement. Il s'écrit :

$$\frac{1}{B} = 12 \frac{\eta V}{\gamma} \left( \frac{W}{b} \right)^2 \quad (1.24)$$

L'évolution de  $\lambda$  en fonction de  $1/B$  a été prédite en 1986, simultanément par Combescot et *al* [50], Hong et Langer [51] et Shraiman [52]. Les auteurs montrent que la tension de surface, pour un  $B$  donné, sélectionne une famille discrète de largeur relative de doigt  $\lambda_n$ . Elles tendent toutes vers une valeur 0.5 aux grands  $1/B$ . Ils montrent que dans la limite des grands  $1/B$ , cette famille de solution est donnée par la relation :

$$\left( \lambda_n - \frac{1}{2} \right) = \frac{1}{8} a_n (16\pi^2 B)^{2/3} \quad (1.25)$$

où  $a_n = 2(n + 4/7)^2$ .

Pour de grandes valeurs de  $1/B$ , le doigt finit par se déstabiliser de la même manière qu'aux grands Reynolds un écoulement perd ses propriétés laminaires. Les expériences de Tabeling et Libchaber [3] ont montré que dans une cellule très propre, on peut faire des doigts stationnaires jusqu'à  $1/B = 60000$ . Ces auteurs montrent que la largeur des doigts pour les grandes valeurs de  $1/B$  tend vers une valeur plus petite que  $1/2$ , à cause d'effets tri-dimensionnels liés au film de mouillage laissé derrière le doigt. Ce film croît avec la vitesse de l'interface, qui n'est pas la même en tout point du front. Cet effet affecte le saut de pression à l'interface exprimé par l'équation 1.17 et il en résulte une diminution de la taille des doigts à haut nombre capillaire, par rapport aux prédictions.

### 1.1.5 La géométrie radiale

L'instabilité de Saffman Taylor peut également être observée en géométrie radiale [4]. Si l'on injecte de l'air dans un fluide visqueux, on observe d'abord la croissance d'une bulle dont l'interface se déstabilise. La forme est alors plus complexe, avec des doigts qui se séparent et se repoussent comme montré en figure 1.7. Le calcul théorique permettant de déterminer les modes de l'instabilité et le périmètre critique en fonction de la viscosité, de la tension de surface et de la géométrie au premier stade de la déstabilisation, a été mené par Patterson et al [4] et Miranda et al [53]. Nous nous proposons d'en donner les principaux résultats pour une injection d'air dans un fluide de viscosité  $\eta$ .

Il s'agit de refaire un calcul de stabilité linéaire en géométrie circulaire. Ce calcul est fait pour un débit surfacique  $Q$  donné. L'évolution du volume d'air injecté se déduit de :

$$R(t) = \sqrt{R_0^2 + \frac{Qt}{\pi}} \quad (1.26)$$

De la même manière qu'on l'a fait pour la géométrie linéaire, on introduit une perturbation du rayon. On écrit :

$$\mathcal{R} = R + \zeta(\theta, t) \quad (1.27)$$

On décompose la perturbation  $\zeta$  en modes de Fourier :

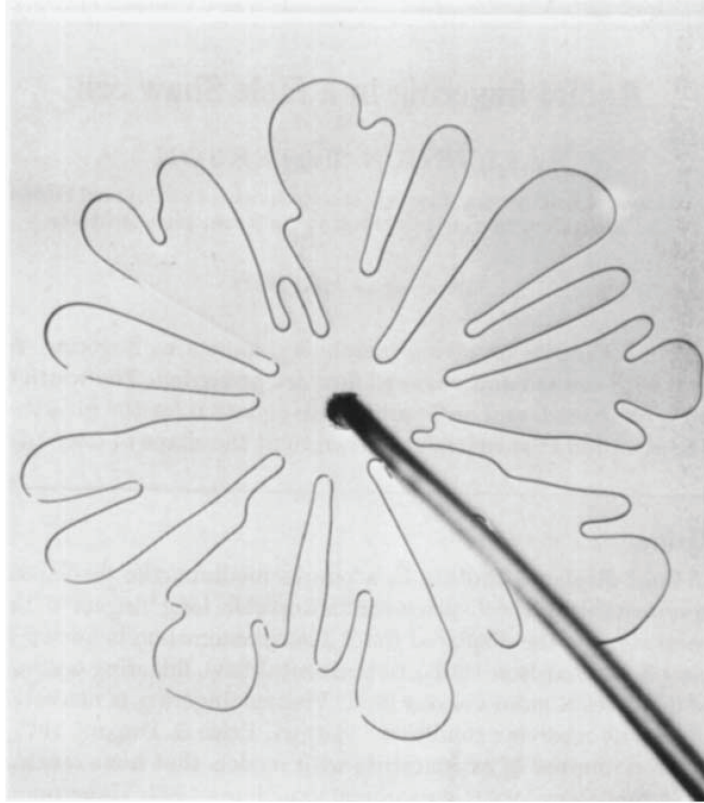


FIGURE 1.7 – Observation de la digitation visqueuse en géométrie circulaire lorsqu'on injecte de l'air dans de la glycérine. D'après [4]

$$\zeta(\theta, t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \zeta_n(t) e^{in\theta} \quad (1.28)$$

avec :

$$\zeta_n = \zeta(t=0) \exp \int_0^t \lambda_n(t') dt' \quad (1.29)$$

où  $n$  est le mode de l'instabilité. En géométrie circulaire, l'équation 1.15 a une forme plus compliquée, car  $K_1$ , la courbure dans le plan  $(x, y)$  doit s'exprimer en coordonnée polaire  $(r, \theta)$  de la façon suivante :

$$K_1 = \frac{r^2 + 2 \left( \frac{\partial r}{\partial \theta} \right)^2 - r \left( \frac{\partial^2 r}{\partial \theta^2} \right)}{\left( r^2 + \left( \frac{\partial r}{\partial \theta} \right)^2 \right)^{3/2}} \quad (1.30)$$

Miranda et *al* développent  $K_1$  à l'ordre 2 en  $\zeta$ . L'équation 1.15, combinée à la loi de Darcy permet, comme en front plan, d'obtenir une relation de dispersion, comme en 1.20, où le contraste des viscosités,  $\eta_2 - \eta_1$ , joue un rôle primordiale.

Ils obtiennent, à l'issu d'un calcul à l'ordre 2 - donc faiblement non linéaire - une relation de couplage de mode reliant les amplitudes des modes de déstabilisation. À l'ordre linéaire, cette relation devient :

$$\zeta_n(t) = \zeta(0) \exp \left[ \int_0^t \lambda(n) dt' \right] \quad (1.31)$$

soit :

$$\frac{d\zeta_n(t)}{dt} = \zeta_n(t) \lambda_n(t) \quad (1.32)$$

où :

$$\lambda(n) = \frac{Q}{2\pi R^2(t)} (|n| - 1) - \frac{\alpha}{R^3(t)} |n|(n^2 - 1) \quad (1.33)$$

est la longueur de première déstabilisation en mode  $n$ , avec

$$\alpha = \frac{b^2 \gamma}{12\eta} \quad (1.34)$$

La perturbation croît si :  $\frac{d\zeta_n}{dt} \geq 0$ , c'est-à-dire si  $\lambda_n(t) \geq 0$ .

D'après l'équation 1.33, ceci correspond à un rayon critique  $R_c(n)$  :

$$R_c(n) = \frac{2\pi\alpha |n|(n^2 - 1)}{Q |n| - 1} \quad (1.35)$$

lorsqu'on peut négliger la viscosité du fluide 1 devant celle du fluide 2.

On peut aussi calculer le temps critique  $t_c(n)$  où le rayon critique est atteint et où par conséquent, le mode  $n$  se déstabilise, si l'on suppose toutefois que ce mode est le premier à apparaître. En effet, en utilisant l'expression ci-dessus de  $R_c(n)$  et l'équation 1.26, on trouve :

$$t_c(n) = \frac{\pi}{Q} \left[ \frac{4\pi^2 \alpha^2 n^2 (n^2 - 1)}{Q^2 (|n| - 1)^2} - R_0^2 \right] \quad (1.36)$$

En résumé, l'amplitude de la perturbation reste égale à sa valeur initiale tant que  $t_c(n)$  n'est pas atteint. Au-delà, c'est à dire dès que le rayon dépasse sa valeur critique  $R_c(n)$ , la perturbation croît avec un taux de  $\lambda_n(t)$  et atteint donc :



$$\zeta_n(t) = \zeta_n(0) \left[ \left( \frac{\pi R_0^2 + Qt}{\pi R_0^2 + Qt_c(n)} \right)^{\frac{|n|-1}{2}} \exp \left( (|n| - 1) \left( \left( \frac{\pi R_0^2 + Qt_c(n)}{\pi R_0^2 + Qt} \right)^{1/2} \right) - 1 \right) \right] \quad (1.37)$$

pour  $t \geq t_c(n)$ , tout au moins à l'ordre linéaire.

### 1.1.6 La digitation avec des fluides miscibles

Le mécanisme de déstabilisation de Saffman-Taylor est uniquement lié à la différence de viscosité entre le fluide injecté et le fluide poussé. Comme nous l'avons vu pendant l'analyse de stabilité linéaire, c'est la tension de surface, mécanisme stabilisant, qui conduit à l'émergence de la longueur capillaire  $l_c$ . Le calcul 2D montre que, sans tension de surface, le taux de croissance  $\sigma$  augmente linéairement avec le vecteur d'onde  $k$  (Eq.1.19, Fig.1.4). Autrement dit, il n'y a pas de maximum sur la courbe de dispersion. Si l'on fait tendre  $\gamma$  vers 0 dans l'équation 1.19, cependant, on trouve une longueur d'onde qui tend vers 0. Même si intuitivement on comprend que la taille des doigts sera d'autant plus petite que la tension de surface est faible pour minimiser la dissipation visqueuse (effet de "pointe" expliqué en 1.1.2), ce résultat n'est pas physique. D'autre part, lorsque la taille des doigts devient comparable au gap, l'approximation 2D faite dans toute la théorie de perturbation linéaire n'est plus vérifiée. Paterson [5] montre alors avec une analyse de stabilité linéaire différente, en géométrie circulaire, que la taille des doigts est gouvernée par une unique échelle de longueur, l'écart entre les plaques de verre  $b$  tel que :

$$\lambda \simeq 4b \quad (1.38)$$

Ce résultat est retrouvé en faisant l'approximation,  $R \gg b$ . L'auteur montre un accord plutôt qualitatif avec les expériences (Fig.1.8). Un accord quantitatif est difficile à obtenir vu la complexité des interactions entre doigts qui poussent. Il est cependant intéressant de noter que sans tension de surface, c'est la plus petite échelle de longueur, le gap, qui contrôle l'instabilité.

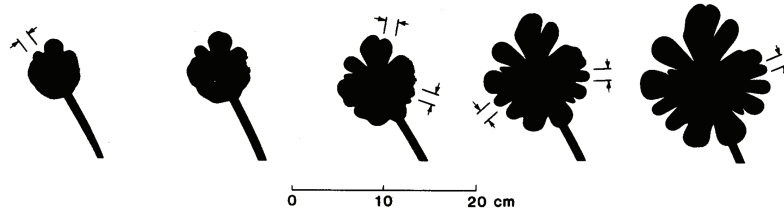


FIGURE 1.8 – Observation de la digitation visqueuse sans tension de surface en géométrie circulaire. On injecte de l'eau dans de la glycérine. Dans cet exemple,  $Q = 4.1\text{cm}^2$ ,  $b = 0.30\text{cm}$ . Photographies prises aux instants  $t - t_0 = 12, 17, 21, 26$  et  $31\text{s}$  respectivement. La distance indiquée est  $4.0b$ . D'après [5]

## 1.2 Instabilité de flambage dans les élastomères

### 1.2.1 Flambage d'Euler

Lorsqu'on soumet à une tige, constituée d'un matériau élastique déformable, une compression, au bout d'un certain seuil en force, cette tige se courbe progressivement (Fig.1.9). Cette instabilité, appelée "flambage" ou "flambage d'Euler", est liée à la compétition entre deux composantes du système qui conduit à une brisure de symétrie par une bifurcation super-critique. Il s'agit de l'instabilité élastique la plus simple et est un cas d'école [54] [55]. Le seuil de l'instabilité peut-être facilement prédit en minimisant l'énergie du système. Cette dernière fait intervenir un terme de déformation dans l'axe de la tige et un terme de flexion dans l'axe perpendiculaire. On voit alors que lorsque le premier terme est négatif, ce qui correspond à de la compression, il est possible, au-delà d'un certain seuil, de minimiser l'énergie en flambant, car il est moins coûteux de faire fléchir que de continuer la compression. L'instabilité de flambage est très sensible aux conditions aux limites, comme on peut le voir en figure 1.9.

Le flambage d'Euler est en quelque sorte l'instabilité élastique de base, en une dimension. On va voir que pour des systèmes spatialement plus complexes, dans le cas de matériaux incompressibles où la conservation du volume impose des relations strictes entre les différentes composantes spatiales, il est possible d'observer des instabilités analogues au flambage d'Euler, en

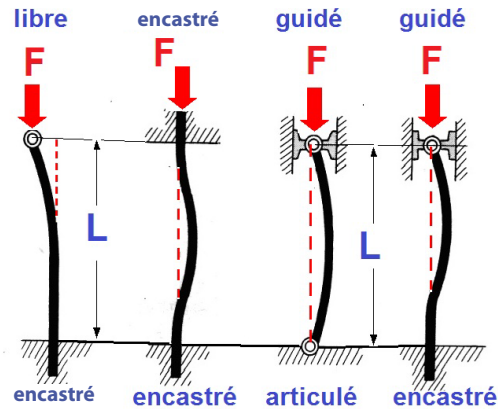


FIGURE 1.9 – Schéma représentant l'instabilité de flambage pour différentes conditions aux limites.

compression, ou même en tension.

## 1.2.2 Flambage d'une feuille d'élastomère

Lorsqu'on soumet une feuille d'élastomère incompressible à une tension uniaxiale, en lui imposant de plus un déplacement nul au niveau de l'accroche du dispositif dans la direction transverse à la déformation imposée (Fig.1.10), on observe la formation de ride à sa surface. Cette instabilité est observée, au-delà d'un certain seuil, si  $L \gg W$  avec  $L$  la longueur selon  $x$  et  $W$  la largeur, selon  $y$ .

Malgré l'ancienneté du problème, posé pour la première fois par Wagner et al en 1929 [56], ce n'est que très récemment que la longueur d'onde et l'amplitude de cette instabilité ont pu être prédites, par une méthode semi-analytique [6] [7]. Les travaux précédents se sont attachés à prédire la position des rides, qui peut-être obtenue avec des équations linéarisées. On observe cependant que l'instabilité est réellement observée pour des seuils beaucoup plus élevés que le seuil critique, ce qui suggère que le traitement des non-linéarités est indispensable. Le mécanisme physique et l'émergence d'une longueur d'onde peuvent être compris à partir de considérations énergétiques.

Par effet Poisson, la feuille d'élastomère, sous tension dans la direction  $x$ , est soumise à une compression dans la direction  $y$ . Mais, comme l'échantillon

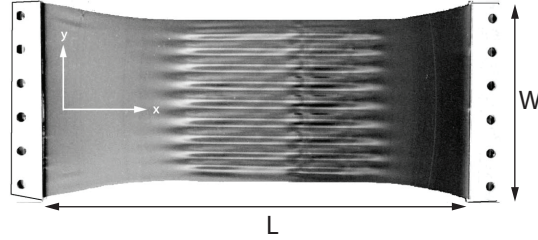


FIGURE 1.10 – Photo d’une expérience où on exerce une tension sur une feuille d’élastomère incompressible (polyéthylène). On voit apparaître, pour un déplacement suffisant, des rides à la surface de la feuille. Longueur  $L \simeq 25\text{cm}$ , largeur  $W \simeq 10\text{cm}$ , épaisseur  $t \simeq 0.01\text{cm}$ , sous tension uniaxiale de déplacement  $\gamma \simeq 0.10$ . D’après [6]

est encastré, sa contraction est empêchée dans une région plus ou moins proche du dispositif de mise sous tension. Le seul moyen qu’a le système de garder un volume constant est alors de “flamber”, c’est-à-dire de former des rides hors du plan  $(xy)$ . Bien entendu, la formation d’un système de rides le long de la direction  $x$  coûte au système une certaine énergie de flexion  $U_F$  dans la direction  $y$ . Mais, en compensation, cette instabilité permet de relaxer une certaine énergie de tension  $U_T$  dans la direction  $x$ . On peut donc écrire l’énergie du système sous la forme :

$$U = U_F - U_T \quad (1.39)$$

où  $U_F$  et  $U_T$  sont deux termes positifs. Si l’on désigne par  $\zeta(x, y)$  le déplacement vertical d’un point de coordonnées  $(x, y)$  :  $\zeta(x, y) \propto \exp ikyf(x)$ , alors, comme nous savons que :

$$U_F \propto B\partial_y^4 \zeta \quad (1.40)$$

$$U_T \propto T\partial_x^2 \zeta \quad (1.41)$$

où  $B = Ew^3/12(1-\nu^2)$  désigne le module de flexion de la feuille d’élastomère,  $E$  son module d’Young,  $w$  son épaisseur, et  $\nu = 1/2$  son module de Poisson. On a donc :

$$U_F \propto Bk^4 \zeta \quad (1.42)$$

$$U_T \propto T \quad (1.43)$$

On en déduit que la longueur d’onde sélectionnée suit la loi d’échelle

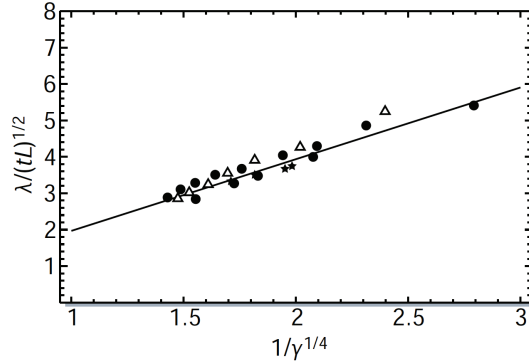


FIGURE 1.11 – Loi d'échelle vérifiée par la longueur d'onde de l'instabilité de rides observée lors de la mise en tension d'une fine feuille d'élastomère. D'après [7]

suivante :

$$\lambda \sim \left(\frac{B}{T}\right)^{1/4} \quad (1.44)$$

E. Cerda et L. Mahadevan [6] déduisent également de leur analyse la loi d'échelle suivie par l'amplitude  $A$  de l'instabilité :

$$A \sim \lambda \left(\frac{\Delta}{W}\right)^{1/2} \quad (1.45)$$

où  $\Delta$  désigne le déplacement moyen imposé par la compression le long de  $y$ . L'accord entre théorie et expérience est présenté en figure 1.11.

Cette prédiction théorique donne une bonne compréhension du phénomène. Cependant l'accord quantitatif peut être beaucoup moins bon dans des géométries où la répartition des contraintes est plus complexe que dans le cas d'une feuille rectangulaire. Une approche théorique plus générale a été développée très récemment [57]. L'instabilité de rides peut notamment être observée dans des géométries circulaires, lorsque, par exemple, une goutte est déposée au centre d'un film polymérique flottant à la surface d'un liquide [8], ou lorsqu'on essaie de déposer une membrane élastique fine sur la surface intérieure d'une demi-sphère [9] ou encore lorsqu'on vient appuyer avec un indenteur au centre d'une demi-sphère sous pression [10] (Fig.1.12).

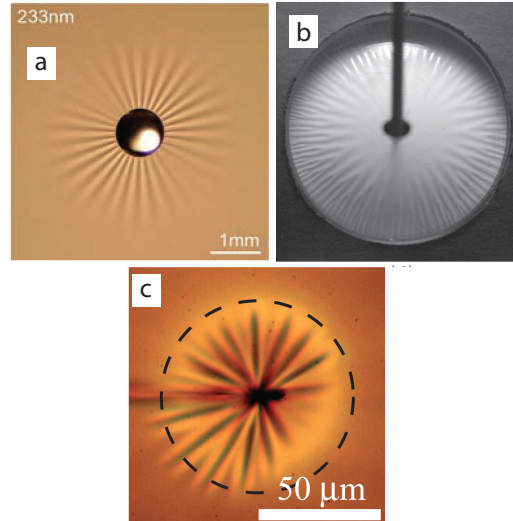


FIGURE 1.12 – a : Goutte déposée sur un film fin de polymère flottant à la surface d'un liquide. D'après [8]. -b : feuille d'élastomère recouvrant une surface hémisphérique. D'après [9]. -d : Indenteur ponctuelle appuyant sur une demi-sphère sous pression. D'après [10].

### 1.2.3 Flambage et morphogénèse

Une autre classe intéressante d'instabilité de flambage, est la déstabilisation de l'interface entre deux gels ou élastomères collés entre eux. Cette problématique est particulièrement pertinente en biophysique. Dans de nombreuses situations des tissus croissent en contact avec d'autres tissus, ce qui peut conduire à des instabilités. C'est notamment le cas lors de la formation des intestins. La croissance au contact de deux tissus, à des vitesses différentes, conduit à la formation de boucles [11]. Dans cet exemple, il a été possible d'effectuer une expérience en laboratoire avec des élastomères, pour reproduire les formes observées dans des intestins de poulet ou de souris (Fig.1.13).

Un exemple particulièrement intéressant est également la croissance des tumeurs cancéreuses. Pour reproduire cet exemple là, dans une expérience de laboratoire bien contrôlée, on peut faire l'analogie entre un gel gonflant par absorption d'eau et un tissu en croissance. Ainsi, Dervaux et al [12] ont construit très récemment une expérience où un disque de gel de polyacrylamide non gonflant est mis au contact avec un anneau gonflant en contact avec l'eau dans une géométrie confinée analogue à la cellule de Hele-Shaw (adaptée pour le contrôle du gonflement). Ils observent une instabilité de

flambage suivie par la rupture du gel périphérique (Fig.1.14A-H). La longueur d'onde dépend, dans un régime où l'élasticité de l'anneau est supérieure à l'élasticité du disque, de l'épaisseur  $H$  alors qu'elle reste constante lorsque l'élasticité de l'anneau est inférieure à celle du disque. L'idée d'utiliser un gel gonflant comme analogue d'un tissu en croissance apparaît pour la première fois quelques années auparavant, pour l'étude d'une instabilité relativement proche. Lorsqu'on met au contact une couche de gel non gonflante avec une couche de gel gonflante dans une géométrie plane ou circulaire non confinée, on observe également du flambage de l'interface [13] [58](Fig.1.14I). Les auteurs ne font toutefois pas encore le lien avec des observations biologiques.

Une autre instabilité, différente de l'instabilité de flambage, est la formation des sulcus. Lorsqu'on sollicite une membrane épaisse en compression, on observe la formation de plis à la surface, qui nucléent de manière hystérétique et brusque, sans faire apparaître une quelconque longueur d'onde. Ce type de motif est observé à la surface du cerveau ou de la peau dans les zones de pliure des membres. Cette instabilité est connue sous le nom d'instabilité de Biot [59]. Ce phénomène est également observé lorsqu'on fait flamber un cylindre d'élastomère. Dans ce cas, on localise la formation du sulcus au niveau du maximum de courbure. Cette instabilité a notamment été étudiée expérimentalement et en simulation numérique par Ghatak et *al* [60] ainsi que Mahadevan et *al* [61].

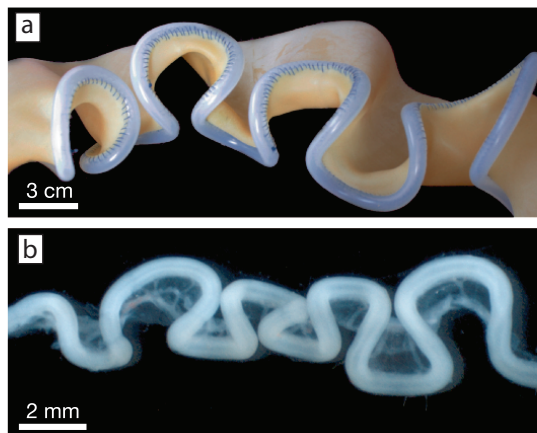


FIGURE 1.13 – *Expérience réalisée en laboratoire avec des élastomères (a) pour reproduire l'instabilité de boucles observée dans les intestins (b), intestins de poulet. D'après [11].*

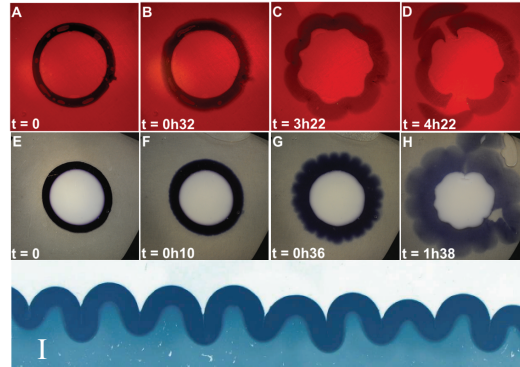


FIGURE 1.14 – A-H : Séquence typique de l'évolution de l'instabilité observée dans les tumeurs artificielles pour deux expériences de dimensions comparables. Dans la première expérience (A-D), le module élastique du disque intérieur est inférieur à celui de l'anneau périphérique. La deuxième expérience (E-H) correspond au cas inverse. D'après [12].- I : Instabilité de buckling produite par le gonflement d'un gel de polyacrylamide au contact d'un gel non gonflant. D'après [13].

### 1.3 L'instabilité du "ballon"

Lorsqu'on souffle dans un ballon de baudruche, on remarque que, passé un certain seuil en déformation de la membrane, il devient plus aisé de le gonfler. Ce phénomène, connu sous le nom d'instabilité du "ballon", a été étudié pour la première fois par Mallock en 1891[14]. Ce dernier a utilisé deux géométries : d'abord une géométrie cylindrique, dans laquelle une "hernie" croît au-delà d'un seuil (Fig. 1.16), et la géométrie du ballon sphérique, dans laquelle la forme est conservée au-delà du seuil, mais la pression nécessaire à l'expansion chute. Pour un matériau incompressible, et pour une membrane d'épaisseur beaucoup plus petite que le rayon de l'objet, on peut prédire et expliquer le seuil de l'instabilité. Pour cela il faut considérer les équations de l'élasticité aux grandes déformations. L'élasticité linéaire ne permet pas de traiter le problème. Cette instabilité peut-être prédite par une description de type néo-Hookéenne. La démonstration fait appel à des notions d'élasticité non-linéaire qui seront abordées en chapitre 2. Nous reviendrons donc plus tard au détail du mécanisme. Nous nous proposons dans un premier temps de donner les principaux résultats.

Considérons le gonflage d'un ballon sphérique, de rayon initial  $R$  et d'épaisseur



$w$ . Si l'on augmente le rayon du ballon d'un facteur  $\lambda$ , l'épaisseur doit varier d'un facteur  $1/\lambda^2$  pour assurer l'invariabilité du volume. En d'autres termes, si  $\lambda_1 = \lambda_2$  désigne l'extension dans les directions orthoradiales, on a :  $\lambda_1^2 \lambda_3 = 1$ , avec  $\lambda_3 = 1/\lambda^2$  dans la direction de l'épaisseur du ballon. On a donc :  $\lambda_1^2 = \lambda_2^2 = \lambda^2$ . Etant donné que le ballon est supposé de faible épaisseur, nous pouvons faire l'hypothèse que toutes les contraintes sont superficielles, soit  $\sigma_3 = 0$ . On va voir au chapitre 2 que cette hypothèse nous permettra de montrer que la pression à l'intérieur du ballon s'exprime de la manière suivante :

$$\frac{pR}{wC_1} = \frac{4(\lambda^{-1} - \lambda^{-7})}{[1 - (J_1/J_m)]} \quad (1.46)$$

$$= \frac{4(\lambda^{-1} - \lambda^{-7})}{[1 - (2\lambda^2 + \frac{1}{\lambda^2} - 3/J_m)]} \quad (1.47)$$

où  $J_m$  est un paramètre physico-chimique qui caractérise les propriétés d'élongation maximum des chaînes polymériques. Il donne une bonne estimation des effets de rigidification des élastomères aux grandes déformations. Ce résultat est obtenu en utilisant le modèle néo-Hookéen de Mooney-Rivlin, sur lequel nous reviendrons au chapitre 2. Pour être en très bon accord quantitatif, ce résultat peut être raffiné en utilisant d'autres modèles non-linéaires inspirés de ce dernier. Il est cependant très satisfaisant pour expliquer le mécanisme physique de l'instabilité. On a représenté sur la figure 1.16 l'évolution de la pression en fonction de l'élongation  $\lambda$ . On voit que la courbe présente un maximum, expliquant pourquoi, au-delà d'un certain seuil de pression, le ballon devient plus facile à gonfler.

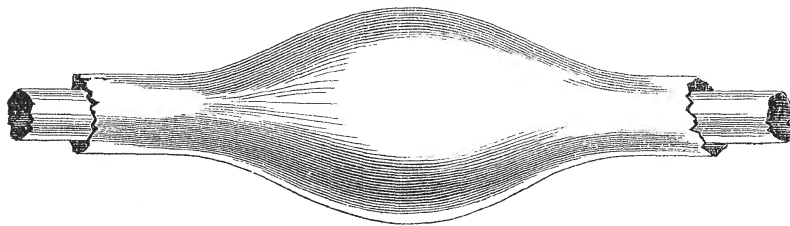


FIGURE 1.15 – Dessin représentant une "hernie" formée lorsque la pression injectée dans un tube en caoutchouc est au-delà du seuil de l'instabilité du ballon, dans l'expérience original de Mallock. D'après [14]

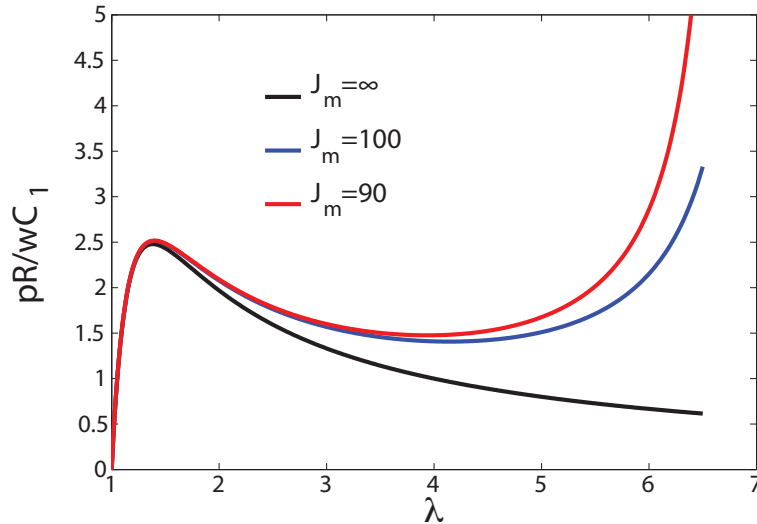


FIGURE 1.16 – Courbe de Pression normalisée en fonction de l'élongation de la membrane dans la géométrie cylindrique pour différents  $J_m$ .

## 1.4 Décollement dans les élastomères

Dans cette partie, nous présentons des travaux effectués sur l'influence du confinement dans des expériences de décollement d'élastomères. On peut observer dans le cas du décollement d'une plaque de module de flexion connu d'un élastomère, une instabilité de digitation interfaciale. Lorsqu'on décolle une plaque rigide, on observe dans un cas de la cavitation dans le volume ou à l'interface verre/élastomère, suivie d'un processus de rupture. Dans un autre cas, lorsque les propriétés du matériau et les rapports d'aspect de l'expérience le permettent, la cavitation ne se produit pas, et l'on observe un phénomène de digitation interfaciale ou, de manière moins courante, dans le volume si des conditions particulières sont réunies.

### 1.4.1 La digitation interfaciale

L'instabilité de digitation interfaciale a été observée expérimentalement pour la première fois en 2000 par Ghatak et *al* [15]. L'expérience consiste à décoller une plaque de verre de module de flexion connu, d'un élastomère solidement collé à un substrat (Fig.1.17a). On initie alors une rupture inter-

faciale. Lorsque cette dernière est refermée, on observe sous certaines conditions la formation de doigts (Fig.1.17b). Ghatak et *al* utilisent un modèle dû à Shenoy et Sharma [62], écrit pour un système analogue, dans lequel le bilan d'énergie peut s'écrire avec un premier terme correspondant à l'énergie élastique dans le film (stabilisante), un deuxième correspondant à l'énergie d'interaction avec la plaque supérieure et un troisième correspondant à l'énergie de surface du film (stabilisante, mais généralement négligeable) :

$$E = \int_V W(\epsilon) dV - \int_S \left( U_0 + F_0 \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} + \frac{1}{2} Y (\mathbf{u} \cdot \mathbf{n})^2 \right) dS + \int_S \gamma \sqrt{1 + (u_{2,1})^2} dS \quad (1.48)$$

où  $W$  est l'énergie élastique en fonction de la déformation  $\epsilon$ ,  $\gamma$  est la tension de surface dans le film,  $\mathbf{u}$  est le vecteur déplacement,  $U$  est l'énergie d'interaction par unité de surface, qui dépend de l'accroissement de gap  $d$  induit par la déformation de la plaque supérieure,  $F_0$  est la force appliquée par la plaque de verre sur le film et  $Y$  le module de flexion du film. En minimisant cette énergie, Shenoy et Sharma font une analyse de stabilité linéaire qui montre que la longueur d'onde de déstabilisation  $\lambda$  ne dépend que de l'épaisseur de l'élastomère. Ils obtiennent  $\lambda = 2.96h$  où  $h$  est l'épaisseur du film. Cependant, le préfacteur est inférieur à celui obtenu dans les expériences de Ghatak et *al* où  $\lambda = 4h$  (Fig.1.18). Par ailleurs, les mêmes résultats expérimentaux sont obtenus lors du décollement [63]. Adda-Bedia et Mahadevan [64] obtiennent théoriquement  $\lambda = 3.4h$  avec une méthode de perturbation à partir de toutes les équations d'élasticité. Ils suggèrent que l'écart relatif obtenu avec les expériences est lié à une approximation faite dans leur modèle qui néglige le glissement à l'interface élastomère/plaque de verre. Ghatak et *al* [63] montrent également expérimentalement que pour un module de flexion de la plaque supérieure  $D$  et un module élastique  $\mu$ , il existe une épaisseur critique  $h_c$  au-delà de laquelle l'instabilité n'est plus observée, telle que  $h_c = (D/\mu)^{1/3}$ .

Une approche plus phénoménologique, sans rentrer dans la résolution de toutes les équations élastiques, a été développée par T. Vilmin [16] en reprenant la théorie de la fracture linéaire de Griffith [65] et des arguments d'échelle et d'énergie, sur une géométrie analogue (dans leur cas le film colle à la plaque flexible, et le décollement se fait à l'interface substrat rigide/film, cf Fig.1.19). L'approche consiste à voir un doigt comme une "bulle" en 2D qui

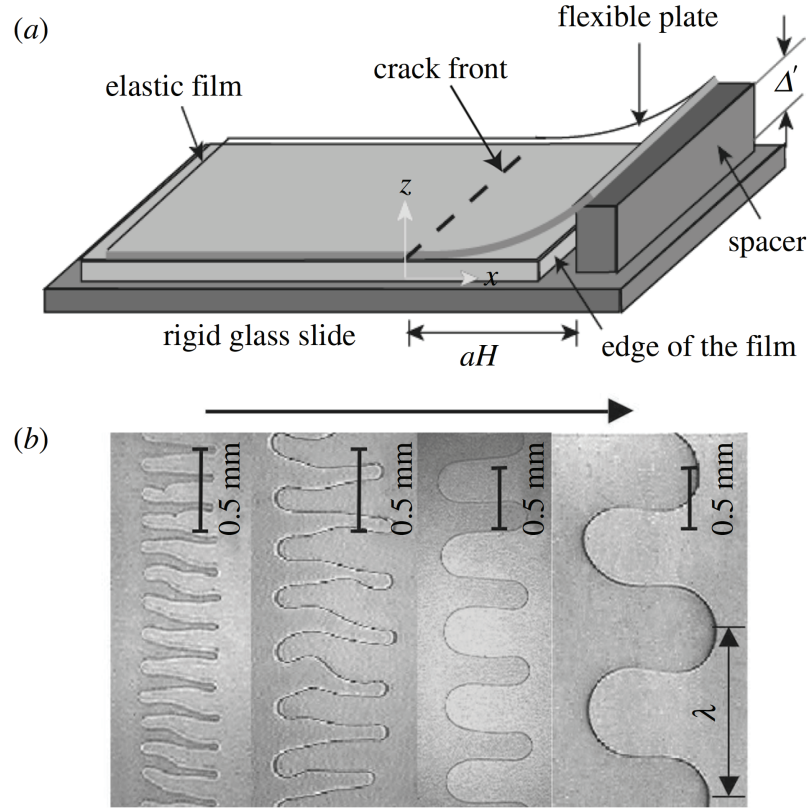


FIGURE 1.17 – Schéma (a) et observation (b) de l'expérience de digitation interfaciale réalisée par Ghatak et al. D'après [15]

s'ouvre lorsqu'on observe le front dans la direction perpendiculaire au sens de pelage (Fig.1.19 droite). On peut alors montrer qu'au-delà d'une déformation critique  $d_c/h$ , liée au rapport entre le travail des forces d'adhésion et l'énergie élastique, la bulle grandit jusqu'à atteindre un rayon  $R$  comparable au gap  $h$ , à partir duquel l'énergie élastique ne peut plus relaxer. L'énergie correspondant à ce système s'écrit alors avec un premier terme correspondant à l'énergie associée à la cavité (zone décollée) et un second terme correspondant à la partie collée, autour de la cavité :

$$f_p = \frac{2R}{\lambda}(\gamma_{FA} + \gamma_{SA}) + \left(1 - \frac{2R}{\lambda}\right) \left(\gamma_{FS} + E \frac{d^2}{h}\right) \Big|_{R=h} \quad (1.49)$$

où  $\gamma_{FA}$  est l'énergie d'interface film/air,  $\gamma_{SA}$  est l'énergie d'interface substrat/air,  $R$  est le rayon de la cavité,  $\gamma_{FS}$  est l'énergie d'interface film/substrat

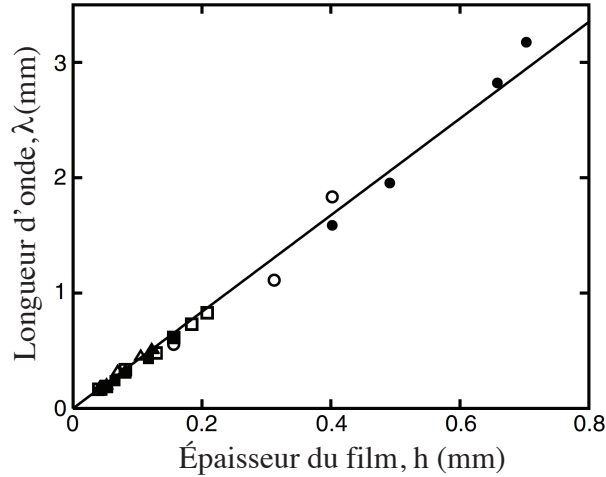


FIGURE 1.18 – Relation linéaire mesurée pour la longueur d'onde de l'instabilité de digitation interfaciale quand l'épaisseur  $h$  du film varie. D'après [15]

et  $d$  l'accroissement d'épaisseur tel que la déformation subie par le film soit  $d/h$ . Le terme  $E \frac{d^2}{h}$  correspond à l'énergie élastique apportée pour créer une cavité. Il doit être égal à l'énergie qu'on devrait apporter pour créer la même cavité en déformant l'élastomère non sollicité (Fig.1.19 droite). On a donc :

$$E \left( \frac{d}{h} \right)^2 h \approx E \left( \frac{H}{2R} \right)^2 R \quad (1.50)$$

où  $H$  est la hauteur de la cavité et  $R$  sont rayon, comme indiqué sur la figure 1.19 (droite). Or, par conservation du volume, on doit avoir :

$$H(2R) = \lambda d \quad (1.51)$$

soit d'après l'équation 1.50 :

$$\frac{d^2}{h} = \frac{\lambda^2 d^2}{16R^3} \quad (1.52)$$

Ils obtiennent alors  $\lambda \sim 4h$ , qui est un bon ordre de grandeur, en précisant toutefois que l'utilisation d'arguments d'échelle ne permet pas d'obtenir des

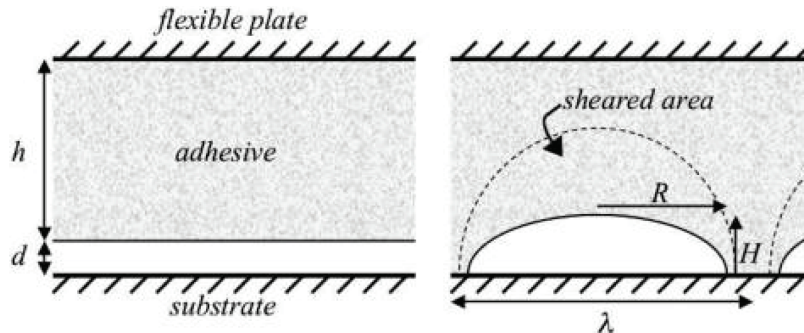


FIGURE 1.19 – Schéma représentant la modélisation du problème de la digitation interfaciale, adoptée par Vilmin et al. D'après [16]

préfacteurs physiquement significatifs. L'apparent très bon accord est "accidentel". Ils expliquent ainsi avec des arguments simples que l'unique paramètre  $h$  dont dépend la longueur d'onde s'explique par l'incompressibilité du film et par le fait que la bulle ne peut pas avoir une taille supérieure à  $h$  car au-delà de cette taille caractéristique, les contraintes ne peuvent plus être relaxées. Ils expliquent également la digitation, en montrant que pour les grandes valeurs d'un paramètre de confinement  $K = D/(Eh^3)$ , l'énergie élastique calculée pour un front qui digite est inférieure à l'énergie élastique calculée pour un front plan. Ils montrent que lorsque  $K$  devient comparable à 1, c'est-à-dire  $h = h_c$  pour  $E$  et  $D$  donnés, les énergies deviennent comparables et la digitation disparaît. Cet effet peut s'expliquer par l'incompressibilité du film. En effet, elle induit, pour un front plan, un cisaillement dans la même direction que l'avancée du front qui, pour des  $K$  élevés, coûte plus cher que de faire des doigts, i.e. que de faire un cisaillement dans la direction perpendiculaire à l'avancée du front. Ils retrouvent bien le scaling vérifié expérimentalement par Ghatak,  $h_c \sim (D/E)^{1/3}$ . Dans ce modèle, ils obtiennent aussi une estimation de la longueur des doigts,  $L_f \sim hK^{1/4}$ , qui n'est pas possible avec un calcul à partir des équations d'élasticités complètes.

#### 1.4.2 De la cavitation vers la digitation sous confinement

Dans le cas où la plaque supérieure devient infiniment rigide et où le système reste confiné, on observe, selon les cas, différentes réponses. On peut observer de la cavitation au milieu de l'échantillon sollicité [66] [67], ou de la digitation se propageant des bords [68] [69] [18]. La cavitation correspond

à la croissance de bulle d'air à pression négative dans le matériau. Elle peut croître dans le volume de l'élastomère ou bien à l'interface avec le verre, notamment lorsque des défauts initialement à pression atmosphérique sont présents (microbulles). C'est généralement le cas dans les expériences classiques de désadhésion. Une revue de Shull et Creton [17] propose une description unifiée de tous ces phénomènes, dont on donne ici un bref résumé.

La géométrie de confinement classique utilisée, consiste en un substrat recouvert d'un film sur lequel un indenteur mobile est amené au contact. Ce dernier peut alors être écarté à déplacement contrôlé. On choisit l'écart initial substrat/indenteur,  $h$ , qui correspond à l'épaisseur du film (Fig.1.20) ainsi que les dimensions dans le plan de l'échantillon. Pour des raisons pratiques, ces expériences sont toutes en géométrie circulaire. On peut définir un paramètre de confinement  $a_0/h_0$ , où  $a_0$  est le rayon initial du film. La cavitation peut aussi bien être observée dans le cas d'un film liquide que dans le cas d'un film solide. Pour les solides, la pression  $p$  appliquée par l'indenteur dans une cavité sphérique de rayon et pression initiale  $R_0$  et  $p_0$ , peut s'écrire de la forme :

$$p = \frac{p_0}{\epsilon_r^3} - \frac{2\gamma}{\epsilon_r R_0} - p_{el}(\epsilon_r) \quad (1.53)$$

où le rapport d'extension  $\epsilon_r$  est égal à  $R_c/R_0$  avec  $R_c$  le rayon de la cavité.  $\gamma$  est la tension de surface film/air, le deuxième terme correspond donc à la pression de Laplace, qui s'oppose à la croissance de la cavité. Le troisième terme correspond à la contribution élastique dans la pression d'inflation. Autrement dit,  $p$  correspond à la pression à appliquer pour compenser la somme des

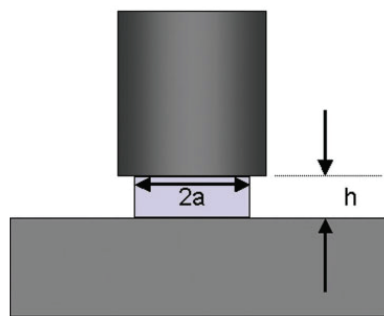


FIGURE 1.20 – Schéma représentant une expérience typique de décollement. La section est circulaire. D'après [17]

pressions de Laplace et élastique qui s'opposent à la croissance de la cavité. Le terme  $p_{el}$  dépend fortement de la loi constitutive des élastomères. Une loi communément employée, qui décrit bien la réalité pour des élastomères caoutchoutiques, est la loi néo-Hookéenne (nous y reviendrons au chapitre 2. Gent et al [66] montrent que  $p_{el}$  peut dans ce cas s'écrire :

$$p_{el} = E f_{el}(\epsilon_r) \quad f_{el}(\epsilon_r) = \frac{1}{6} \left( 5 - \frac{4}{\epsilon_r} - \frac{1}{\epsilon_r^4} \right) \quad (1.54)$$

soit

$$p = \frac{p_0}{\epsilon_r^3} - \frac{2\gamma}{\epsilon_r R_0} - E f_{el}(\epsilon_r) \quad (1.55)$$

On voit dans cette relation qu'en fonction du poids relatif du terme élastique, différents régimes de réponse du matériau peuvent se produire. Pour les distinguer, on peut définir deux nombres sans dimension. Le premier,  $\gamma/ER_0$  sépare un régime contrôlé par l'énergie de surface, et un régime contrôlé par l'élasticité. Le second  $p_0/E$  sépare des régimes de compressibilité et d'incompressibilité du gaz emprisonné dans la cavité, initialement à pression  $p_0$ . Ainsi pour des petites valeurs de  $p_0/E$ , l'air est compressible et la cavitation favorisée, car l'énergie élastique apportée pour faire croître la bulle est bien supérieure à la pression initiale, qui s'y oppose. En revanche, dans le cas où  $p_0/E$  est élevé, on observe plutôt de la digitation, comme on va le voir par la suite. D'autre part le paramètre de confinement  $a_0/h_0$  a également son importance. Il doit être suffisamment grand pour observer la cavitation alors qu'il doit être relativement petit pour observer la digitation. Cependant, pour des rapports d'aspect inférieurs à 2, on observe un simple décollement sans digitation.

Considérons d'abord le cas où  $p_0/E$  est petit et  $a_0/h_0$  est grand. Pour un petit  $\gamma/ER_0$ , la contribution à la pression d'origine élastique domine. La relation constitutive non linéaire, néo-Hookéenne, choisie pour le matériau (cf. Eq.1.54), a pour conséquence une divergence de  $\epsilon_r$  à partir d'une valeur de pression égale à  $5E/6$  [17]. On nucléé donc rapidement des cavités à partir de ce seuil. C'est un phénomène analogue à l'instabilité du "ballon" dans laquelle la membrane se déforme violemment lorsqu'on souffle à pression constante et qu'on dépasse le seuil (cf. partie 1.3).

Lorsque maintenant  $\gamma/ER_0$  est grand (un seuil égal à  $1/3$  est donné dans la littérature) le terme de Laplace dans l'équation 1.55 devient non négligeable,



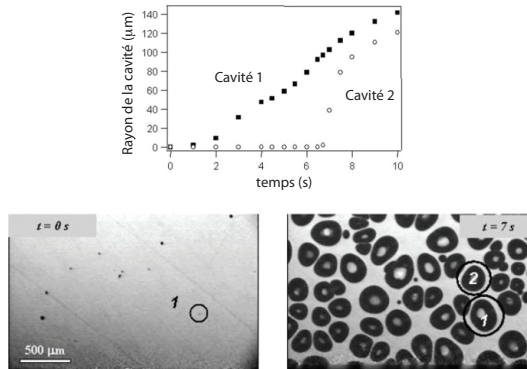


FIGURE 1.21 – Augmentation du rayon de la cavité en fonction du temps pour une grande cavité (1) et pour une petite cavité (2), la pression de Laplace à une plus grande influence. D'après [17]

voire prépondérant. Pour faire croître une cavité, il faut alors le vaincre. La contribution de ce terme dépend fortement du rayon de courbure de la cavité. Ainsi dans un même échantillon, on pourra voir croître des bulles de différentes tailles initiales à des vitesses et à des moments différents. Sur la figure 1.21, on voit que pour deux cavités de tailles initiales distinctes, la croissance diffère. Pour une bulle de plus petit rayon initial (bulle 2 invisible sur la figure 1.21), au début de la sollicitation, elle ne croît pas, car la contrainte élastique n'est pas suffisante pour compenser la pression de Laplace. Dès que la pression élastique atteint un seuil ou que ce rapport s'inverse, l'élasticité reprend le dessus et l'on observe l'expansion de la bulle comme dans le régime élastique. Dans le cas de la bulle 1 de la figure 1.21, la pression de Laplace a une influence moins radicale, mais elle empêche la divergence élastique d'être visible tout de suite, il y a un stade de croissance à vitesse lente. Dans tous les cas, quand la force de Laplace finit par être négligeable, les bulles croissent rapidement et l'échantillon casse. Cette expansion passe par un premier régime de croissance de la contrainte, suivie par un régime où, après avoir atteint un maximum, elle décroît, montrant ainsi qu'un processus de rupture est initié. Cette décroissance se poursuit ensuite jusqu'à zéro, en passant selon les cas par une décroissance rapide, un plateau, ou un second maximum, selon les propriétés de rupture du matériau (Fig. 1.22). En effet, dans le cas où les cavités formées peuvent coalescer, le matériau casse dès le premier maximum. En revanche, si elles sont suffisamment émoussées, la coalescence n'a pas lieu et les espaces entre cavités,

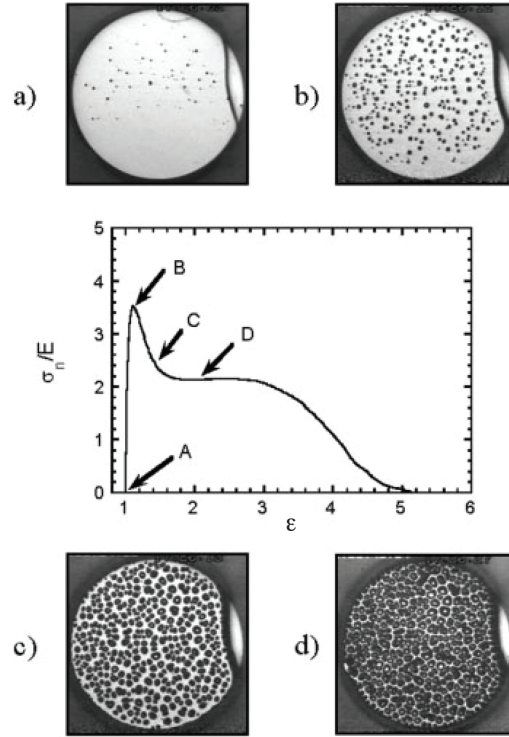


FIGURE 1.22 – Observation de la cavitation pour de très grands confinements, à différentes étapes de la sollicitation. La courbe centrale donne l'évolution de la contrainte normalisée en fonction du déplacement imposé. Les images correspondent à différentes étapes de cette courbe. ( $E = 0.2 \text{ MPa}$ ,  $a_0 = 3000 \mu\text{m}$  et  $h_0 = 125 \mu\text{m}$ ). D'après [17]

que l'on peut voir comme des fibrilles, peuvent à leur tour se déformer en élongation pure et résister à la rupture, jusqu'à un nouveau seuil (Fig.1.23).

Quel que soit le régime, les auteurs expliquent l'apparition de la cavitation comme étant liée au fait qu'elle permet de minimiser la compliance, définie comme le rapport déformation du film sur contrainte appliquée à l'indenteur. Cette minimisation serait possible en localisant les déformations autour des cavités. Ceci est bien visible sur les courbes de contrainte/élongations où l'on voit que l'apparition de cavités fait décroître la contrainte en fonction de l'élongation, mais il n'y a pas d'explication physique satisfaisante de ce mécanisme.

Dans le cas où  $a_0/h_0$  est petit et où  $p_0/E$  est grand, l'air emprisonné dans

les défauts ne peut pas être dilaté, vu la trop faible valeur de  $E$  et donc de l'énergie élastique associée à l'échantillon. On observe alors de la digitation interfaciale, qualitativement identique à celle observée dans la géométrie de pelage présentée en 1.4.1 [15], à ceci près que la plaque supérieure est maintenant de rigidité infinie. Comme dans le cas de la cavitation, si l'on regarde l'évolution de la contrainte en fonction de l'élongation, on observe une croissance jusqu'à un maximum, correspondant au début de la croissance de la digitation interfaciale, suivie par une décroissance soudaine, montrant qu'un processus de rupture est à l'oeuvre. On peut également observer par la suite un régime de déformation de fibrille, comme dans la cavitation, suivi ensuite par une rupture totale de l'échantillon (Fig.1.24).

Lorsque la forme de l'indenteur est hémisphérique et l'adhésion avec ce dernier améliorée, les auteurs rapportent que pour de faibles modules, de la digitation en volume peut être observée [18]. Nous développons cet aspect dans la partie suivante.

### 1.4.3 La digitation en volume

La forme hémisphérique de l'indenteur a pour conséquence de minimiser les concentrations de contraintes au niveau de ses bords. Cela permet, pour un même échantillon, de défavoriser la fracture interfaciale, par rapport à une déformation en volume. Si le module élastique est suffisamment bas (typiquement  $10^4\text{Pa}$ ) et le rapport  $a_0/h_0$  suffisamment élevé ( $> 2.5$ ), mais loin

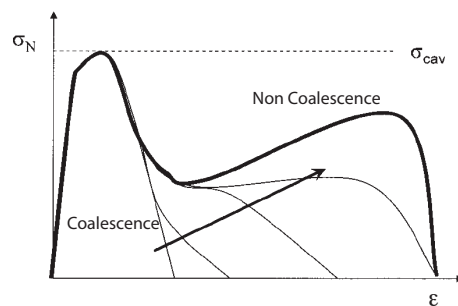


FIGURE 1.23 – Schéma représentant les différents comportements en contrainte, observés en fonction de la coalescence ou non des cavités, lorsqu'on contrôle le déplacement. D'après [17]

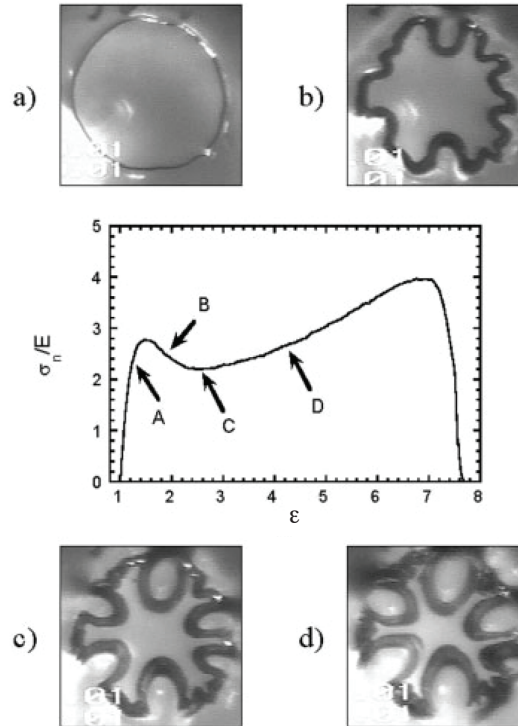


FIGURE 1.24 – Observation de la digitation interfaciale pour un faible confinement avec un indenteur hémisphérique ( $E = 10^5 \text{ Pa}$ ,  $a_0 = 215 \mu\text{m}$  et  $h_0 = 73 \mu\text{m}$ ). D’après [17].

du régime de cavitation, on peut déformer le film en gardant une surface de contact film/indenteur constante. On constate alors que l’interface air/gel n’avance pas de manière homogène, mais plutôt en formant des doigts dans le volume du film déformé.

Les auteurs n’offrent pas de visualisation directe du phénomène, mais montrent que cette digitation est réversible, mettant ainsi en évidence qu’il s’agit d’une déformation élastique, sans rupture, et qui donc doit se propager en volume (Fig. 1.25). La courbe de réversibilité (contrainte en fonction de l’élongation  $\epsilon$ ) ne montre aucune hysteresis, l’aller se superpose parfaitement avec le retour.

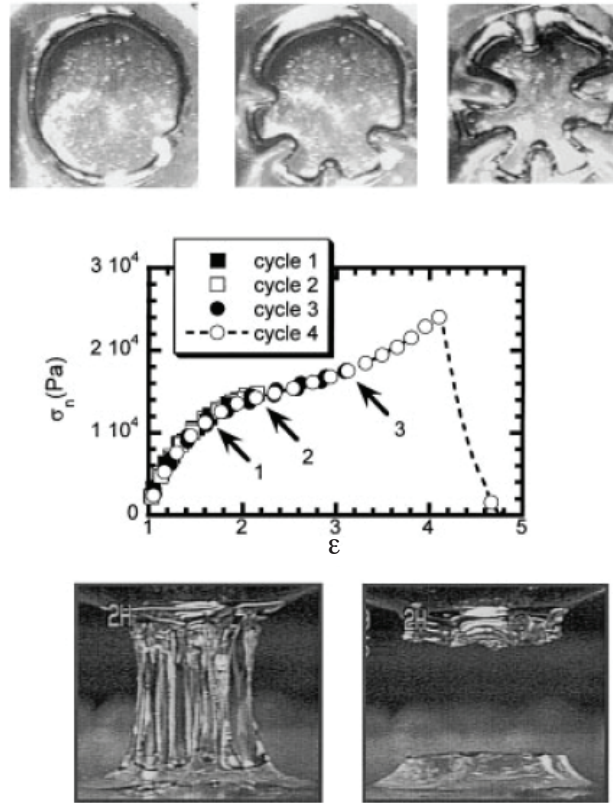


FIGURE 1.25 – Observation de la digitation en volume dans une expérience de décollement avec un indenteur hémisphérique.  $a_0/h_0 = 5$ . D'après [18].

#### 1.4.4 Élasticité et tension de surface

On a vu que dans le cas de la digitation visqueuse, la tension de surface joue un rôle crucial. C'est en fait le cas pour beaucoup d'instabilités mettant en jeu des fluides non miscibles. On peut citer comme autre exemple l'instabilité de Plateau-Rayleigh [70, 71] dans laquelle on fait couler un fluide visqueux sur une fibre. On observe alors que pour des fluides de viscosité suffisamment faible, ces derniers n'enveloppent pas la fibre de manière cylindrique, mais se déstabilisent pour former des gouttes (Fig.1.26(a)). Cela s'explique simplement par le fait qu'une telle déstabilisation permet de diminuer la surface, ce qui est favorable du point de vue de la tension de surface. On a ici l'exemple d'une instabilité où la tension de surface est responsable de

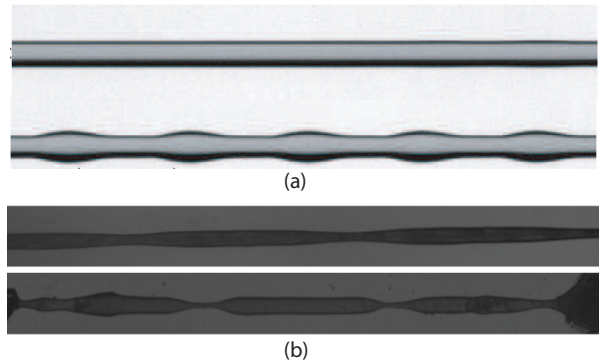


FIGURE 1.26 – (a) : Observation de l’instabilité de Plateau-Rayleigh dans un fluide visqueux. D’après [19]. (b) : Observation de l’instabilité de Plateau-Rayleigh dans un matériau élastique. D’après [20]

la déstabilisation, contrairement au cas de Saffman-Taylor où elle est plutôt stabilisante.

On a vu dans toutes les instabilités élastiques d’interface que nous avons présentées, qu’on ne tient pas du tout compte de la tension de surface, hormis dans le cas de la cavitation pour certains paramètres. Mais dans le cadre d’une étude où on s’intéresse aux transitions liquide/solide, où les matériaux peuvent avoir des modules très faibles, il est pertinent de se demander quelle influence la tension de surface peut avoir sur la forme des objets élastiques. Mora et *al* montrent qu’en reproduisant l’expérience de Plateau-Rayleigh avec un gel purement élastique de très bas module, on peut observer l’instabilité de perlement [20] (Fig.1.26(b)). Ce travail montre que la tension de surface des solides peut avoir un impact direct sur la morphologie des interfaces. L’échelle de longueur pertinente est dans ce cas là donnée par la relation :

$$l_{ec} = \frac{\gamma}{E} \quad (1.56)$$

où  $\gamma$  est la tension de surface entre le solide et son milieu environnant et  $E$  son module élastique. Dans l’expérience de Mora et *al*, les longueurs élasto-capillaires typiques sont de l’ordre du millimètre, échelle largement dans le domaine d’observation. Pour atteindre de telles valeurs, la tension de surface ne variant peu d’un matériau à l’autre, les modules élastiques doivent être très faibles. Les auteurs travaillent typiquement avec des gels de module 10 – 30 Pa, bien en-deçà des matériaux habituellement utilisés dans

les expériences sur des élastomères.

# Chapitre 2

## Rhéologie et digitation dans les fluides complexes

Nous présentons dans une première partie de ce chapitre une description succincte des comportements rhéologiques rencontrés dans la majorité des matériaux complexes. Dans une seconde partie nous présentons une revue des observations expérimentales faites en cellule Hele-Shaw, ou en décollement confiné, sur de tels systèmes.

### 2.1 Comportement mécanique des liquides visqueux

#### 2.1.1 Réponse linéaire : les fluides Newtoniens

La loi de comportement la plus simple pour décrire un fluide est la loi de Newton [55]. Elle relie la contrainte  $\sigma$ , associée à l'écoulement, à son taux de déformation  $\dot{\gamma}$ , par l'intermédiaire d'une relation linéaire :

$$\sigma = \eta \dot{\gamma} \tag{2.1}$$

où  $\eta$  est la viscosité dynamique du fluide, mesurée en Pa.s.

Cette relation très simple s'applique à une classe de fluides qu'on appelle liquides Newtoniens. Cette relation implique que de tels fluides répondent au cisaillement de manière instantanée. Le fluide Newtonien subit des déformations permanentes et irréversibles : il dissipe l'énergie injectée pour se mettre en mouvement. Cette modélisation est réaliste pour un certain nombre de



fluides, comme par exemple l'eau ou certaines huiles silicones. En réalité, de nombreux effets non-linéaires peuvent entrer en jeu dans le comportement des liquides. La loi de Newton ne s'applique en général que pour une certaine gamme de sollicitations.

### 2.1.2 Réponse non linéaire

Parmi les effets non-linéaires qui peuvent entrer en jeu, le plus courant, associé à la réponse liquide d'un matériau, est la viscosité non-linéaire. Cette dernière, a la propriété d'évoluer avec le cisaillement imposé. Lorsque la viscosité diminue avec le taux de cisaillement, on parle de rhéofluidification, tandis que lorsqu'elle augmente, on parle de rhéoépaississement.

La rhéofluidification est cependant beaucoup plus courante. On peut citer comme exemples les suspensions de particules solides lorsqu'elles ne sont pas trop diluées [55], ou les solutions de polymères rigides [22]. Une vision très simpliste, et souvent à l'origine de ce mécanisme, est que sous écoulement, les particules se réorganisent d'une manière plus favorable. Très souvent, en régime stationnaire (cisaillement continu), les fluides viscoélastiques possèdent également cette propriété.

Plus rare, le rhéoépaississement est observé lorsqu'au contraire, le cisaillement induit de l'encombrement stérique qui s'oppose au mouvement. L'exemple le plus courant est la Maïzena. On peut aussi observer ce type de comportement dans des régimes très particuliers de sollicitation. Ainsi, dans certaines solutions de micelles géantes, il est possible d'avoir un régime de rhéofluidification, mais aussi un régime de rhéoépaississement.

En général, à très bas cisaillement, les liquides rhéofluidifiants se comportent comme des liquides newtoniens. On définit alors une viscosité à bas cisaillement  $\eta_0$ . Vient ensuite un régime où la viscosité décroît, puis elle atteint à nouveau un plateau aux très grands cisaillements à une valeur  $\eta_\infty$ . Le régime de décroissance est en général assez bien décrit par le modèle d'Ostwald de Waele [55]. Ce modèle décrit une décroissance de la viscosité en loi de puissance :

$$\eta(\dot{\gamma}) = k_1 \dot{\gamma}^{n-1} \quad (2.2)$$

où  $k_1$  et  $n$  sont des paramètres du fluide. On donne un exemple de courbe de viscosité en fonction du taux de cisaillement pour un liquide rhéofluidifiant

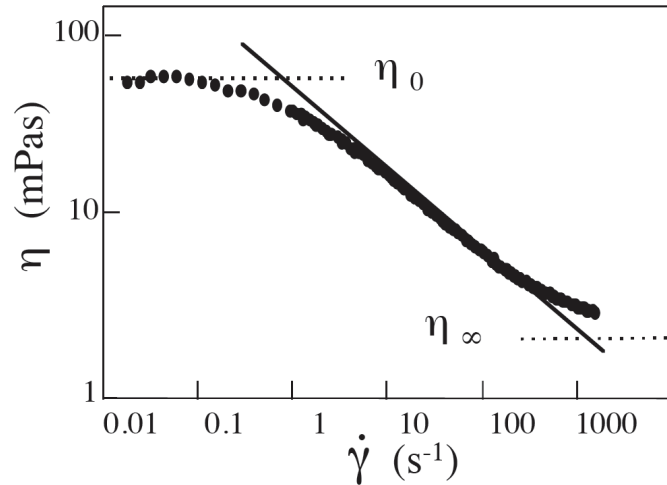


FIGURE 2.1 – Viscosité non-newtonienne  $\eta$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour une solution de Xanthane (polymère rigide) à 500ppm. À bas cisaillement, la viscosité est constante avec une valeur  $\eta_0$ . Pour des cisaillements plus élevés,  $\eta$  décroît avec  $\dot{\gamma}$  en suivant une loi de puissance de type Ostwald de Waele (trait solide). Pour des valeurs plus élevées, la viscosité est à nouveau stabilisée à  $\eta_\infty$ . D'après [21].

en figure 2.1.

## 2.2 Comportement mécanique des solides élastiques

Après avoir rappelé les divers comportements fluides que nous avons rencontrés au cours de cette thèse, nous allons maintenant rappeler quelques résultats sur les solides élastiques, sur lesquels nous avons également travaillé.

### 2.2.1 Réponses aux petites déformations

#### 2.2.1.1 Tenseur linéarisé des déformations

Nous allons maintenant exprimer le tenseur des déformations dans le cas des petites déformations [54]. On considère un point quelconque M d'un

corps élastique, de rayon vecteur  $\mathbf{r}$ , de composantes  $x_1$  selon  $x$ ,  $x_2$  selon  $y$  et  $x_3$  selon  $z$ . Lorsque le corps se déforme, ce point se déplace jusqu'en  $M'$ , de rayon vecteur  $\mathbf{r}'$ , tel que :

$$\boldsymbol{\epsilon} = \mathbf{r} - \mathbf{r}' \quad (2.3)$$

Au cours de la déformation, la distance entre deux points infiniment proches varie. Si  $dx_i$  est le rayon vecteur entre ces deux points avant la déformation, alors il devient  $dx'_i = dx_i + d\epsilon$ . De même, la distance entre les deux points, exprimée avant la déformation par :

$$dl = \sqrt{dx_1^2 + dx_2^2 + dx_3^2} \quad (2.4)$$

devient après la déformation :

$$dl' = \sqrt{dx_1'^2 + dx_2'^2 + dx_3'^2} \quad (2.5)$$

Pour simplifier les notations, on écrit :

$$dl^2 = dx_1^2 + dx_2^2 + dx_3^2 = dx_i^2 \quad (2.6)$$

on a donc :

$$dl'^2 = dx_i'^2 = (dx_i + d\epsilon)^2 \quad (2.7)$$

$d\epsilon$  peut s'exprimer de la façon suivante :

$$d\epsilon_i = \frac{\partial \epsilon_i}{\partial x_k} dx_k \quad (2.8)$$

dont on déduit :

$$dl'^2 = dl^2 + 2 \frac{\partial \epsilon_i}{\partial x_k} dx_i dx_k + \frac{\partial \epsilon_i}{\partial x_k} \frac{\partial \epsilon_i}{\partial x_l} dx_k dx_l \quad (2.9)$$

Cette relation se simplifie au final sous la forme :

$$\epsilon_{ik} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial \epsilon_i}{\partial x_k} + \frac{\partial \epsilon_k}{\partial x_i} + \frac{\partial \epsilon_l}{\partial x_i} \frac{\partial \epsilon_l}{\partial x_k} \right) \quad (2.10)$$

$\epsilon_{ik}$  correspond au tenseur des déformations. On voit que cette expression, exacte, fait intervenir un terme non linéaire (le troisième). Cette expression peut donc se simplifier en négligeant ce terme, si les déformations peuvent être considérées comme petites ( $\ll 1$ ). En revanche, dans le cas des plus

grandes déformations, on verra que cette expression ne peut plus se simplifier de la même manière. Il faudra tenir compte des non-linéarités. En petites déformations, l'équation 2.10 se réécrit :

$$\epsilon_{ik} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial \epsilon_i}{\partial x_k} + \frac{\partial \epsilon_k}{\partial x_i} \right) \quad (2.11)$$

en faisant un développement limité sur l'allongement (équation 2.9), et comme le tenseur des déformations  $\bar{\epsilon}$  est symétrique, on déduit l'expression :

$$dl'^2 = (1 + 2u_{11})dx_1^2 + (1 + 2u_{22})dx_2^2 + (1 + 2u_{33})dx_3^2 \quad (2.12)$$

La linéarisation implique alors :

$$\sqrt{1 + 2\epsilon_{ii}} - 1 \simeq \epsilon_{ii} \quad (2.13)$$

On voit donc que les allongements relatifs coïncident avec les valeurs principales de  $\bar{\epsilon}$ . De cette relation découle la loi de Hooke, que nous allons maintenant décrire.

### 2.2.1.2 Loi de Hooke

La loi la plus simple pour décrire les solides élastiques est la loi de Hooke. Elle se déduit de la thermodynamique de la déformation, car, pour des petites déformations, on peut développer la densité d'énergie élastique  $W$  au deuxième ordre en  $\bar{\epsilon}$  :

$$W = \frac{\lambda}{2} \epsilon_{ii}^2 + G \epsilon_{ik}^2 \quad (2.14)$$

où  $\lambda$  et  $G$  sont les coefficients de Lamé, respectivement premier coefficient de Lamé et module de cisaillement. Notons que l'on peut relier ces coefficients au module d'Young  $E$  et au module de Poisson  $\nu$  par les relations  $\nu = \lambda/2(\lambda + G)$  et  $E = G(3\lambda + 2G)/(\lambda + G)$ , et que pour un matériau incompressible  $\nu$  vaut 1/2, et  $\lambda$  est infini.

On en déduit la loi de Hooke, qui lie contraintes et déformations de façon linéaire lorsque ces dernières sont petites :

$$\epsilon_{ik} = \frac{1}{9\kappa} \delta_{ik} \sigma_{ll} + \frac{1}{2G} \left( \sigma_{ik} - \frac{1}{3} \delta_{ik} \sigma_{ll} \right) \quad (2.15)$$

où l'on a introduit le module de compression  $\kappa = \lambda + 2G/3$ .

Bien que plus compliquée parce qu'elle fait intervenir des tenseurs, la loi de Hooke est du même type que celle décrivant le mouvement d'un ressort. Si on relâche la contrainte imposée à un solide élastique, celui-ci retrouve sa forme initiale : on dit qu'il stocke puis restitue l'énergie. Contrairement au cas du liquide Newtonien (et même au cas des liquides en général), la déformation d'un solide de Hooke est réversible. En ce sens elle décrit la propriété fondamentale de réversibilité des déformations propre aux matériaux purements élastiques. Comme dans le cas du fluide Newtonien, cette loi constitutive implique que le matériau répond instantanément à une sollicitation. Il existe aussi des solides viscoélastiques, pour lesquels la déformation suit l'application d'une contrainte avec un décalage temporel, mais nous ne les décrirons pas ici.

L'équation 2.15 peut s'écrire de façon explicite avec le système d'équations suivant :

$$\epsilon_{xx} = \frac{1}{E} [\sigma_{xx} + \nu(\sigma_{yy} + \epsilon_{zz})] \quad (2.16)$$

$$\epsilon_{yy} = \frac{1}{E} [\sigma_{yy} + \nu(\sigma_{xx} + \epsilon_{zz})] \quad (2.17)$$

$$\epsilon_{zz} = \frac{1}{E} [\sigma_{zz} + \nu(\sigma_{xx} + \epsilon_{yy})] \quad (2.18)$$

$$\epsilon_{xy} = \frac{1 + \nu}{E} \sigma_{xy} \quad (2.19)$$

$$\epsilon_{xz} = \frac{1 + \nu}{E} \sigma_{xz} \quad (2.20)$$

$$\epsilon_{yz} = \frac{1 + \nu}{E} \sigma_{yz} \quad (2.21)$$

Si le matériau est compressible, ce système d'équations peut s'inverser pour donner :

$$\sigma_{xx} = \frac{E}{(1 + \nu)(1 - 2\nu)} [(1 - \nu)\epsilon_{xx} + \nu(\epsilon_{yy} + \epsilon_{zz})] \quad (2.22)$$

$$\sigma_{yy} = \frac{E}{(1 + \nu)(1 - 2\nu)} [(1 - \nu)\epsilon_{yy} + \nu(\epsilon_{xx} + \epsilon_{zz})] \quad (2.23)$$

$$\sigma_{zz} = \frac{E}{(1 + \nu)(1 - 2\nu)} [(1 - \nu)\epsilon_{zz} + \nu(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy})] \quad (2.24)$$

$$\sigma_{xy} = \frac{E}{1 + \nu} \epsilon_{xy} \quad (2.25)$$

$$\sigma_{xz} = \frac{E}{1 + \nu} \epsilon_{xz} \quad (2.26)$$

$$\sigma_{yz} = \frac{E}{1 + \nu} \epsilon_{yz} \quad (2.27)$$

Pour  $\nu = 1/2$ , ce système d'équations est sous-déterminé (son déterminant est nul), et on aura seulement accès aux différences de contrainte. Cette indétermination se retrouvera en hyperélasticité, comme nous le verrons dans la partie suivante. Ce sont les conditions aux limites du problème qui permettent, en général, de lever l'indétermination.

### 2.2.2 Réponse aux grandes déformations

Dans le cas des grandes déformations, on sort du cadre de l'élasticité linéaire, et il faut reprendre le calcul du tenseur des déformations donné par l'équation 2.10, en tenant compte des non-linéarités [72]. Le modèle le plus simple pour une telle description, est le modèle néo-Hookéen, développé par Ronald Rivlin en 1948 pour décrire la réponse de gels polymériques réticulés, très déformables [73]. Ce modèle est basé sur une description de ces matériaux en termes de physique statistique. Le comportement des polymères est en général bien décrit par ce modèle jusqu'à environ 20%. Au-delà il n'est plus très réaliste, car il ne tient pas compte de l'augmentation du module élastique, due à un étirement des chaînes polymériques au-delà de ce qui est permis par les réticulations covalentes. Il est d'autre part inadapté à la description des sollicitations biaxiales, pour lesquelles le modèle de Mooney-Rivlin (toujours néo-Hookéen) lui est préféré. Nous utiliserons plus loin le modèle de Gent [74], qui en est une adaptation simplifiée, pour décrire une instabilité hyperélastique classique, dite "instabilité du ballon". Cette théorie a été développée dans le cas des matériaux compressibles et incompressibles. Nous nous intéresserons uniquement à ce dernier cas.

Dans le cadre du modèle de Rivlin, et pour un matériau incompressible, la densité d'énergie élastique (équation 2.14) peut s'écrire :

$$W = C_1(I_1 - 3) \quad (2.28)$$

où  $C_1$  est une constante du matériau, et où :

$$I_1 = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 \quad (2.29)$$

où les  $\lambda_i$  ( $i=1,2,3$ ) sont les facteurs d'élongation (longueur déformée sur longueur initiale) dans les directions principales (le long des directions propres du tenseur des contraintes).

C'est la similitude entre l'équation 2.28 et l'expression de la densité volumique d'énergie en élasticité linéaire qui vaut à ce modèle la dénomination

“néo-Hookéen”.

Supposons maintenant, pour simplifier, qu'on a une élongation uniquement dans la direction 1.  $W$  est le travail de la force  $f_1$  appliquée le long de l'axe 1 lorsqu'on applique une élongation  $\lambda_1$  dans cette direction :  $W = f_1 d\lambda_1$ . La contrainte  $\sigma_1$ , dite "de Cauchy", correspondante est égale, par définition, à  $f_1$  divisée par la surface déformée, qui l'est d'un facteur  $1/\lambda_1$  puisque le matériau est incompressible. Soit :

$$\sigma_1 = \lambda_1 \frac{\partial W}{\partial \lambda_1} + \Pi \quad (2.30)$$

où  $\Pi$  est une pression hydrostatique qu'on détermine à partir des conditions aux limites (comme en linéaire, cette pression est nécessaire du fait de l'indétermination du système d'équation, associé à l'incompressibilité).

Dans le cas général, on peut montrer qu'on a des différences de contraintes de Cauchy de la forme :

$$\sigma_{11} - \sigma_{33} = \lambda_1 \frac{\partial W}{\partial \lambda_1} - \lambda_3 \frac{\partial W}{\partial \lambda_3} \quad (2.31)$$

$$\sigma_{22} - \sigma_{33} = \lambda_2 \frac{\partial W}{\partial \lambda_2} - \lambda_3 \frac{\partial W}{\partial \lambda_3} \quad (2.32)$$

Or, puisque le matériau est incompressible :

$$\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 = 1 \quad (2.33)$$

En utilisant cette relation et les équations 2.28 et 2.29, on montre facilement que :

$$\frac{\partial W}{\partial \lambda_i} = 2C_i \lambda_i \quad (i = 1, 2, 3) \quad (2.34)$$

ce qui donne :

$$\sigma_{11} - \sigma_{33} = 2C_1(\lambda_1^2 - \lambda_3^2) \quad (2.35)$$

$$\sigma_{22} - \sigma_{33} = 2C_1(\lambda_2^2 - \lambda_3^2) \quad (2.36)$$

Ces équations peuvent s'écrire sous une forme plus condensée :

$$\bar{\sigma} = \Pi \bar{\mathbb{1}} + 2C_1 \bar{\bar{F}} \cdot \bar{\bar{F}}^T \quad (2.37)$$

où  $\bar{\bar{F}}$  est le tenseur des gradients de déformation i.e. des élongations.

Calculons maintenant les contraintes uniaxiales. On pose  $\lambda_1 = \lambda$  dans la direction d'élongation. On a alors, nécessairement :  $\lambda_2 = \lambda_3 = 1/\sqrt{\lambda}$ . Si l'on suppose que  $\sigma_{22} = \sigma_{33} = 0$ , alors l'équation 2.36 donne :

$$\sigma_{11} = 2C_1\left(\lambda^2 - \frac{1}{\lambda}\right) = 2C_1\left(\frac{3\epsilon_{11} + 3\epsilon_{11}^2 + \epsilon_{11}^3}{1 + \epsilon_{11}}\right) \quad (2.38)$$

où  $\epsilon_{11} = \lambda - 1$ . On remarque que pour une petite déformation  $\epsilon_{11} \ll 1$ , l'équation ci-dessus se réduit à :

$$\sigma_{11} = 6C_1\epsilon_{11} = 3G\epsilon_{11} \quad (2.39)$$

c'est-à-dire à la loi de Hooke pour une déformation uniaxiale,  $3G = E$  étant le module d'Young du matériau (relation valable quand  $\nu = 1/2$ , c'est-à-dire pour un matériau incompressible).

Dans le cas du cisaillement,  $\bar{\bar{F}}$  s'écrit :

$$\bar{\bar{F}} = \begin{pmatrix} 1 & \gamma & 0 \\ -\gamma & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.40)$$

L'équation 2.37 s'écrit donc :

$$\bar{\bar{\sigma}} = \begin{pmatrix} 2C_1(1 + \gamma^2) + \Pi & 2C_1\gamma & 0 \\ 2C_1\gamma & 2C_1 + \Pi & 0 \\ 0 & 0 & 2C_1 + \Pi \end{pmatrix} \quad (2.41)$$

soit :

$$\sigma_{11} - \sigma_{33} = 2C_1\gamma^2 \quad (2.42)$$

$$\sigma_{22} - \sigma_{33} = 0 \quad (2.43)$$

$$\sigma_{12} = 2C_1\gamma \quad (2.44)$$

Afin de pallier les insuffisances du modèle de Rivlin, d'autres modèles ont été proposés. Celui utilisé par Gent donne une expression de la densité d'énergie un peu différente de 2.28, et est dérivé du modèle de Mooney-Rivlin :

$$W = -C_1J_m \ln(1 - J_1/J_m) + C_2' \ln[(J_2 + 3)/3] \quad (2.45)$$



où :

$$J_1 = I_1 - 3 = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 - 3 \quad (2.46)$$

$$J_2 = \lambda_1^{-2} + \lambda_2^{-2} + \lambda_3^{-2} - 3 \quad (2.47)$$

$$C_1 + C'_2 = G/2 \quad (2.48)$$

$J_m$  est la valeur maximale possible de  $J_1$ , correspondant à une élongation maximale du réseau polymérique considéré.  $J_m$  est inversement proportionnel à  $C_1$ .

$$\sigma_i = 2[\lambda_i^2 \frac{\partial W}{\partial J_1} - \frac{1}{\lambda_i^2} \frac{\partial W}{\partial J_2}] + \Pi \quad (2.49)$$

avec :

$$\frac{\partial W}{\partial J_1} = \frac{C_1}{[1 - (J_1/J_m)]} \quad (2.50)$$

$$\frac{\partial W}{\partial J_2} = \frac{C'_2}{(J_2 + 3)} \quad (2.51)$$

Après avoir abordé plus en détail l'élasticité non-linéaire, revenons maintenant sur l'instabilité du ballon en reprenant la formulation du problème tel qu'il est présenté en chapitre 1. Etant donné que le ballon est supposé de faible épaisseur, nous pouvons faire l'hypothèse que toutes les contraintes sont superficielles, soit  $\sigma_3 = 0$ . Cette relation nous permet de déterminer la pression hydrostatique  $\Pi$  intervenant dans les équations 2.49 :

$$\sigma_3 = 0 = 2\lambda_3^2 \frac{\partial W}{\partial J_1} + \Pi \quad (2.52)$$

Soit :

$$\Pi = -2 \frac{(\partial W / \partial J_1)}{\lambda^4} \quad (2.53)$$

dans le cas le plus simple où l'on a posé  $C'_2 = 0$  dans l'équation 2.51.

On en déduit les deux contraintes orthoradiales  $\sigma_1 = \sigma_2$  créées par la pression imposée  $p$  :

$$\sigma = \sigma_1 = \sigma_2 = 2\lambda^2 \left( \frac{\partial W}{\partial J_1} \right) + \Pi \quad (2.54)$$

$$= 2\lambda^2 \left( \frac{\partial W}{\partial J_1} \right) - 2 \frac{(\partial W / \partial J_1)}{\lambda^4} \quad (2.55)$$

$$= 2C_1 \left( \lambda^2 - \frac{1}{\lambda^4} \right) \frac{1}{[1 - \frac{J_1}{J_m}]} \quad (2.56)$$

Or :

$$J_1 = 2\lambda^2 + \frac{1}{\lambda^2} - 3 \quad (2.57)$$

De plus, on peut écrire l'équilibre des pressions de Laplace de la façon suivante :

$$pR\lambda = 2\sigma \times \frac{\omega}{\lambda^2} \quad (2.58)$$

soit :

$$\frac{pR}{w} = \frac{2\sigma}{\lambda^3} \quad (2.59)$$

Si l'on reporte cette relation ( 2.59), ainsi que 2.57 dans l'équation 2.56, on trouve :

$$\frac{pR}{wC_1} = \frac{4(\lambda^{-1} - \lambda^{-7})}{[1 - (J_1/J_m)]} \quad (2.60)$$

$$= \frac{4(\lambda^{-1} - \lambda^{-7})}{[1 - (2\lambda^2 + \frac{1}{\lambda^2} - 3/J_m)]} \quad (2.61)$$

Nous avons tracé cette courbe (Fig. 1.16) pour différentes valeurs de  $J_m$ . Quand  $J_m$  tend vers l'infini, cette courbe présente un maximum, et la pression tend vers 0 quand l'élongation tend vers l'infini. En revanche, il y a un maximum, mais aussi un minimum dès que  $J_m$  prend une valeur finie. Cette croissance de la pression - due en fait à une annulation du terme  $1 - (2\lambda^2 + \frac{1}{\lambda^2} - 3/J_m)$  qui intervient au dénominateur dans l'équation 2.61 - annonce le seuil d'une instabilité.

Comme le fait remarquer Gent, cependant, la situation réelle est plus complexe, dans la mesure où, bien que le ballon reste globalement sphérique, il est beaucoup plus étiré à certains endroits qu'à d'autres.

## 2.3 Viscoélasticité

Dans la majorité des matériaux de la vie de tous les jours, les propriétés visqueuses et élastiques sont associées dans un même matériau. On a décrit dans les paragraphes précédents, les comportements linéaires ou non linéaires qu'un liquide purement visqueux ou un solide purement élastique

peut présenter. Pour pouvoir écrire les relations 2.1 et 2.15, on a fait l'hypothèse que le matériau répond de manière instantanée à une sollicitation. En réalité, même pour un liquide comme l'eau, il existe un temps de réponse, associé aux propriétés viscoélastiques. Ce temps peut être compris par le fait que si on prend l'exemple d'un liquide, il existe toujours une échelle de temps de sollicitation à partir de laquelle les atomes se déforment élastiquement, faute d'avoir le temps d'effectuer des réarrangements, qu'on associe à l'écoulement. Dans le cas de l'eau, ce temps est cependant très petit ( $\sim 10^{-12}$ s), ce qui permet de considérer cette dernière comme un fluide Newtonien dans les conditions usuelles. Il existe cependant une grande variété de fluides possédant des temps caractéristiques comparables aux échelles d'observation. Comme pour l'élasticité et la viscosité, la viscoélasticité peut être décrite de manière linéaire pour des sollicitations de petite amplitude, mais il faut aller à l'ordre non linéaire pour une description aux plus grandes déformations ou aux plus grands taux de cisaillement. Il existe un certain nombre de modèles pour décrire cet effet. Nous décrirons en détail le plus simple, utile pour la suite, le modèle de Maxwell. Nous présenterons également brièvement les fluides à seuil, qui sont une autre classe de matériaux viscoélastiques, très couramment rencontrés.

### 2.3.1 Fluide de Maxwell

Introduit en 1867 par J.C. Maxwell, ce modèle possède les ingrédients les plus simples pour décrire la viscoélasticité. Son fondement microscopique est d'imaginer que lorsqu'on sollicite un matériau, celui-ci peut soit avoir le temps de réorganiser ses éléments et ainsi dissiper l'énergie injectée (écoulement), soit ne pas avoir le temps et dans ce cas, ses éléments s'écrasent entre eux et se déforment élastiquement. L'énergie est alors stockée et peut être restituée. Ainsi, on définit un temps intrinsèque au matériau, appelé temps caractéristique, qui sépare un régime de réponse liquide et un régime de réponse solide. Une vision aussi simpliste est idéalisée, même si en pratique il existe quelques rares exemples de matériaux ayant ce type de propriété (c'est le cas des solutions de micelles géantes ou des microémulsions cf. chapitre 3).

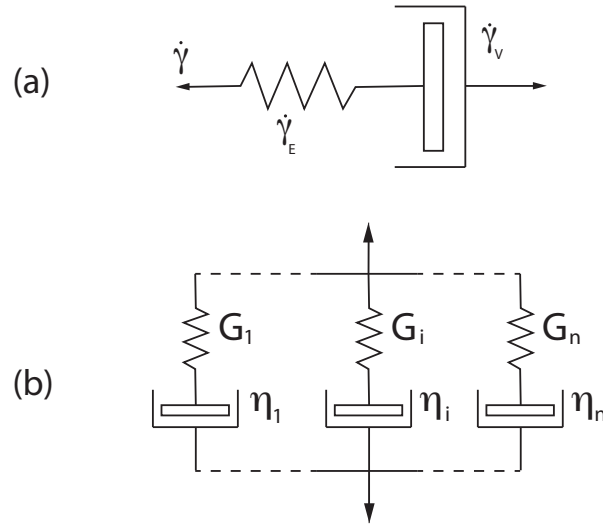


FIGURE 2.2 – (a) : Représentation schématique du modèle de Maxwell. Un ressort de raideur  $G$  est branché en série avec un amortisseur de viscosité  $\eta$ . (b) : distribution de temps caractéristiques modélisée par la mise en parallèle de  $n$  éléments de Maxwell

### 2.3.1.1 Régime linéaire

Pour décrire ce modèle, on peut faire l'analogie avec les circuits RC en électronique. Le modèle de Maxwell décrit un ressort (partie élastique) branché en série avec un amortisseur (réponse visqueuse) (Fig.2.2(a)). Dans ce modèle, les déformations, et donc les taux de déformation, s'ajoutent :

$$\dot{\gamma} = \dot{\gamma}_E + \dot{\gamma}_V \quad (2.62)$$

où  $\gamma_E$  est la déformation du ressort et  $\gamma_V$ , la déformation de l'amortisseur sous l'action de la contrainte appliquée. En considérant que le ressort et l'amortisseur suivent tous deux respectivement des lois de Hooke (équation 2.15) et de Newton (équation 2.1), l'équation 2.62 peut-être réécrite sous la forme :

$$\dot{\gamma} = \frac{\dot{\sigma}}{G} + \frac{\sigma}{\eta} \quad (2.63)$$

soit encore :

$$\sigma + \tau \dot{\sigma} = \eta \dot{\gamma} \quad (2.64)$$

avec  $\tau = \eta/G$  le temps de relaxation intrinsèque du matériau. La solution de cette équation différentielle, dans le cas où le système est soudainement cisailé (marche de taux de déformation à  $t=0$ ) est :

$$\sigma(t) = \eta \dot{\gamma} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right] \quad (2.65)$$

qui se réécrit sous la forme intégrale :

$$\sigma(t) = \frac{\eta}{\tau} \int_{-\infty}^t \exp\left(\frac{-(t-t')}{\tau}\right) \dot{\gamma}(t') dt' \quad (2.66)$$

### 2.3.1.2 Écoulement quelconque : le modèle de Maxwell convecté supérieur

Le modèle de Maxwell que nous venons de présenter est insuffisant pour décrire un matériau possédant un seul temps de relaxation au-delà des petites déformations. En généralisant l'équation 2.66 au cas tensoriel, on peut montrer par un calcul non-trivial que l'équation différentielle 2.64 peut se réécrire [55] [75] :

$$\tau \underline{\nabla} \underline{\sigma} + \underline{\sigma} = 2\eta \underline{A} \quad (2.67)$$

où  $\underline{\nabla}$  est la dérivée temporelle convectée supérieure, qui est définie par la relation :

$$\underline{\nabla} \underline{\sigma} = \dot{\underline{\sigma}} - \overrightarrow{\nabla} \overrightarrow{v} \underline{\sigma} - \underline{\sigma} \overrightarrow{\nabla} \overrightarrow{v}^T \quad (2.68)$$

et  $\underline{A}$  le tenseur des taux de déformation dans le cas des petites déformations, défini par :

$$\underline{A} = \frac{1}{2} (\overrightarrow{\nabla} \overrightarrow{v} + \overrightarrow{\nabla} \overrightarrow{v}^T) \quad (2.69)$$

avec  $\overrightarrow{v}$  la vitesse du fluide. Cette équation généralise l'équation de Maxwell au cas d'écoulements quelconques et est appelée équation de Maxwell convectée supérieure. Une remarque importante est qu'elle ne décrit pas un comportement non linéaire du matériau qui pourrait survenir à  $\dot{\gamma} > 1/\tau$ , mais seulement des déformations plus grandes, qui font apparaître des termes d'ordre supérieur dans les équations du mouvement. Le modèle de Maxwell

simple, comme sa version convectée supérieure décrivent une loi de comportement linéaire du matériau. Pour savoir dans quel régime de sollicitation du matériau on se trouve, on peut utiliser le nombre de Weissenberg, qui compare le temps de relaxation  $\tau$  au temps de sollicitation, dont l'inverse est le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  :

$$We = \dot{\gamma}\tau \quad (2.70)$$

Ainsi, si aucun effet non linéaire n'entre en jeu dans le comportement du matériau à grand  $\dot{\gamma}$ , alors le modèle de Maxwell simple pourra être utilisé si  $We < 1$  et le modèle de Maxwell convecté supérieur si  $We > 1$ . D'autre part, le modèle de Maxwell convecté prévoit que la viscosité  $\eta(\dot{\gamma})$  soit la même qu'en régime linéaire :

$$\eta(\dot{\gamma}) = \eta \quad \text{soit} \quad \sigma_{xy} = \eta\dot{\gamma} \quad (2.71)$$

et la première différence des contraintes doit être égale à :

$$N1 = \sigma_{xx} - \sigma_{yy} = 2G\tau^2\dot{\gamma}^2 = 2\eta\tau\dot{\gamma}^2 \quad (2.72)$$

Un exemple de l'allure des courbes ainsi obtenues, est donné en figure 3.9 de la partie 3.2.2 et comparé à des résultats expérimentaux. Une remarque importante est qu'on peut montrer analytiquement qu'à temps court, un tel fluide se comporte comme un solide néo-hookéen [75].

### 2.3.2 Description pour une distribution de temps de relaxation : module de perte et module de stockage

Comme mentionné précédemment, une telle modélisation est idéalisée. Pour se rapprocher de la réalité, on peut imaginer une distribution de temps de relaxation, exprimée par la mise en parallèle de  $n$  éléments de Maxwell piston-amortisseur, comme schématisé en figure 2.2(b). On peut traiter une telle modélisation de manière continue. Soit  $H(\tau)$  la fonction de distribution des temps de relaxation, l'équation 2.66 peut-être réécrite pour une distribution de temps sous la forme suivante :

$$\sigma(t) = \int_0^{+\infty} \frac{H(\tau)}{\tau} \left[ \int_{-\infty}^t \exp\left(\frac{-(t-t')}{\tau}\right) \dot{\gamma}(t') dt' \right] d\tau \quad (2.73)$$

On introduit alors le module de relaxation des contraintes  $G(t)$  tel que :

$$G(t) = \int_0^{+\infty} H(\tau) \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right) \frac{d\tau}{\tau} \quad (2.74)$$

soit

$$\sigma(t) = \int_{-\infty}^t G(t-t') \dot{\gamma}(t') dt' \quad (2.75)$$

La méthode courante pour déterminer les propriétés viscoélastiques linéaires d'un matériau est d'effectuer des tests de sollicitations oscillantes (dans un rhéomètre). La déformation  $\gamma$  à laquelle on soumet un échantillon avec une pulsation  $\omega$  et une amplitude  $\gamma_0$  peut alors être exprimée de la manière suivante :

$$\gamma(t) = \gamma_0 \exp(i\omega t) \quad (2.76)$$

Dans un régime de petites déformations, les contraintes restent proportionnelles à  $\gamma_0$  et la relation 2.75 peut se réécrire sous la forme :

$$\sigma(t) = i\omega\gamma_0 \int_{-\infty}^t G(t-t') \exp(i\omega t') dt' \quad (2.77)$$

qui peut s'écrire plus simplement :

$$\sigma(t) = G^*(\omega)\gamma(t) \quad (2.78)$$

où  $G^*$  est le module de cisaillement complexe d'expression suivante en fonction du module de relaxation  $G(t)$  :

$$G^* = i\omega \int_0^{\infty} G(u) \exp(-i\omega u) du \quad (2.79)$$

qu'on décompose ainsi :

$$G^* = G' + iG'' \quad (2.80)$$

En notation réelle, cela donne :

$$\sigma(t) = G' \gamma(t) + \frac{G''}{\omega} \dot{\gamma}(t) \quad (2.81)$$

On voit alors que  $G'$  décrit la réponse en phase avec la déformation et  $G''$  la réponse déphasée.  $G'$  est appelé module de stockage, car il est associé à la déformation élastique (l'énergie est stockée) tandis que  $G''$  est appelé

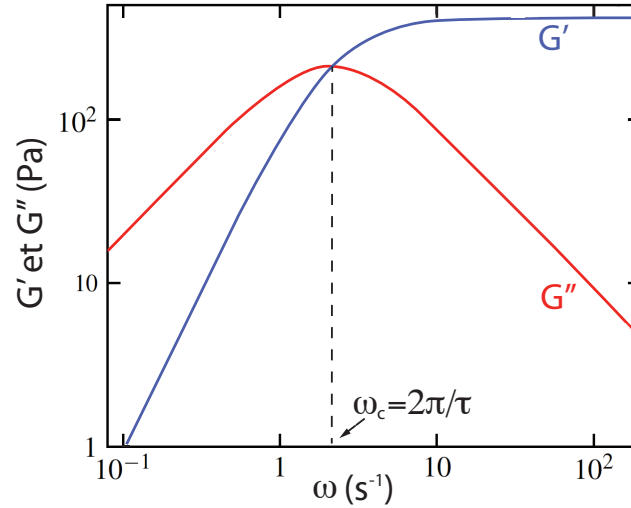


FIGURE 2.3 – Évolution des modules de stockage et de perte  $G'$  et  $G''$  en fonction de la fréquence angulaire pour un liquide de Maxwell à un seul temps de relaxation.

module de perte, car il est associé à l'écoulement (l'énergie est dissipée). Ces grandeurs sont facilement mesurables dans un rhéomètre, qui peut imposer des rampes oscillantes sur une fenêtre de fréquence et avec une amplitude choisie.  $G'$  et  $G''$  peuvent être calculés pour le modèle de Maxwell simple à un seul temps de relaxation. On obtient alors :

$$G' = \frac{\eta\tau\omega^2}{1 + \omega^2\tau^2} = \frac{G\tau^2\omega^2}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (2.82)$$

$$G'' = \frac{\eta\omega}{1 + \omega^2\tau^2} = \frac{G\tau\omega}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (2.83)$$

On trace en figure 2.3 le comportement théorique de  $G'$  et  $G''$  en fonction de la fréquence angulaire  $\omega$  pour un modèle de Maxwell à un seul temps de relaxation. L'intersection des deux courbes donne la fréquence caractéristique de réponse  $\omega_c$  du matériau dont on déduit  $\tau$  avec la relation :

$$\omega_c = 2\pi/\tau \quad (2.84)$$



### 2.3.3 Fluide à seuil

Certains matériaux, pour des raisons stériques à l'échelle microscopique, nécessitent qu'on leur applique une contrainte minimum pour que leurs constituants élémentaires puissent se réarranger et donc provoquer un écoulement macroscopique. En dessous de cette contrainte, ces éléments restent bloqués et se déforment élastiquement. Ce type de matériau est appelé fluide à seuil, et constitue une autre grande famille de matériaux viscoélastiques. Le modèle le plus simple pour décrire ce comportement est le modèle de Bingham [55], qui décrit un écoulement newtonien au-delà du seuil de contrainte. Ce modèle est défini par la relation :

$$\sigma = \sigma_{seuil} + \eta\dot{\gamma} \quad (2.85)$$

En réalité, les fluides à seuil, qui possèdent généralement une microstructure non triviale, présentent bien souvent, au-delà de leur contrainte seuil, des propriétés d'écoulement non linéaire. La majorité sont rhéofluidifiant, et le modèle le plus couramment utilisé pour une description plus fidèle, est le modèle de Hershel-Buckley, défini par la relation :

$$\sigma = \sigma_{seuil} + k_1\dot{\gamma}^n \quad (2.86)$$

où  $k_1$  et  $n$  sont des paramètres ajustables, propres au matériau. On peut citer comme exemple de fluide à seuil courant, le ketchup, la mayonnaise ou le dentifrice, qui présentent des seuils de l'ordre de quelques pascals. Les argiles constituent également une grande classe de fluides à seuil, beaucoup étudiés dans le contexte de la géophysique, pour par exemple mieux comprendre les glissements de terrain ou d'autres processus géologiques. Ce matériau a été également beaucoup étudié dans le contexte de la transition vitreuse des systèmes colloïdaux. Ces questions seront abordées un peu plus en détail en annexe, dans le cas de la Laponite.

## 2.4 Expériences en cellule de Hele-Shaw dans les matériaux complexes

Après avoir fait une revue d'instabilités d'interfaces observées dans des matériaux liquides visqueux d'un côté et solides élastiques de l'autre, on peut se demander ce qui se passe dans de telles géométries expérimentales, lorsque

les matériaux possèdent des lois constitutives complexes. Notamment, que se passe-t-il si on passe d'une réponse solide à une réponse liquide, ou l'inverse ? et si le matériau reste bien liquide, mais possède des propriétés non linéaires ? ou bien si le matériau est viscoélastique, c'est-à-dire possède des propriétés à la fois élastiques et visqueuses ? Il est assez difficile d'imaginer une expérience de "ballon" ou de tension/compression sur une fine feuille d'élastomère en passant une transition liquide/solide, bien qu'il puisse exister des mécanismes liés au flambage dans les liquides, notamment dans l'enroulement de filament liquide très visqueux soumis à la gravité [76]. On peut cependant aisément imaginer une expérience de digitation visqueuse et se demander ce qu'il se passe lorsque tous les types de réponses que nous avons énumérés sont envisagés. Nous avons abordé deux dispositifs où la digitation visqueuse est visible : la cellule de Hele-Shaw (partie 1.1) et l'expérience de décollement sous confinement (partie 1.4). Nous présentons maintenant les travaux effectués dans ces dispositifs avec des matériaux complexes.

### 2.4.1 Digitation dans les matériaux complexes

Après avoir bien caractérisé et compris l'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides Newtoniens, à la fin des années 80, il commença à y avoir, à partir du début des années 90, un certain nombre de travaux sur la digitation dans des matériaux aux propriétés plus complexes. Parmi ceux-là, on peut citer les fluides non-Newtoniens (pour une description plus détaillée de cette notion, voir chapitre 2.1.2). Ces fluides possèdent des propriétés non-linéaires en taux de cisaillement, dont les plus courantes sont la rhéofluidification (diminution de la viscosité avec le cisaillement) et l'élasticité. On peut s'attendre alors à modifier de manière drastique les observations faites de la digitation visqueuse dans les fluides Newtoniens. Bien souvent, ces deux propriétés se combinent dans un même matériau, rendant une étude expérimentale délicate.

Lindner et al [77, 22] arrivent à fabriquer des solutions diluées de polymères où seule l'une de ces propriétés est observée. Ainsi, dans des solutions de polymères rigides, ils obtiennent des comportements rhéofluidifiants, tandis que dans des solutions de polymères flexibles, des effets élastiques apparaissent. Ils montrent que la présence de contraintes normales liées à l'existence d'élasticité provoque un élargissement des doigts, phénomène comparable à l'effet Weissenberg, où un fluide possédant des propriétés élastiques

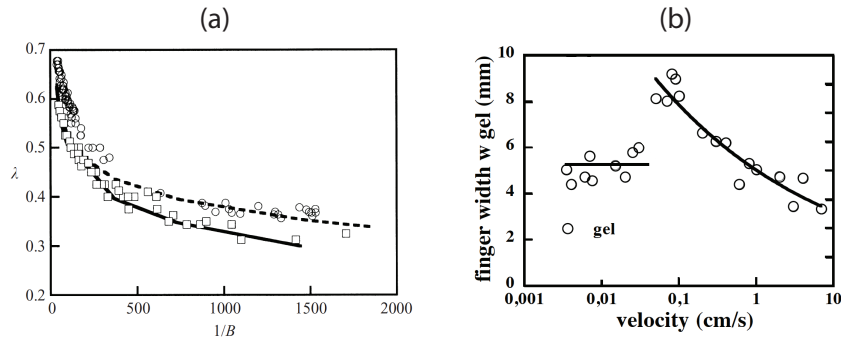


FIGURE 2.4 – (a) : Évolution de la largeur relative du doigt stationnaire, en fonction du nombre capillaire  $1/B$  pour une solution rhéofluidifiante de xanthane. D’après [22]. (b) : Évolution de la largeur du doigt stationnaire, en fonction de la vitesse du front pour un gel à cheveux, se comportant comme un fluide à seuil. D’après [23].

peut remonter le long d’un bâton qu’on y fait tourner [55]. Ils montrent que dans le cas de la rhéofluidification, les doigts ont, au contraire, tendance à s’affiner. Pour des effets de rhéofluidification faibles, ils montrent que la largeur du doigt stationnaire suit la même loi que pour un fluide Newtonien, en prenant la valeur de la viscosité au cisaillement imposé (saturation de la largeur du doigt à la moitié de la largeur du canal). En revanche, pour des effets plus forts, une loi de Darcy modifiée ne suffit plus à décrire les observations où des doigts peuvent atteindre des dimensions bien plus petites que la demi-largeur de la cellule. Une approche en termes de sélection de rayon de courbure plutôt que de largeur relative est développée. Dans le cas des effets élastiques, les équations peuvent être réécrites en faisant intervenir l’élasticité dans une tension de surface effective. Les résultats sont alors en bon accord avec le comportement de la largeur relative en fonction du paramètre  $1/B$  pour les fluides Newtoniens. Des effets reliés à une tension de surface variable ont aussi été observés [78].

Une autre catégorie de matériaux qui a suscité un vif intérêt sont les fluides à seuil. Intuitivement, on s’attend à ce que, si le fluide le plus visqueux devient solide, on puisse le fracturer. C’est l’aspect que nous développerons dans la partie suivante. En fait, pour un fluide à seuil, qui est donc solide lorsqu’il est statique et devient liquide lorsqu’il est contraint au dessus de son seuil, on peut tout le temps observer de la digitation avec cependant des

différences morphologiques. Ces observations sont dues à Park et *al* [79] en 1994 dans une mousse en géométrie circulaire et à Lindner et *al* [23] en 2000 dans des expériences sur un gel à cheveux, réalisées avec une cellule linéaire.

Le résultat de Park et *al* dans une mousse est que, lorsque le taux de cisaillement est élevé, on observe de la digitation ressemblant beaucoup à du Saffman-Taylor, à ceci près que la mousse glisse sur les plaques de verre, ce qui rend le problème bidimensionalise. Pour des taux de cisaillement plus faibles, ils observent une structure de doigt avec le même type de branchement mais avec une interface plus bruitée et des mouvements de "stick-slip" où le front avance par à-coups. Ces travaux sont néanmoins difficiles à caractériser de manière théorique. Il est clair que qualitativement, le matériau se comporte plutôt de manière liquide à grande vitesse et que des effets élastiques émergent à basse vitesse. Cependant la phénoménologie particulière de ce régime où la mousse glisse sur les plaques de verre semble mettre en évidence une transition vers un régime frictionnel compliqué et ne correspond pas exactement aux mêmes conditions géométriques que Saffman-Taylor.

Dans un gel à cheveux et une géométrie linéaire, Lindner et *al* observent que lorsque la vitesse est faible, il se forme une structure branchée dont la valeur moyenne de la largeur des doigts ne varie plus avec la vitesse du front. Pour des régimes de vitesses plus élevées, le fluide présente un comportement fortement rhéofluidifiant et on observe la propagation d'un doigt unique, dont la largeur relative peut atteindre des valeurs inférieures à 0.5 (Fig.2.4). Cette dernière propriété correspond au caractère rhéofluidifiant de ce type de fluide au-delà de son seuil (modèle de Herschel-Buckley). On observe donc à basse vitesse des propriétés suggérant une influence de l'élasticité, comme dans l'expérience de Park et *al* [79], mais le fait que le branchement soit plus important à basse vitesse n'avait pas pu être observé. D'autre part ils ont repérés une transition très clair de comportement en fonction de la vitesse du front, en mesurant la taille des doigts. Il n'existe cependant pas de prédiction quantitative du seuil de régime de digitation, en termes de contrainte. À grande vitesse, du branchement peut également être observé, comme dans les expériences avec des fluides Newtoniens.

### 2.4.2 De la digitation vers la rupture en volume

Une expérience réalisée sur un autre type de fluide à seuil composé d'argile montre en revanche une transition doigt branché/fissures branchées, dans

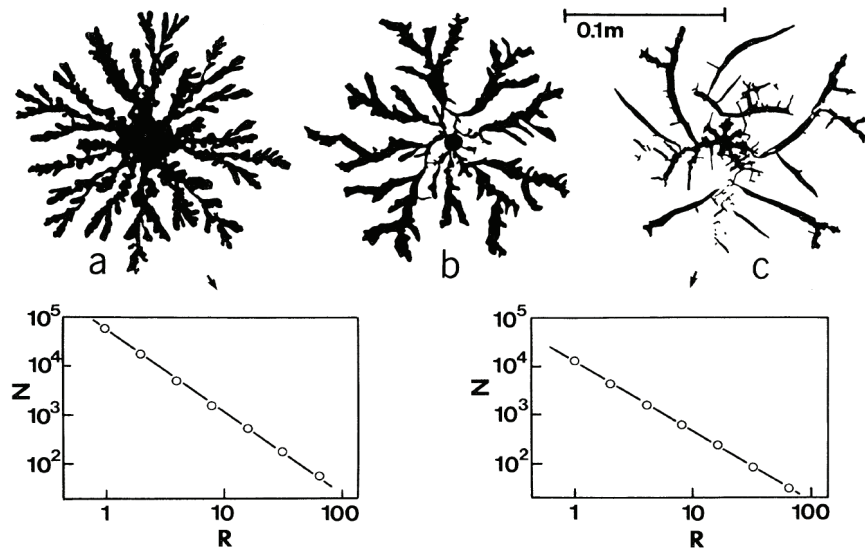


FIGURE 2.5 – (a, b, c) Motifs obtenus en injectant de l'eau dans un mélange eau/argile. La concentration en argile est augmentée de gauche à droite. (bas) dimension fractale mesurée pour le premier motif (gauche) et pour le dernier (droite). D'après [24].

une géométrie circulaire [24]. Dans ces expériences, les auteurs font varier la concentration en argile, le débit et le confinement, ce dernier étant toujours choisi suffisamment petit pour observer des structures branchées. Pour de petites concentrations et de petits débits, les auteurs observent un motif de digitation avec une dimension fractale caractéristique. Lorsque la concentration ou le débit sont augmentés, on observe un motif de fissures branchées avec des angles de  $90^\circ$  (Fig.2.5). Contrairement au cas de la digitation dans un gel à cheveux, dans ce cas-ci, ce n'est pas à basse vitesse que les auteurs observent une réponse associée au comportement solide. Les concentrations en masse utilisées vont de 0.15 à 0.6 (Voir annexe A pour le diagramme de phase d'une solution d'argile). Entre ces concentrations, c'est plutôt une transition thermodynamique liquide/solide qui est sondée, même si le caractère "à seuil" aux concentrations intermédiaires a sûrement un effet. D'autre part, pour une même concentration, le passage de digitation à bas débit à des fractures à haut débit suggère plutôt un comportement viscoélastique de type Maxwell. Cela explique la différence de phénoménologie entre les expériences de Lindner et *al* et celles de Park et *al*.

Un problème majeur de ce type d'expérience, que ce soit pour un fluide à seuil ou un viscoélastique de type Maxwell, c'est qu'il est difficile de caractériser de manière quantitative les observations, pour la bonne et simple raison que les matériaux sont à la base mal compris. Une avancée a pu être faite ces dernières années grâce à une meilleure maîtrise des propriétés macro et microscopiques des matériaux. Ainsi, des expériences ont pu être réalisées dans des mousses modèles bidimensionnelles dans lesquelles chaque bulle est observable facilement par une caméra placée au dessus de l'expérience [80, 25]. Dans ce type de système, en contrôlant la pression, on observe différents régimes. Si on fait plusieurs expériences à pression croissante, on observe un premier régime de croissance d'une bulle 2D avec des réarrangements plastiques. Dans un second régime on observe de la digitation branchée, avec le même type de réarrangement. Et dans un troisième régime, on observe des fractures fragiles qui se manifestent par la rupture des bulles (Fig.2.6). Bensalem et *al* font une description quantitative du second régime, grâce à une analyse de stabilité linéaire, en terme de saut de pression dans la bulle et de friction entre les bulles. Ils identifient d'autre part la transition vers la fracture fragile. Ces travaux revêtent une pertinence particulière pour étudier les questions associées aux transitions fracture fragile/plastique, car dans une certaine limite, les bulles pourraient modéliser des atomes, tout en permettant une visualisation simple et un bon contrôle du système [80].

Un autre exemple de système modèle employé sont les microémulsions connectées [81] utilisées par Mora et *al* dans une cellule de Hele-Shaw circulaire [26] (Fig.2.7, haut). Le principe de ce matériau est qu'il se comporte comme un fluide de Maxwell modèle avec un unique temps de relaxation  $\tau$ . Il présente l'avantage, par rapport à d'autres systèmes de ce type, de suivre le modèle de Maxwell convecté pour des grands nombres de Weissenberg. Il conserve ainsi ses propriétés modèles pour des grandes déformations, avec notamment un comportement néo-hookéen quand il répond de manière élastique. Un tel système est très intéressant pour étudier l'influence de la viscoélasticité sur la digitation, et les expériences de Mora et *al* sont les premières à présenter un travail expérimental systématique, appuyé par une théorie, pour cette problématique. Les auteurs montrent que l'instabilité de Saffman-Taylor est modifiée par l'élasticité. Ils définissent le nombre sans dimension :

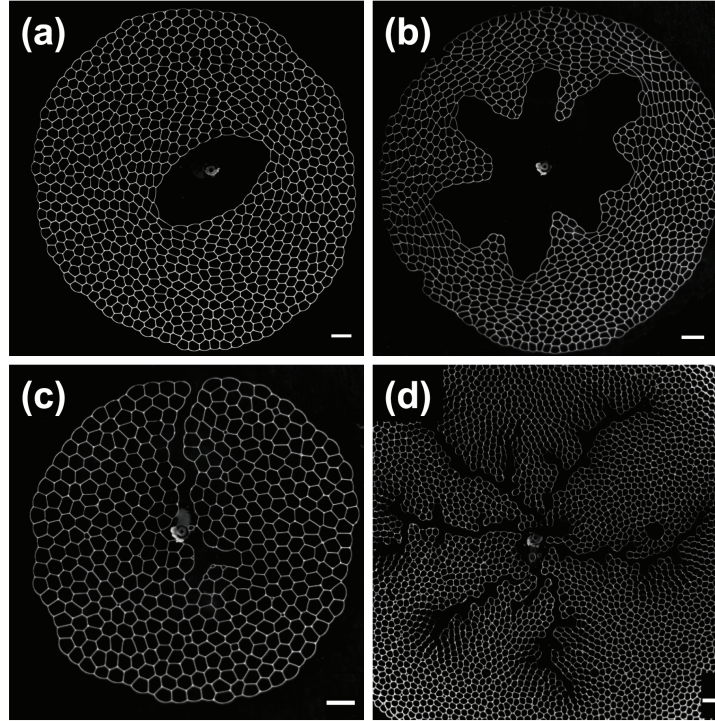


FIGURE 2.6 – Réponse d’une mousse 2D à une injection d’air, en augmentant la pression (a) : Réponse quasi-statique, avec une bulle centrale de forme elliptique. (b) : Régime intermédiaire, où des doigts croissent avec une longueur caractéristique. (d)(e) : régime de fracture fragile à haute vitesse. On peut former soit une fissure unique (d), soit un réseau de fissures branchées (e). Le trait blanc mesure 1cm. D’après [25].

$$\tilde{\tau} = 18\sqrt{3}\tau\omega_{max} \quad (2.87)$$

où  $\omega_{max}$  est le taux de croissance maximum pour l’instabilité en Newtonien. Le coefficient  $18\sqrt{3}$  est introduit pour faciliter les calculs. De même, ils introduisent :

$$\tilde{k} = \frac{k}{\sqrt{3}k_c} \quad (2.88)$$

où  $k$  est le vecteur d’onde de l’instabilité et  $k_c$  sa valeur pour  $\omega = \omega_{max}$ . Ils montrent théoriquement, en faisant une analyse de stabilité linéaire, et expérimentalement dans une géométrie équivalente à la cellule linéaire (aspiration en circulaire) que, lorsque  $\tilde{\tau}$  augmente, c’est-à-dire lorsque les effets

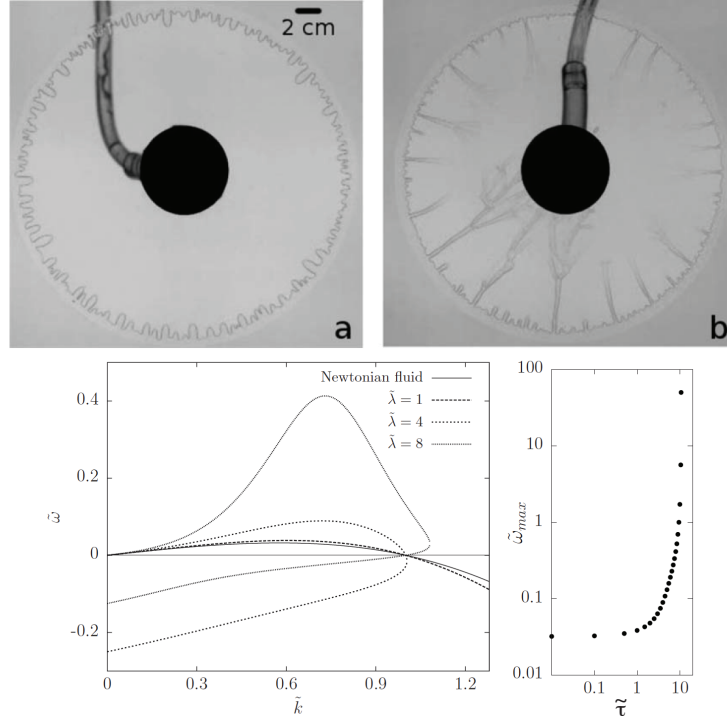


FIGURE 2.7 – (a) : Observation expérimentale de la digitation viscoélastique. (b) : Régime de rupture à grand gradient de pression. (c) : Courbe théorique représentant  $\tilde{\omega}$  en fonction de  $\tilde{k}$ . (d) Courbe théorique représentant  $\tilde{\tau}$  en fonction de  $\tilde{\omega}_{max}$ . D’après [26].

élastiques commencent à entrer en jeu, alors le taux de croissance maximum,  $\tilde{\omega}_{max}$  de l’instabilité augmente et le vecteur d’onde correspondant  $\tilde{k}_{max}$  est déplacé. D’autre part, le modèle prévoit une divergence de  $\tilde{\omega}_{max}$  pour  $\tilde{\tau} \sim 10$ . Cette divergence est interprétée comme la nucléation d’une fissure et est vérifiée expérimentalement de manière quantitative (Fig.2.7, bas). Ils observent des fissures dans différents fluides avec  $\tilde{\tau} \in [9, 11]$ . Un résultat intéressant est qu’il est également possible de prédire l’apparition d’une fissure en décrivant l’instabilité dans son régime de perturbation linéaire.

### 2.4.3 De la digitation vers la rupture interfaciale

Des expériences de digitation dans des matériaux viscoélastiques ont également été réalisées par Nase et al [68, 82] dans une géométrie en décollement du



même type que celles présentées en 1.4. Lorsque le matériau est liquide, on observe de la digitation visqueuse similaire à celle obtenue en cellule de Hele-Shaw par injection [83]. En réalisant des expériences dans du PDMS, en ajoutant plus ou moins d'agent réticulant, on peut passer d'un matériau visqueux à un élastomère, en passant par un régime viscoélastique. Nase et *al* montrent qu'on passe alors d'une digitation visqueuse à une digitation interfaciale, qui correspond à la rupture de l'interface matériau/verre. Dans un régime intermédiaire, il y a rupture interfaciale, mais avec déformation dans le volume. On a un régime mixte entre processus en volume (régime visqueux) et à l'interface (régime élastique de rupture). Du régime visqueux au régime viscoélastique, les auteurs montrent que la longueur d'onde  $\lambda$ , dans toutes les expériences, vaut  $\lambda = \pi b \sqrt{Ca}$  lorsque la vitesse d'éloignement des plaques est variée et que la déformation est en volume. Dans le régime élastique, ils montrent que  $\lambda$  ne varie plus avec cette dernière. Ils montrent que le critère proposé par Webber et *al* [84],  $G_c/Eb$ , où  $G_c$  est l'énergie de rupture interfaciale et  $Eb$  l'énergie élastique nécessaire à la déformation, permet de bien séparer régime en volume et régime interfaciale. Dans le cas de la digitation interfaciale, il retrouve  $\lambda = 2.3b$ , qui est en accord avec ce qui est reporté dans la littérature pour la digitation interfaciale [15, 64].

# Chapitre 3

## Des matériaux modèles

### 3.1 Le gel de polyacrylamide : un matériau purement élastique

#### 3.1.1 Physico-chimie du polyacrylamide

Le gel de polyacrylamide [85] est formé à partir de la réticulation dans l'eau d'un monomère, l'acrylamide ( $-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{-CONH}_2)-$ ), et d'un dérivé bifonctionnel de l'acrylamide : le N,N'-méthylène-bis-acrylamide ( $\text{CH}_2=\text{CH}-\text{CO}-\text{NH}-$ ) $_2\text{CH}_2$ , plus couramment appelé bis-acrylamide (fig.3.1). C'est un gel chimique, c'est-à-dire que les monomères se lient entre eux par liaison covalente. Contrairement aux gels physiques, constitués par des liaisons hydrogène, d'énergie beaucoup plus basse, les gels chimiques ne sont pas réversibles. Si la proportion de monomères et de réticulant est bien choisie, on fabrique un réseau figé formant une macromolécule, qui a une structure analogue à celle d'une éponge<sup>1</sup>. Les groupes amides ( $-\text{CONH}_2$ ) libres - qui n'ont pas réagi - peuvent former des liaisons hydrogène avec la molécule d'eau qui confère au gel un très fort pouvoir absorbant. Il peut ainsi absorber jusqu'à des dizaines de fois son poids en eau. On peut également écranter les liaisons hydrogène en ajoutant des substances ioniques (comme le sel) dans le solvant et ainsi éjecter une partie de l'eau, et faire varier son pouvoir absorbant. Pour ces raisons, le polyacrylamide est largement utilisé dans l'industrie, notamment pour la fabrication de lentilles de contact, ou en

---

1. Dans certaines proportions, on forme plutôt des chaînes longues, et le matériau peut alors se comporter comme un liquide avec des propriétés élastiques.

biologie, pour les expériences d'électrophorèse, ou même en botanique, pour accroître la vigueur des plantes ou améliorer les propriétés des sols.

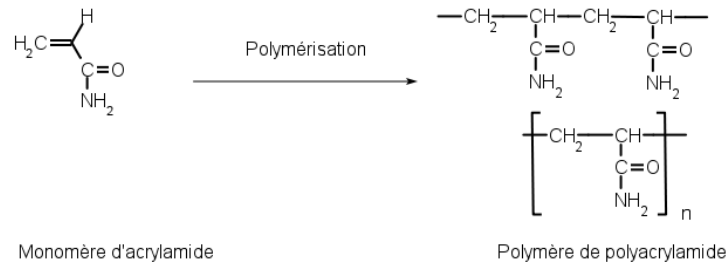


FIGURE 3.1 – Réaction chimique de réticulation, à partir du monomère d'acrylamide.

Il a plus récemment été manipulé par des physiciens, pour ses propriétés purement élastiques et fragiles, et sa faible vitesse de propagation des ondes acoustiques [86] si on la compare à celle d'autres matériaux plus durs (verre de silice, caoutchouc, etc...). Il permet en plus de descendre à des modules élastiques particulièrement bas, ce qui fait de lui un bon candidat pour étudier les instabilités des solides mous, ou pour étudier des problèmes de biophysique, dans lesquels les modules sont souvent bas (ordre de grandeur 100 à 1000 Pa). C'est pour ces raisons que nous l'avons choisi pour mener cette étude. Il est de plus relativement facile à préparer.

### 3.1.2 Protocole de fabrication

Le polyacrylamide, contrairement à l'acrylamide qui est neurotoxique, n'est pas toxique mais il doit être manipulé avec précaution car il peut contenir des résidus d'acrylamide. Vu son grand nombre d'applications, cela a d'ailleurs fait l'objet de nombreuses études qui tendent à réduire son domaine d'utilisation. Dans notre cas, nous avons manipulé sous hotte, avec gants en Latex et lunettes de protection.

Le polyacrylamide et le bis-acrylamide ont besoin de catalyseurs pour amorcer la réaction. On doit ajouter au mélange du TMEDA (N,N,N',N'-tétraméthyléthylènediamine) ainsi que du persulfate de potassium (K<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>8</sub>), dont la fonction est de générer des radicaux libres qui initient la réaction de polymérisation en présence de molécules insaturées.

On prépare quatre solutions mères diluées que nous utiliserons par la suite pour tous les différents gels fabriqués. On y ajoute dans la majorité des

cas une cinquième solution composée d'eau osmosée et de colorant pour les besoins de l'étude (cf chapitre 5). Les proportions sont les suivantes [87] :

- Acrylamide à 2 mol/L soit 143.6g/ (solution A).
- Bisacrylamide à 0.02 mol/L soit 3.1g/L (solution B).
- Persulfate de potassium à 0.2 mol/L soit 54.1g/L (solution C).
- TMEDA à 0.3 mol/L soit 34.9g/L (solution D).
- Bleu de méthylène à 0.5g/L (solution E).

Nous utilisons ensuite, pour les prélèvements, des micro-pipettes en changeant les embouts entre chaque pipettage, pour éviter tout risque de pollution. Pour tous les gels, nous avons ajouté les différents composés au mélange dans le même ordre (E, A, B, C, D). On choisit les proportions des 5 substances en fonction des modules élastiques recherchés. Dans tous les cas, il est important, pour avoir un gel de bas module bien homogène, de choisir les proportions en catalyseurs, de manière à ce que la réaction se fasse en 15-20 minutes. Le gel n'est donc plus manipulable au-delà de ce temps. Il est à noter également que la présence de colorant dans l'eau osmosée influence les propriétés mécaniques du gel (abaissement du module). Ainsi, toute l'étude rhéologique qui va suivre n'est quantitativement valable qu'en utilisant une eau colorée dans les proportions de la solution E.

### 3.1.3 Propriétés mécaniques

Comme nous l'avons précisé précédemment, le polyacrylamide a été choisi pour ses propriétés purement élastiques dans certaines proportions de ses composés. Pour vérifier de telles propriétés et les caractériser plus en détail, nous avons réalisé des expériences de rhéologie. L'appareil utilisé est une tête MCR 501 Anton Paar avec une géométrie cône plan en verre de diamètre 50mm et d'entrefer 50 $\mu$ m (modèle Anton Paar CP50GL). On a choisi une géométrie en verre afin de reproduire le même environnement de gélification que dans les cellules où les instabilités sont observées et se prémunir ainsi d'une éventuelle influence du substrat sur la gélification [88].

En figure 3.2, on a tracé le module de perte  $G''$  traduisant la dissipation visqueuse et le module de stockage  $G'$  donnant la contribution élastique en fonction de la fréquence angulaire pour un gel typique. Pour cet exemple, le module élastique est de  $G=550$ Pa, et on a attendu suffisamment longtemps

pour que le gel ait le temps de bien réticuler et d'acquérir des propriétés stationnaires (voir plus loin). Cette courbe est représentative de ce qu'on obtient pour des gels dans la gamme de modules explorée  $80 - 1600 Pa$ . On constate que les modules élastiques sont  $\sim 10^3$  fois plus grands que les modules de perte aux basses fréquences, et plus de 10 fois plus grands aux très hautes fréquences (fig. 3.2). Il est à noter qu'une grande partie des expériences a pu être réalisée à des vitesses de sollicitation faibles, pour lesquelles on peut donc négliger les modules de perte par rapport aux modules de stockage. On peut donc affirmer que le gel de polyacrylamide, dans les proportions de composés choisies pour cette étude, se comporte comme un solide élastique aux petites déformations.

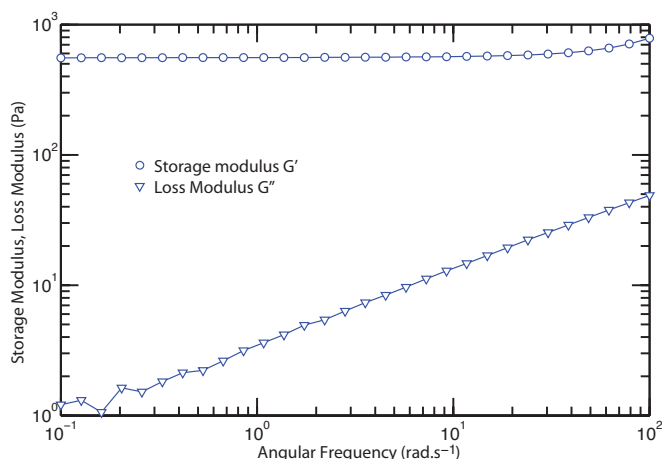


FIGURE 3.2 – *Mesure du module de stockage  $G'$  et du module de perte  $G''$  en fonction de la fréquence angulaire, pour un gel de polyacrylamide de module de cisaillement  $G=550Pa$ .*

Comme mentionné précédemment, le temps de gélification doit être supérieur à 15-20 minutes pour obtenir un matériau bien homogène. On a donc réalisé des mesures du module en fonction du temps afin de définir les proportions de composé à choisir. L'expérience est réalisée à une fréquence angulaire de  $1 \text{ rad.s}^{-1}$  et une amplitude d'oscillation de 1%. En figure 3.3, on a tracé en rouge l'évolution de la contribution élastique en fonction du temps. On constate d'abord qu'aucun module élastique n'apparaît avant une quinzaine de minutes. Les monomères réagissent et forment des réseaux de plus en plus grands, mais la macromolécule n'est pas encore formée. On a ensuite

un régime où le module croît rapidement. C'est dans ce régime que se forme la macromolécule. La valeur du module élastique sature ensuite et sa valeur peut être considérée comme totalement stable au bout d'un peu moins de deux heures. Pour s'assurer dans un premier temps que cette oscillation ne perturbe pas le mécanisme de gélification, on a également fait une mesure de module sur une solution qu'on a laissé réticuler pendant environ 3000 secondes en laissant au repos le rotor du rhéomètre. On constate alors que la valeur du module élastique trouvée est exactement la même (fig.3.3 courbe bleue).

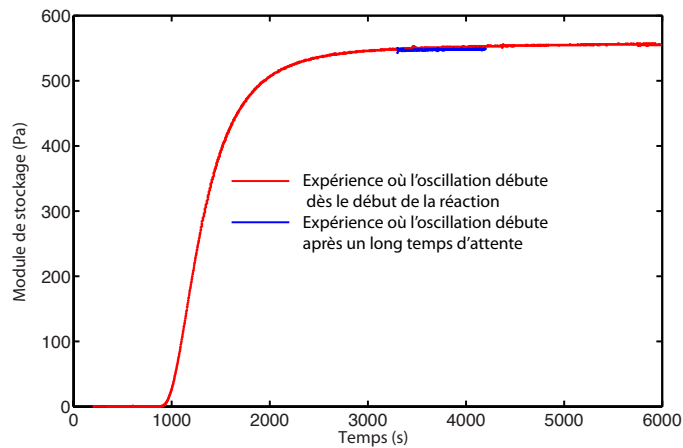


FIGURE 3.3 – Courbe rouge : Mesure du module de stockage  $G'$  en fonction du temps pour un gel de module de cisaillement  $G = 550\text{Pa}$ . La mesure débute dès le début de la réaction. Courbe bleue : Comparaison avec le module élastique d'un gel de même composition, mais en débutant la mesure bien après le début de la réaction, quand le gel est déjà bien réticulé. Cette courbe montre que l'oscillation du rhéomètre n'influence pas la gélification.

Nous avons par la suite choisi différents dosages, de manière à obtenir des gels de modules différents avec des temps de gélification comparables pour satisfaire la condition d'homogénéité, mais également pour appliquer les mêmes protocoles expérimentaux. La figure 3.4 montre, à titre d'exemple, les courbes de module de stockage en fonction du temps pour 4 solutions donnant différents modules élastiques. Les dosages en volume présentés sont :

- dosage1 : 39%de solution A, 16% de solution B, 5.5% de solution C, 4.6% de solution D et 34.9% de solution E.
- dosage2 : 39.1%de solution A, 11.2% de solution B, 4.4% de solution C, 3.2% de solution D et 41.3% de solution E.
- dosage3 : 36.8%de solution A, 11.5% de solution B, 4.6% de solution C, 3.4% de solution D et 43.7% de solution E.
- dosage4 : 27.1%de solution A, 11.4% de solution B, 4.3% de solution C, 2.9% de solution D et 54.3% de solution E.

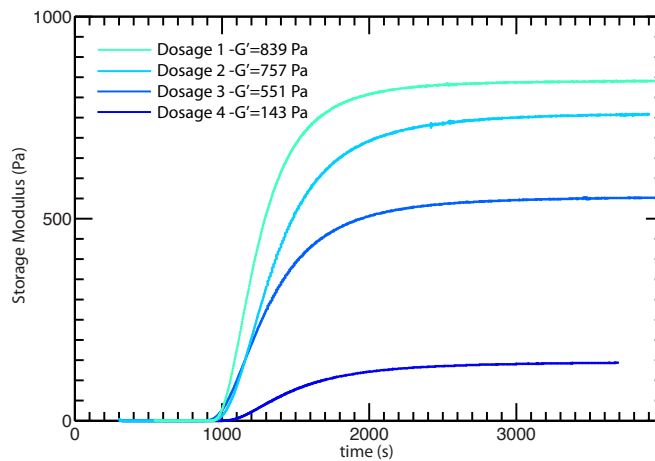


FIGURE 3.4 – Comparaison des courbes de module de stockage en fonction du temps pour 4 différents gels. On a pu réaliser, avec différents dosages, différents modules avec les mêmes temps de réticulation.

On constate que pour ces dosages on obtient des modules allant de 143 Pa à 839Pa en conservant le même temps d'émergence du module élastique. On observe cependant que le régime transitoire semble d'autant plus long que le module est petit. Mais au bout de deux heures, on peut affirmer dans tous les cas que le gel est stationnaire.

Ces mesures de Rhéologie montrent que le matériau a bien un comportement élastique au bout de deux heures d'attente, mais seulement pour de très petites déformations (1%) qui seront, nous le verrons, largement dépassées pendant les expériences. On a donc, une fois le régime stationnaire atteint, tracé la contrainte en fonction du déplacement (fig. 3.5). On constate alors, que dans la gamme de modules 140 – 1590Pa, les courbes restent linéaires

jusqu'à 150-200%. On observe ensuite un phénomène de durcissement d'autant plus important que les modules sont faibles (effet imperceptible pour les plus grands modules). La déformation à rupture est délicate à estimer, car dans la majorité des cas, le gel se décolle de la paroi avant de casser. Cependant, en améliorant l'adhésion sur une expérience, on a pu aller plus loin en déformation, et mesurer une vraie déformation à rupture, en volume. Pour un gel de 450Pa, on a alors trouvé une valeur d'environ 600% (courbe rouge fig. 3.5).

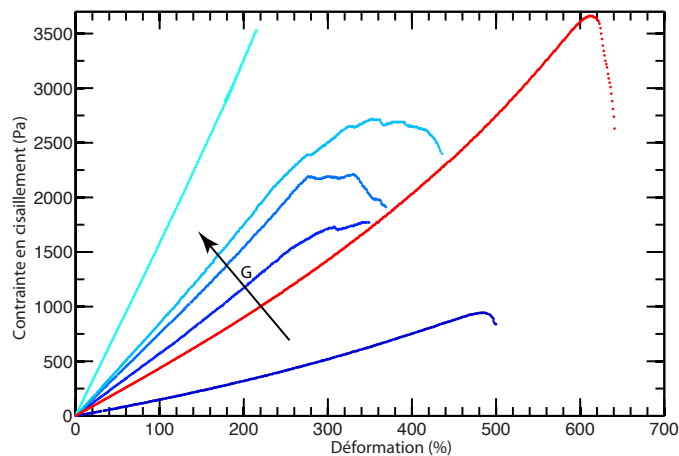


FIGURE 3.5 – Courbes contrainte/déformation pour des gels de différents modules élastiques. On observe un comportement de durcissement à grande déformation, pour les gels de plus bas module

## 3.2 Des fluides viscoélastiques modèles

Pour étudier des instabilités à la transition liquide/solide, il est crucial, pour bien identifier les mécanismes, d'utiliser dans un premier temps des matériaux connus et possédant des propriétés rhéologiques simples. Le modèle le plus simple pour décrire un matériau viscoélastique est sans doute le modèle du fluide de Maxwell (voir chapitre 2) qui ne possède qu'un temps caractéristique. Ce modèle ne décrit généralement pas la réalité, où de nombreux mécanismes peuvent entrer en jeu et multiplier les paramètres et les comportements différents. Cependant, il existe des fluides qui, grâce à une



microstructure bien particulière, se rapprochent de ce modèle, dans un certain domaine d'utilisation. Il s'agit de fluides formés à base de micelles (partie 3.2.1) ou de microémulsions (partie 3.2.2).

### 3.2.1 Les solutions de micelles

Les micelles([55]) sont des structures qui se forment sous certaines conditions, lorsqu'on introduit des molécules tensioactives dans de l'eau. Ces molécules, formées d'une partie hydrophile et d'une partie hydrophobe, sont alors contraintes de s'organiser, de manière à minimiser les contacts partie hydrophobe/eau et à maximiser les contacts partie hydrophile/eau. Si l'on se place dans une certaine région du diagramme de phases (fig. 3.6 [27]), cette organisation peut prendre soit la forme de micelles cylindriques (micelles géantes), structures très longues pouvant atteindre des longueurs micrométriques, soit la forme de micelles sphériques.

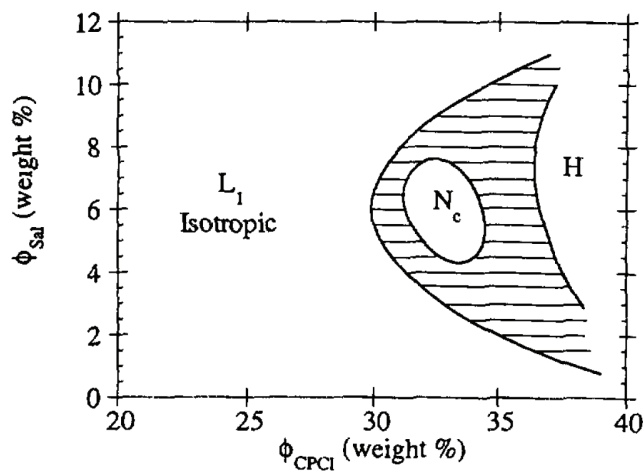


FIGURE 3.6 – Diagramme des phases d'une solution de Cetylpyridinium Chloride (CpCl) en présence de saumure (NaSal). D'après [27].

Ces structures possèdent la particularité de pouvoir se scinder et se recombinaer (d'où leur surnom de polymère "vivant"). Ainsi, lorsqu'on se place dans un régime de concentration suffisante, dit "semi-dilué", où les micelles

s'enchevêtrent, on peut observer un comportement élastique lorsque la sollicitation ne laisse pas le temps à la recombinaison de s'effectuer et que les micelles "s'écrasent" entre elles. La réponse est de type liquide lorsque la sollicitation est suffisamment lente pour permettre ces recombinaisons. Malgré une grande polydispersité, à laquelle on associe généralement un large spectre de temps caractéristiques, le mécanisme de scission/recombinaison permet au fluide de n'avoir, dans certains cas, qu'un seul temps de relaxation.

On observe que les courbes rhéologiques s'ajustent parfaitement avec le modèle de Maxwell. C'est le cas par exemple des solutions de micelles géantes à base de Cetylpyridinium Chloride ou de CTAB.

Cependant, ces comportements sont généralement observés seulement pour de petites déformations. À grande déformation, on fait généralement intervenir des comportements plus complexes, non-linéaires, tels que la rhéofluidification [55], voire des transitions de phase sous cisaillement [27]. Pour pouvoir manipuler un matériau de ce type, mais en gardant des propriétés modèles aux grandes déformations, Tabuteau et al [28] ont utilisé des solutions dites de microémulsions connectées, qui ont la particularité de se comporter comme de façon linéaire élastique, jusqu'à la rupture. Nous avons choisi de travailler avec le même système, synthétisé au L2C de Montpellier.

### 3.2.2 Microémulsions connectées par des polymères téléchéliques

Les solutions de microémulsions connectées sont constituées de gouttelettes d'huile reliées entre elles par des polymères téléchéliques. Ces derniers sont des polymères triblocs ayant deux extrémités hydrophobes et une partie centrale hydrophile. Placés en milieu aqueux, en l'absence de gouttelette d'huile, ils peuvent s'auto-assembler pour former des structures micellaires [89] appelées HURE. Ces derniers sont également des fluides de Maxwell, mais pour un meilleur contrôle des propriétés du matériau, on peut utiliser un système constitué d'une émulsion d'huile, stabilisée par des tensioactifs, et connectés par les polymères téléchéliques ([28], [90]). Ces matériaux sont synthétisés au L2C de Montpellier, dans l'équipe de S.Mora et C.Ligoure. Lorsque les extrémités hydrophobes de la même chaîne polymère se trouvent dans la même gouttelette il se forme des boucles, mais une chaîne peut relier deux gouttelettes d'huile. On forme ainsi une structure de micelles connectées, d'où sa dénomination (fig.3.7).

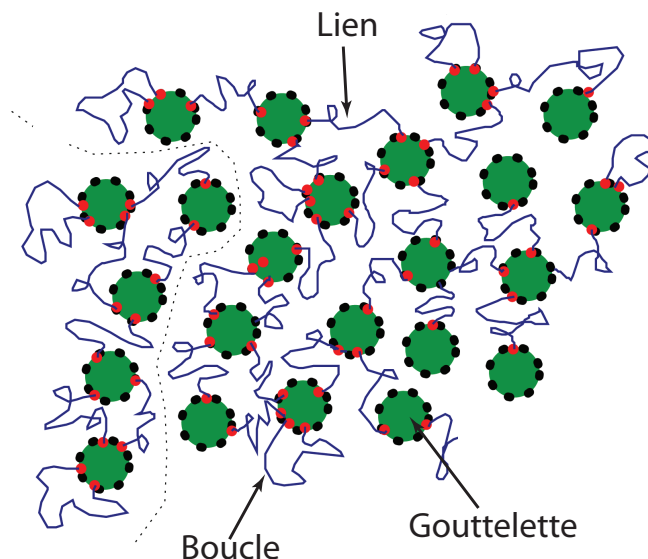


FIGURE 3.7 – Schéma représentant la structure microscopique des microémulsions connectées.

Etant donné que les extrémités hydrophobes peuvent changer de gouttelette d'huile lors d'une sollicitation extérieure, ce système, comme les micelles cylindriques, subit en permanence des recombinaisons. Ceci est possible parce que l'énergie d'adhésion des parties hydrophobes est comparable aux fluctuations thermiques  $k_B T$ .

En contrôlant la quantité de polymères téléchéliques (polyoxyéthylène de masse molaire 10 ou 35kg/mole), on est capable de passer d'une émulsion qui s'écoule tout le temps (car pas assez de liens) à un système où un réseau élastique reliant les gouttes est formé (on passe alors un seuil de percolation et ce matériau peut-être considéré comme un gel physique). La connectivité  $r$  du réseau exprime la quantité de liens par gouttelette. Le seuil de percolation est atteint pour  $r=3$ . Au augmentant  $r$  on peut changer la contrainte à rupture. On peut également modifier la fraction volumique de gouttes dans le matériau, qui dépend de la quantité d'huile et de tensioactif. On peut alors changer leur taille et leur densité, qui contrôlent la viscosité, alors que, indépendamment, la longueur des polymères et la connectivité régissent le module élastique. Ces propriétés permettent donc de choisir, un temps de relaxation dans une gamme relativement large comparée à celles d'autres

systèmes.

L'utilisation du polyoxyéthylène (polymère téléchélique) à des masses molaires différentes (10 ou 35kg/mole) permet aussi de rendre le matériau plus ou moins déformable avant rupture (le matériau est d'autant plus déformable que la masse molaire est grande). Les propriétés rhéologiques de ces matériaux ont été très bien caractérisées au L2C. On donne en figure 3.8 un exemple de mesure rhéologique des modules de stockage et de perte,  $G'$  et  $G''$  [28]. On retrouve bien un comportement parfaitement Maxwellien.

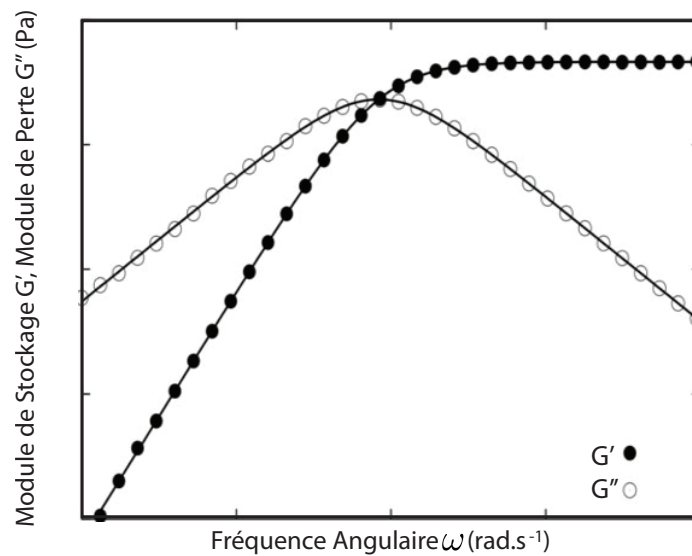


FIGURE 3.8 – Modules de stockage et de perte en fonction de la fréquence angulaire pour une microémulsion connectée. On observe un comportement parfaitement Maxwellien. D'après [28].

La figure 3.9 montre le comportement rhéologique linéaire et non linéaire du système utilisé pour tracer la figure 3.8. Cette courbe représente la contrainte de cisaillement et la première différence des contraintes normales en fonction du taux de cisaillement. Elle met en évidence le fait que le matériau suit un modèle de Maxwell convecté jusqu'à la rupture. En d'autres termes, le matériau est linéaire élastique jusqu'à ce qu'il casse.

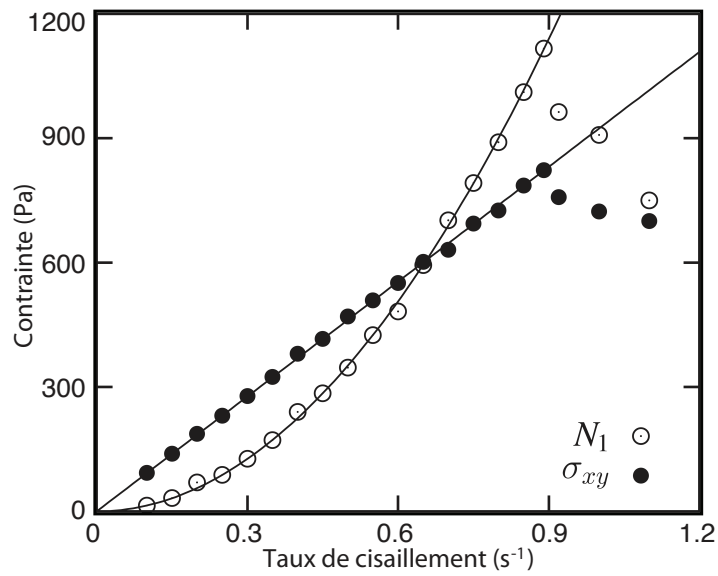


FIGURE 3.9 – Contrainte de cisaillement et première différence des contraintes normales en fonction du taux de cisaillement pour le matériau étudié en figure 3.8. Le comportement non linéaire suit un modèle de maxwell convecté. Le paramètre ajustable est donné par les mesures de la figure 3.8.

# Chapitre 4

## Dispositifs Expérimentaux

Nous présenterons dans ce chapitre les différents dispositifs expérimentaux utilisés au cours de ce travail. Partant de la géométrie la plus simple pour étudier des systèmes confinés dans une seule direction de l'espace, nous avons commencé par utiliser des cellules de Hele-Shaw simple en géométrie circulaire. Pour des raisons que nous préciserons, nous avons développé deux nouvelles expériences qui dérivent de cette dernière. Pour toutes les expériences que nous présentons, la température de la pièce est fixée à 21°C grâce à une climatisation.

### 4.1 La géométrie circulaire classique

#### 4.1.1 Dispositif

La géométrie circulaire utilisée est une cellule de Hele-Shaw dans laquelle on installe un dispositif d'injection au centre (figure 4.1). On a utilisé des plaques de verre de dimensions latérales  $200 \times 200\text{mm}$  et d'épaisseur  $10\text{mm}$ . Ce dispositif est constitué d'un embout permettant l'adjonction d'un tuyau en plastique souple qu'on relie d'abord à une vanne de purge, puis à un capteur de pression et enfin à un pousse seringue. Dans ce dispositif, on peut facilement faire varier la distance entre les plaques de verre<sup>1</sup> et étudier ainsi l'influence du confinement. On utilise des cales usinées de différentes épaisseurs que l'on a choisies de 0.5 à 5.2 mm.

---

1. Nous appellerons communément "gap" cette distance dans toute la suite du manuscrit

L'expérience est filmée par le dessus avec une caméra dont la fréquence peut être variée de 50 à 2000Hz selon la vitesse de ce qu'on veut observer. L'expérience dans le polyacrylamide étant quasi-statique, 50Hz suffisent. En revanche pour les matériaux viscoélastiques, la fréquence doit être augmentée selon les propriétés de réponse du matériau.

La pression d'injection est mesurée au moyen d'un capteur à diaphragme placé entre le pousse-seringue et l'injection de la cellule. La gamme de pression est assez variable selon les paramètres de chaque expérience. Ainsi, on a travaillé avec des capteurs de  $[0 - 200]$ mbar,  $[0 - 1]$ bar et  $[0 - 2.5]$ bar.

### 4.1.2 Protocole

L'étude systématique dans cette expérience s'est faite surtout sur le gel de polyacrylamide. Quelques expériences ont cependant été réalisées les micelles connectées.

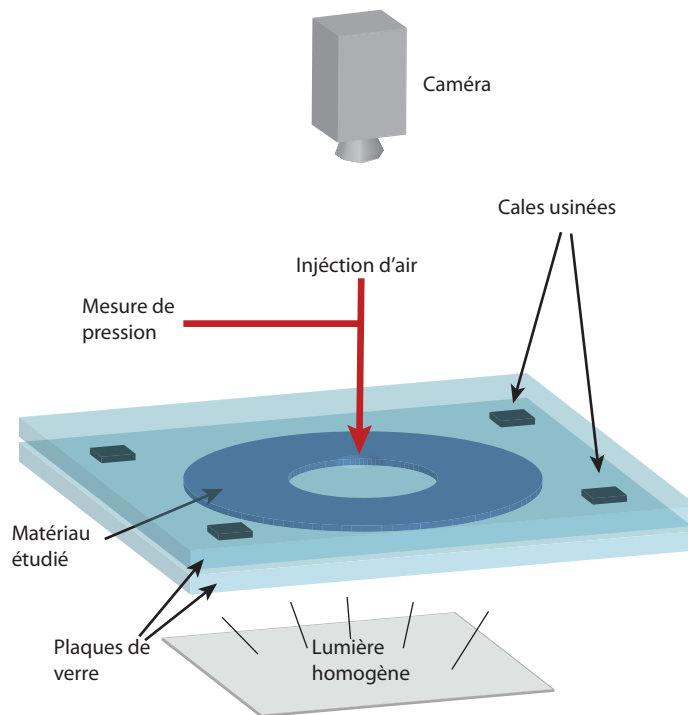


FIGURE 4.1 – Dispositif expérimental de la géométrie circulaire

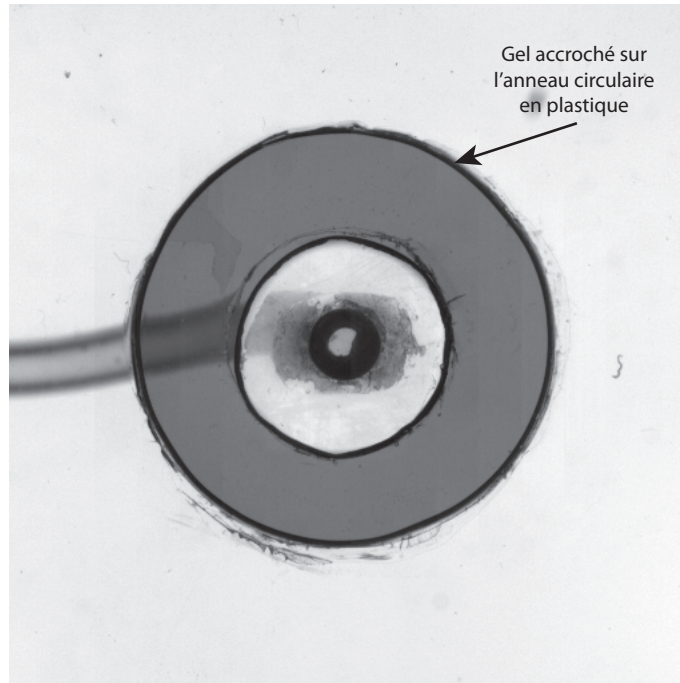


FIGURE 4.2 - "Galette" de gel bien circulaire lorsque la cellule est remplie

#### 4.1.2.1 Polyacrylamide

On remplit la cellule avant réticulation du gel, donc lorsque ce dernier est encore liquide. En raison de difficultés liées à la longueur capillaire, 2 différents protocoles doivent être utilisés selon la distance entre les plaques de verre.

Pour des gaps inférieurs ou égaux à 3.5mm la cellule peut-être facilement remplie lorsqu'elle est fermée, le liquide pouvant envahir tout l'épaisseur de la cellule. Reste à trouver un moyen de remplir la cellule de manière à avoir une galette de gel bien circulaire. Ceci n'est pas si évident à obtenir car le polyacrylamide est majoritairement constitué d'eau et mouille très mal le verre. Il en résulte que même en maintenant une horizontalité parfaite (ce qui est difficile avec de si basses viscosités), le front a tendance à "s'accrocher" en certains points. Il n'avance donc plus de manière circulaire. Pour remédier à cela, on dispose un anneau de plastique fin, du diamètre voulu pour la galette de gel, centré sur le trou d'injection. Le rôle de cet anneau est de créer un défaut de surface (artefact de mouillage) de taille suffisante pour que le front



s'accroche dessus et reste bloqué. Ainsi la progression irrégulière du front, liée au problème de mouillage, n'empêche pas la cellule de finir par être remplie de manière bien circulaire (figure 4.2). La condition initiale du front doit être maintenue circulaire et de diamètre contrôlé. Pour cela, on prélève par le trou central une quantité de gel suffisante - encore à l'état liquide - de manière à former une "bulle" du diamètre désiré.

Lorsque le gap est plus grand que deux fois la longueur capillaire (car il y a deux plaques de verres) la technique précédente ne marche plus, car le fluide n'envahit plus l'épaisseur. Cette fois-ci, on taille dans un carré en Plexiglas, d'épaisseur légèrement inférieure au gap, un trou de diamètre égal au diamètre de la galette de gel désirée. Cette pièce est ensuite coupée en deux. Les deux pièces ainsi formées sont positionnées sur la plaque de verre inférieure avec de la graisse silicone pour assurer l'étanchéité. On forme ainsi une sorte de petite piscine que l'on peut remplir un peu au-dessus du niveau du bord (car la surface s'accroche au bord). On positionne ensuite la plaque de verre supérieure par dessus.

La cellule ainsi remplie, il faut s'attacher ensuite à garantir des conditions initiales propres et reproductibles comme dans le protocole aux petits gaps. Cependant les problèmes de longueur capillaire interdisent toujours de simplement prélever du fluide au centre (on ferait croître une bulle à l'interface verre/gel). La méthode ici employée est de faire pénétrer par le trou et jusqu'à la plaque inférieure un cylindre en plastique. On peut ainsi imposer une condition initiale circulaire dans toute l'épaisseur. Cette méthode oblige donc à utiliser toujours le même diamètre pour la condition initiale. Cependant lorsqu'on prend n'importe quel plastique, on se rend compte que le démoulage du cylindre endommage l'interface car le gel prend autant à cet endroit qu'ailleurs. Kii *et al* ([91]) ont montré que la gélification du polyacrylamide est ralentie au contact d'un substrat en Téflon et qu'en plus, sur ce type de substrat, l'adhésion est plus mauvaise. On a donc utilisé un cylindre en Téflon pour la condition initiale. En attendant juste le temps qu'il faut, on peut ainsi retirer le cylindre avant que le gel soit pris à son contact, et vider l'eau, alors que toute la galette a déjà gélifié. Après cette étape, on peut également retirer les moules en Plexiglas.

#### 4.1.2.2 Micelles connectées

Pour les micelles connectées, l'étude en gap est moins pertinente. Ce dernier sera donc fixé à 2mm. Les problèmes de remplissage liés au mouillage ou à la viscosité ne se posent plus dans ce cas. Il est maintenant facile d'obtenir une galette bien circulaire. Ces matériaux se comportant comme des solides si ils sont sollicités à des vitesses élevées, le remplissage doit se faire à très basse vitesse. Le diamètre de la bulle initiale est fixé en injectant plus ou moins d'air à basse vitesse.

## 4.2 Le dispositif avec pistons

Les premières expériences en cellule de Hele-Shaw réalisées au tout début de cette thèse, visaient à reproduire des expériences de transition digitation visqueuse/rupture. Ces expériences ont été pour nous le point de départ d'une réflexion sur la sollicitation des matériaux viscoélastiques ou des matériaux traversant une transition de phase liquide/solide. Une question qui, au final, dépasse le simple aspect "digitation/fracture" s'en est dégagé : comment solliciter un matériau ayant des propriétés solides et/ou liquide selon les paramètres de l'expérience, dans les mêmes conditions géométriques ?

### 4.2.1 Une même géométrie pour solliciter liquides et solides

En utilisant des matériaux relativement mous et faciles à manipuler comme des gels, il est aisé de remplir une cellule de Hele-shaw circulaire classique ;

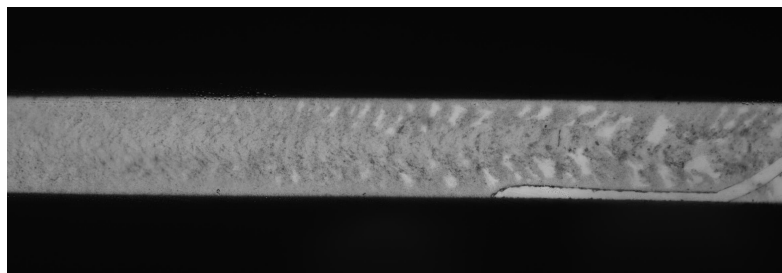


FIGURE 4.3 – Rupture initiée dans une cellule de Hele-Shaw linéaire. Les bords latéraux empêchent la fissure de se propager le long de l'axe central. Le matériau utilisé est un gel d'agar.

cependant cette expérience a montré ses limites pour trois raisons :

- D’abord, si on observe l’interface, la différence entre un doigt et une fissure n’est pas évidente à voir pour des matériaux mous, et l’est d’autant moins quand côté liquide le mouillage n’est pas parfait (on peut cependant envisager d’utiliser des particules pour faire de la corrélation d’image).
- Lorsqu’on étudie la fracture dans cette géométrie, la complexité de la réponse rend difficile l’interprétation, qu’on soit en contrôle de débit ou en contrôle de pression (déjà difficile à imposer expérimentalement).
- La réponse mécanique des solides chargés par l’injection d’un fluide (fracturation hydraulique) est difficile à modéliser.

Cela a donc motivé une recherche plus approfondie d’un dispositif permettant de solliciter liquides et solides de la même manière. L’idée la plus simple qui vient à l’esprit, au regard des nombreux travaux réalisés sur l’instabilité de Saffman-Taylor est d’utiliser une cellule linéaire, où le contrôle et la modélisation théorique sont à priori plus simple. Mais s’il est vrai que lors de la croissance d’un doigt, le champ de déplacement est majoritairement dirigé vers l’avant, il est perpendiculaire à la direction de propagation dans le cas d’une fissure. Si, comme on peut le voir sur la figure 4.3, la fissure n’a pas de place sur les bords pour s’ouvrir, alors la seule solution qu’elle trouve pour se propager est de tourner. On peut dire aussi que les bords induisent un cisaillement qui force la fissure à tourner. On voit là que les dispositifs mis en place pour étudier l’instabilité de Saffman-taylor ne sont pas du tout adaptés aux solides.

De cet essai peu fructueux, est née l’idée de, non plus souffler de l’air dans un canal confiné, mais d’aspirer de l’air en déplaçant les bords de la cellule. On pourrait ainsi, dans un solide, propager une rupture comme dans un test classique de mécanique, alors que dans le même dispositif, on pourrait aussi observer la digitation visqueuse dans un liquide, causée par l’aspiration liée au mouvement des bords. Nous avons construit une expérience de ce type (Fig.4.4). Une telle expérience pourrait fonctionner si l’adhésion du matériau aux bords était parfaite. Sauf que conditionner l’expérience à ce type d’effet n’est pas sans incidence du point de vue de la physique. L’adhésion est en effet un concept associé aux solides. Que se passerait-il donc dans un régime de transition liquide/solide ? Pourrait-on vraiment considérer cette sollicitation

comme équivalente, du côté liquide comme du côté solide ? D'autre part, dans ce dispositif, la différenciation morphologique entre un doigt et une fissure pour des matériaux mous est toujours complexe, puisqu'ils se propagent dans la même direction. C'est cependant surtout une difficulté technique qui nous aura poussé à complètement abandonner ce prototype. En effet, les gaps étant de l'ordre du millimètre, côté solide, il est difficilement envisageable de pouvoir obtenir une bonne adhésion sur toute la longueur du bord mouvant sur de si petites épaisseurs.

On a donc construit un autre dispositif, toujours avec l'idée de faire se mouvoir les bords, comme pour un test de rupture, plutôt que d'injecter de l'air. Il s'agit d'une cellule de Hele-Shaw, formée de deux plaques de verre rectangulaires dont l'une, celle du dessus, est percée en son centre. Les bords sont fermés sur la grande longueur, tandis que des parois mobiles peuvent être glissées comme des pistons par les petits côtés (figure 4.5). Ainsi, lorsqu'on tire sur ces pistons, et donc qu'on aspire de l'air par le trou central, si le matériau est liquide, l'interface progresse dans le sens du gradient de pression

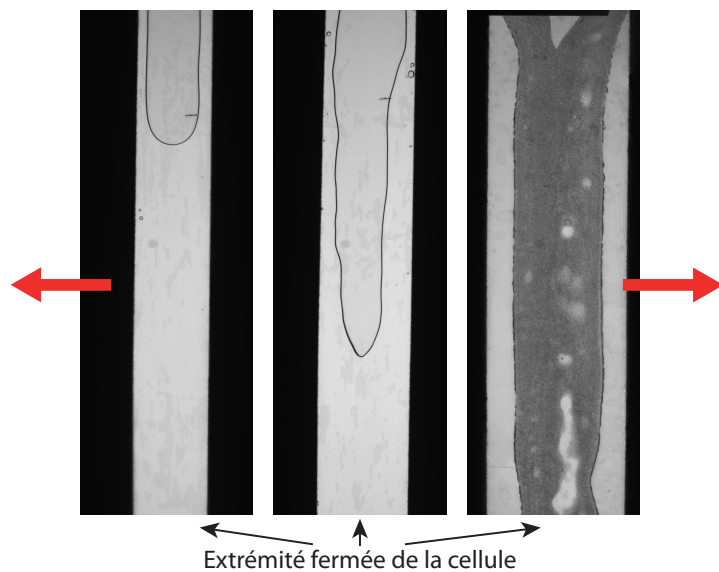


FIGURE 4.4 – Observations expérimentales réalisées avec le premier prototype à bord mouvant, dans un gel d'agar plus ou moins gélifié. Gauche : avant la transition sol/gel (phase sol). Centre : autour de la transition. Droite : après la transition (phase gel). Les bords mobiles s'écartent dans la direction des flèches.

créé par les pistons, c'est-à-dire le long de la direction suivant laquelle ils se déplacent. Alors que si le matériau est solide, et qu'il se rompt, la fissure se propage dans le sens perpendiculaire au mouvement des pistons, comme dans une expérience de rupture classique (Fig. 4.6).

Une remarque importante, est que maintenant, le contact matériau/piston est assuré par succion. Moyennant un bon contrôle de l'étanchéité de la cellule - ce qui demande une bonne précision dans la construction de la cellule qui doit également permettre la translation des pistons dans un axe précis - on évite ainsi le décollement du solide au niveau des parois mobiles. De plus, l'aspiration d'air plutôt qu'un autre fluide, facilite la tâche expérimentale, tout en garantissant un contrôle du débit, en général impossible en injection avec de l'air en raison de sa compressibilité. On a donc une différence claire entre une réponse liquide et une réponse solide, sans passer par une étude morphologique complexe (Fig. 4.6). La géométrie mise au point peut ainsi être vue comme une sorte de compromis entre une cellule de Hele-Shaw linéaire et un test de déformation en tension dans un solide. L'étude des transitions doigts/fissures n'est cependant pas le thème central de cette thèse. On pourra trouver en annexe quelques résultats expérimentaux réalisés à travers la transition liquide/verre attractif ou répulsif d'une suspension colloïdale de Laponite. On va voir par la suite, et cela constituera le corps de ce manuscrit, qu'en utilisant un gel de polyacrylamide, on peut former des doigts de nature élastique, mais ces derniers ne présentent aucune directionnalité particulière (Fig. 4.6).

### 4.2.2 Dispositif

La cellule est fermée d'un côté grâce à des cales rectangulaires en aluminium dural (alliage d'aluminium et de cuivre) usinées pour permettre d'imposer proprement un gap à 2.1mm. Elles permettent également le guidage mécanique des pistons lors de leur mouvement. Leurs parois latérales doivent donc aussi être usinées. Les petits côtés de la cellule sont fermés par les pistons fabriqués eux aussi en dural et reliés à deux moteurs linéaires pas à pas synchronisés pouvant imposer des vitesses allant de 10  $\mu\text{m/s}$  à 100mm/s. Pour ajuster mécaniquement ces différents éléments on a construit un support permettant de serrer les cales sur les pistons comme le montre la figure 4.7. L'étanchéité est assurée au niveau des cales par un fin film de graisse silicone. En revanche, pour la surface des pistons, qui doivent être mobiles,

la graisse ne fonctionne pas bien. D'abord parce qu'elle pollue l'échantillon et ensuite parce qu'elle n'empêche pas l'air de finir par entrer à l'interface piston verre et donc d'empêcher la sollicitation d'être bien homogène. Il faut donc trouver un système permettant de rendre étanche le piston tout en assurant sa mobilité. On a donc fait usiner des gorges dans le piston destinées à recevoir un matériau assurant cette fonction. Les caoutchoucs classiques ne peuvent pas être utilisés, car s'ils assurent aisément une bonne étanchéité, ils

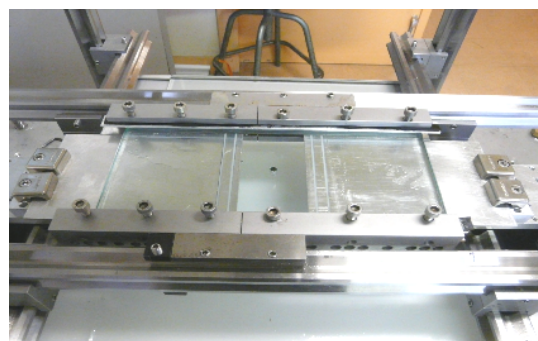
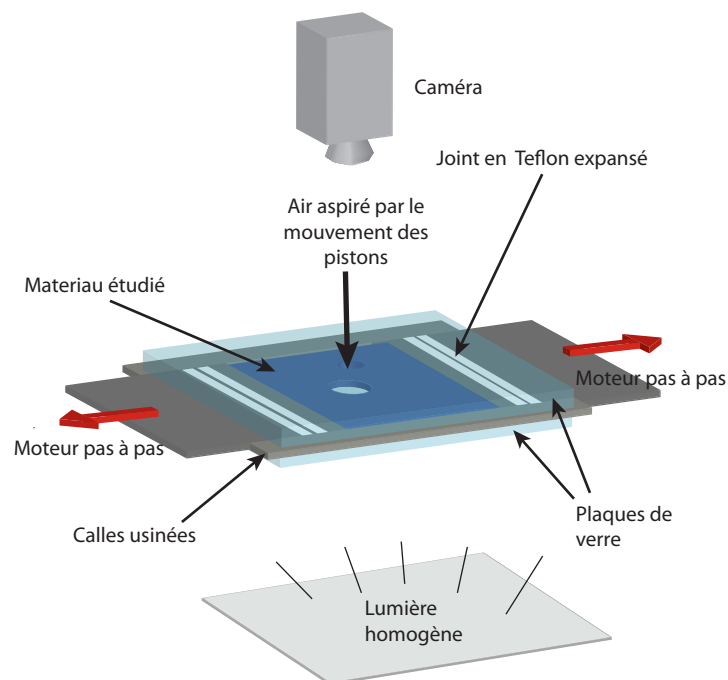


FIGURE 4.5 – (a) : Schéma du dispositif avec pistons (b) : Photo du dispositif avec pistons

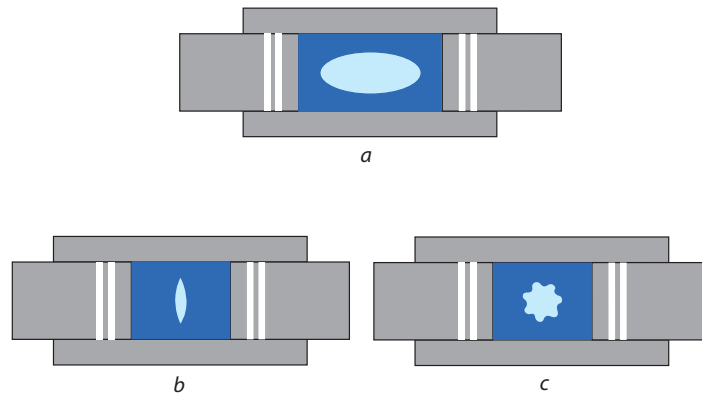


FIGURE 4.6 – Principe de l'expérience pour le dispositif avec pistons. (a) : Lorsque le matériau est liquide, on observe un doigt dans le sens du mouvement des pistons. (b) : Lorsque le matériau est solide et peu déformable, on observe une fissure dans la direction perpendiculaire à la trajectoire des pistons. (c) : Lorsque le matériau est solide et très déformable, on observe une instabilité de digitation sans directionnalité.

bloquent complètement le piston, qui ne peut plus être tiré par les moteurs. Le matériau trouvé qui possède les meilleures propriétés de ce point de vue, est le Teflon. Cependant sous sa forme habituelle il est trop dur pour être bien étanche, c'est à dire bien épouser les formes de l'interstice piston-verre. On a donc utilisé du Teflon expansé, qui peut-être plus ou moins compressé selon les aspérités, et donc s'adapter parfaitement à la forme de l'interstice verre/piston.

D'autre part, un dispositif permet, comme sur l'expérience précédente de filmer par dessus. Pour cette expérience, on a fixé la vitesse des moteurs à 5mm/s pour le polyacrylamide, car à cette vitesse quels que soient les paramètres de l'expérience (module élastique, diamètre initial, etc...), la cellule reste bien étanche. Le débit imposé peut donc être calculé par la relation  $Q = 2 \times W \times b \times V$  où  $W$  est la largeur de la cellule et donc des pistons,  $b$  l'espacement entre les deux plaques de verre et  $V$  la vitesse des pistons. Ainsi, pour le polyacrylamide, on a  $Q = 126\text{ml}/\text{min}$ . La vitesse des pistons fixe la vitesse à laquelle se produisent les phénomènes observés et donc les fréquences d'acquisition à imposer à la caméra. Pour le polyacrylamide, la fréquence est alors de 1500Hz, tandis que 30Hz suffisent dans la laponite.

Pour les viscoélastiques, la fréquence est choisie en fonction de la réponse du matériau et du régime que l'on veut observer. On a également construit un support permettant de filmer l'instabilité avec un angle, par le côté, pour avoir une idée de la phénoménologie dans l'épaisseur.

Dans ce dispositif, il n'est pas aisé de changer le gap, qui est fixé par les cales et les pistons. En revanche il est facile de changer l'espacement initial entre le trou central et les pistons. Le support a également été pensé pour une grande versatilité. On peut facilement changer la longueur de la cellule ou sa largeur (moyennant la fabrication de nouveaux pistons).

### 4.2.3 Protocole

Le protocole de remplissage est le même que dans la cellule circulaire pour les petits gaps. La cellule est remplie avant gélification pour le polyacrylamide, ou très lentement pour les micelles connectées. Pour que cette étape soit réalisable, la cellule ne doit pas être étanche pendant cette étape. Les vis ne sont donc pas serrées tout de suite et les parties latérales ne sont pas encore ajustées sur les pistons. Une fois cela réalisé, on peut rendre étanche la cellule. La taille du diamètre initial est alors choisie en prélevant le surplus de gel encore à l'état liquide dans le cas du polyacrylamide. Il suffit ensuite d'attendre la gélification pour réaliser l'expérience.

Dans le cas des micelles, on ajuste le diamètre initial en déplaçant très lentement les pistons, après avoir fixé la cellule au support et aux moteurs. Pour choisir la taille de la bulle initiale, la vitesse doit-être choisi intelligem-

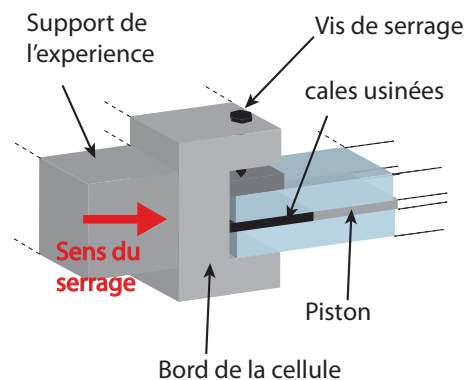


FIGURE 4.7 – Principe de serrage de la cellule



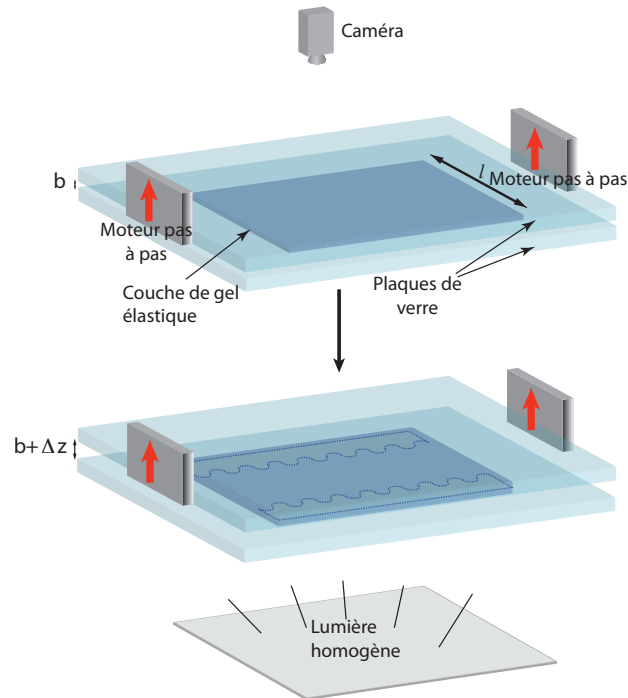


FIGURE 4.8 – Schéma du dispositif de l'expérience en front plan

ment car ces fluides sont très visqueux et nous avons vu au chapitre 1 que dans ce cas là, un film de mouillage d'épaisseur non négligeable, variable avec la vitesse de l'interface, peut rester derrière l'interface et modifier le gap effectif de l'expérience. Pour pouvoir estimer cet artefact, le cas échéant, nous choisissons de fixer la vitesse des pistons à  $0.01\text{mm/s}$  pour tous les fluides viscoélastiques, pendant l'initialisation de la bulle.

### 4.3 L'expérience en front plan

Cette expérience a été conçue pour avoir une géométrie plus simple du point de vue de la digitation élastique, qui permette plus facilement des développements théoriques et donc une meilleure compréhension du phénomène.

### 4.3.1 Dispositif

Le dispositif est constitué de deux plaques de verre séparées par un espacement initial bien contrôlé, que l'on peut faire varier grâce à deux moteurs linéaires synchronisés (figure 4.8). Un support permet de fixer la plaque de verre inférieure tandis que les moteurs imposent une translation seulement à la plaque supérieure (figure 4.9). La géométrie des plaques de verre est choisie pour permettre une installation facile de la cellule sur le dispositif. La plaque supérieure a pour dimension  $200 \times 200 \times 10\text{mm}$  et la plaque inférieure  $125 \times 400 \times 10\text{mm}$ . Lorsque la cellule est positionnée sur le dispositif, on lui a imposé un gap initial - dans lequel le gel a pris - grâce à des cales usinées. On a fixé sur les platines des moteurs une pièce en métal traversée par des vis pointues. Lorsque la pièce est suffisamment rapprochée par les moteurs, de la plaque supérieure, on amène manuellement les pointes de vis en butée (pour mieux sentir la butée on peut poser un poids sur la plaque supérieure). On ajuste ainsi précisément les points de contact moteur/plaque supérieure, de manière à n'avoir aucun jeu à déplacement nul, et à respecter le gap initial imposé (figure 4.9). Ces vis, une fois ajustées, sont bloquées par des écrous disposés sous la pièce pour être facilement accessible. On évite ainsi tout jeu pouvant être créé par le mouvement ou les forces appliquées sur les vis pendant l'expérience. Les gaps initiaux varient entre 0.28mm et 10.60mm.

La visualisation est assurée par une caméra dont on fait varier la fréquence de 50 à 2000Hz selon les rapports d'aspects de l'échantillon et la vitesse de translation de la plaque supérieure. La distance caméra-cellule peut également être variée selon la taille de la zone à filmer (plus petite pour les petits gaps).

Le déplacement imposé par les moteurs reste dans tous les cas bien symétrique, mais cependant lorsque les forces deviennent fortes (petit gap) le dispositif a tendance à se courber et l'effet se ressent sur les déplacements. Ces derniers, que l'on croit imposer aux moteurs ne sont pas ceux qu'on observe réellement. Pour les expériences de réversibilité (chapitre 6) on a donc utilisé un capteur inductif pour mesurer précisément les déplacements de la plaque de verre supérieure. On a pu d'ailleurs remarquer que cet effet est observé pour des gaps inférieures à 2.5mm.

### 4.3.2 Protocole

La difficulté du protocole à définir est de réussir à former des fronts bien linéaires et sans défaut où pourraient nucléer des fissures avant l'observation

de la digitation. Les bandes de gel doivent également être bien symétriques car la géométrie influence les paramètres d'initiation de l'instabilité. On a donc créé un moule en deux parties permettant de faire varier la largeur de l'échantillon, mais de fixer sa longueur à 195mm. Pour les mêmes raisons invoquées en 4.1.2.1 le matériau choisi pour ces moules est le Teflon, l'utilisation du caoutchouc, de métaux ou de plastique courant provoquant la création de défauts et d'amorces de fissures interfaciales au contact gel/paroi (figure 4.10).

Pour le remplissage de la cellule, on choisit d'abord les cales usinées permettant d'imposer le gap initial. On les installe en 4 points de la cellule sur lesquelles la plaque supérieure pourra être posée, sans gêner la surface destinée à recevoir le gel. On positionne ensuite les pièces du moule, choisies légèrement moins épaisses que les cales pour pouvoir facilement être enlevées par la suite. On peut, si besoin, ajouter de la graisse au-dessous des moules pour assurer l'étanchéité. On remplit ensuite avec le gel encore à l'état liquide et on positionne la plaque supérieure en s'assurant qu'elle est bien centrée.

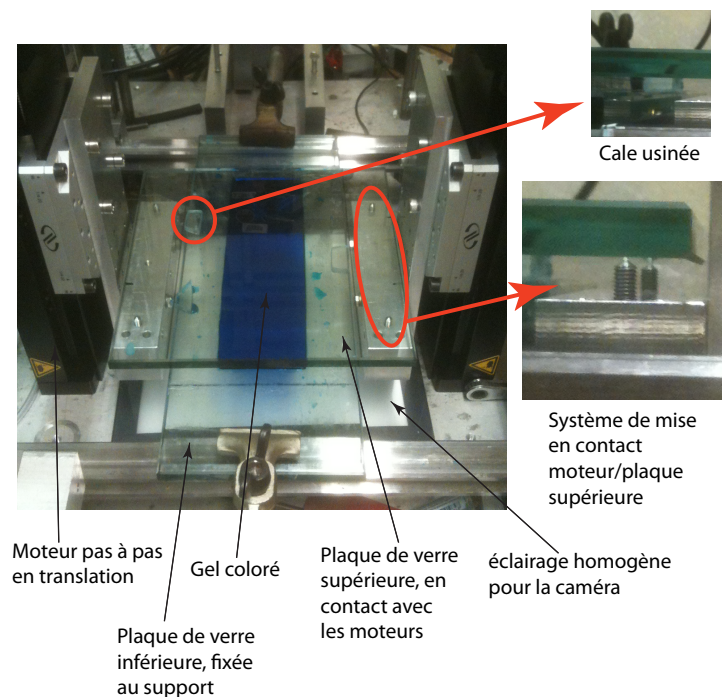


FIGURE 4.9 – Schéma du dispositif de l'expérience en front plan

Les pièces du moule en Teflon sont ensuite retirées quelques instants après le début de la gélification, qu'on peut par exemple observer dans un becher à côté de la cellule, ou bien pendant une mesure simultanée de rhéologie. L'eau restée au contact du moule est évacuée et il ne reste que le gel pris, à proximité mais pas au contact des moules. L'interface obtenue est alors bien plane et contient peu de défauts.

Avant d'installer la cellule sur le dispositif de sollicitation, on attend le temps nécessaire à la formation d'un gel à module élastique constant. Les mesures rhéologiques ont montré que pour un temps d'attente de 2 heures, tous les gels utilisés atteignent un module stationnaire. La vitesse des moteurs est fixé à 2 mm/s pour tous les gaps. Un tel choix est lié au fait que nous avons remarqué qu'avec ce protocole, à basse vitesse, la fracturation interfaciale, dont l'initiation est vitesse dépendante, est observée avant qu'on puisse nucléer des doigts élastiques. La vitesse est cependant choisie suffisamment basse pour ne pas faire intervenir de mécanisme inertiel, tel que la propagation d'ondes de surface.

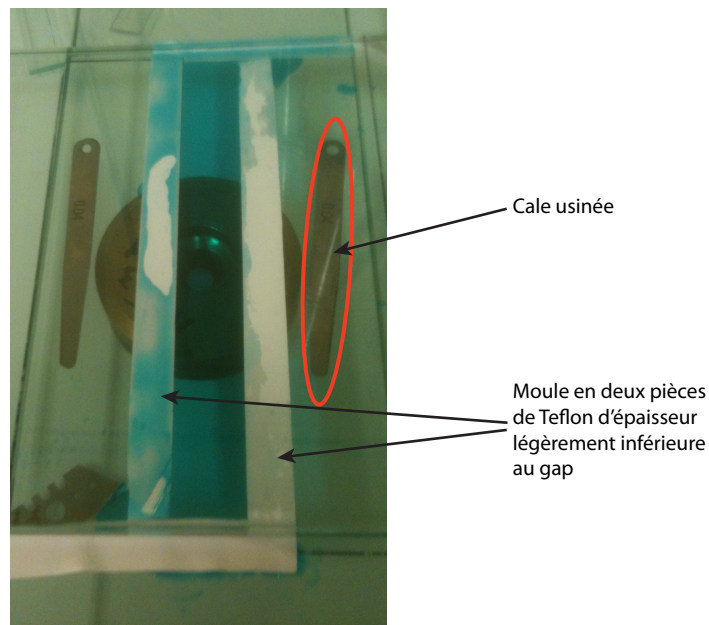


FIGURE 4.10 – Moule utilisé, ici pour un gap de 0.6mm.

Cependant, les propriétés d'adhésion semblent changer proche de l'interface lorsqu'on attend plus. Cela est sûrement dû à une évaporation au niveau de la ligne triple gel/verre/air. On peut ainsi faire des expériences à vitesse beaucoup plus faible en attendant plus longtemps. Pour voir cet effet il faut attendre environ 8 à 10h ce qui rend le protocole moins adapté aux études systématiques. Cependant, des expériences à plus basse vitesse ( $V = 0.1\text{mm/s}$ ) nous ont permis de vérifier qu'il n'y a pas d'effet inertiel remarquable sur les grandeurs mesurées pendant l'étude systématique, où  $V = 2\text{mm/s}$ .

# Chapitre 5

## La digitation élastique, premières observations

Dans cette partie, nous présentons les premières observations de l'instabilité de digitation élastique. Ces dernières ont été réalisées dans la cellule circulaire (dispositif 1) ainsi que dans la cellule avec pistons (dispositif 2). Dans cette dernière, la géométrie peut également être considérée comme circulaire, au moins pour de petits déplacements des pistons. La sollicitation est cependant anisotrope.

### 5.1 Une instabilité dans le volume

La figure 5.1 montre une observation dans le dispositif 2 de l'instabilité observée lorsqu'on filme par au-dessus. On a tiré de manière synchronisée sur les deux pistons, de façon à aspirer de l'air à l'intérieur du gel. On observe la formation très nette de doigts qui se propagent dans le matériau. Cette apparition se fait de manière séquentielle et semble se faire à chaque fois soudainement, comme lors d'une transition du premier ordre. Pour des vitesses de piston suffisamment élevées, on peut également observer une onde élastique se propager le long de l'interface, à la formation de chaque doigt. Cette dernière observation suggère un mécanisme purement élastique. A ce stade, cela n'exclut cependant pas un processus interfacial, de rupture ou de glissement. Ainsi on peut imaginer qu'on observe une rupture interfaciale (fig.5.2(a)) telle qu'elle a été observée dans les expériences de décollement décrites au chapitre 1 ou bien un glissement de tout le gel dans l'épaisseur

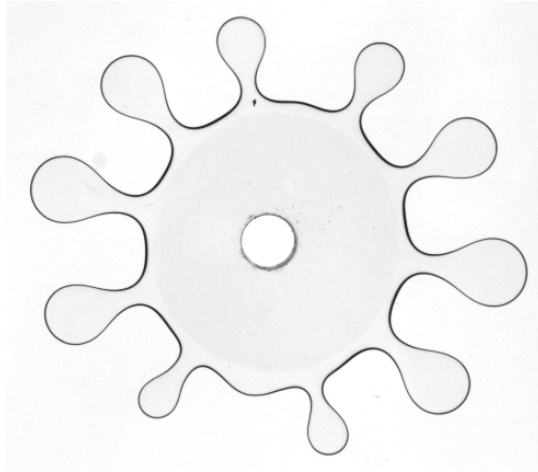


FIGURE 5.1 – Photo prise par dessus de l’instabilité de digitation pendant une expérience dans le dispositif avec pistons.

(fig.5.2(b)), conduisant à une instabilité de flambage. La dernière possibilité serait la propagation de doigts dans le volume de ce dernier (fig.5.2(c)), comme dans l’instabilité de digitation visqueuse dans les liquides ([2]). Cela impliquerait une adhésion parfaite du matériau sur les plaques de verre.

Pour répondre plus en détail à cette question, nous avons réalisé des observations de l’instabilité en filmant sous incidence rasante, et en ajoutant des colorants dans le matériau, pour voir si du gel reste en amont de la tête du doigt lors de sa propagation. La figure 5.3(a) représentant une photo prise lors de la propagation des doigts, montre d’abord que du gel est présent dans le doigt, derrière son extrémité. Ce résultat exclut donc la possibilité d’un glissement aux parois. D’autre part, cette image montre clairement des ménisques sur tous les doigts, ce qui suggère, comme dans une bulle de gaz piégée dans un liquide, que le mécanisme a lieu dans le volume. Cela est confirmé par une observation faite au stade suivant de l’instabilité. Lorsqu’on continue à souffler, contrairement à ce à quoi on pourrait s’attendre, le matériau ne casse pas au niveau de l’extrémité du doigt mais à sa base. Cette rupture du film de gel conduit ensuite à une rupture interfaciale. Cet effet est clairement observé dans la figure ( 5.3(b)). On distingue alors très nettement la différence entre une propagation en volume et une rupture interfaciale, qui dans le cas de notre matériau, très déformable, est caractérisée par la présence de deux fronts, l’un au-dessus, correspondant à la rupture interfaciale (le plus fin) et l’autre correspondant à une déformation du matériau,

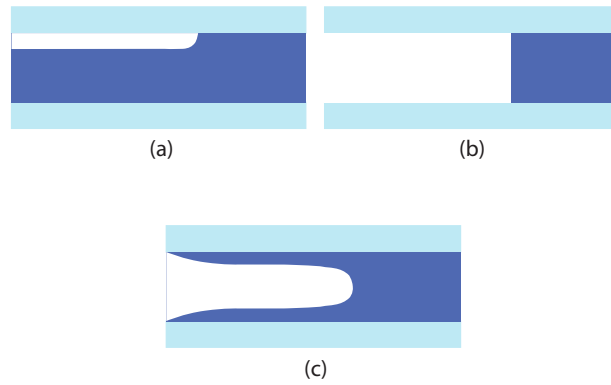


FIGURE 5.2 – Schéma illustrant les différentes possibilités pour le profil. (a) : Fissure interfaciale. (b) : Glissement dans toute l'épaisseur. (c) : Déformation dans toute l'épaisseur avec condition de non glissement et adhésion aux parois

dans le volume, au-devant de ce front de rupture. Nous avons donc là une confirmation expérimentale du caractère en volume de l'instabilité de digitation que nous observons, qui est rendu possible grâce à une adhésion "parfaite" du matériau sur les plaques de verre. On voit d'ailleurs sur les vidéos que la couche de gel ne glisse à aucun moment. Notre matériau étant purement élastique, cela suggère donc un mécanisme d'instabilité purement élastique.

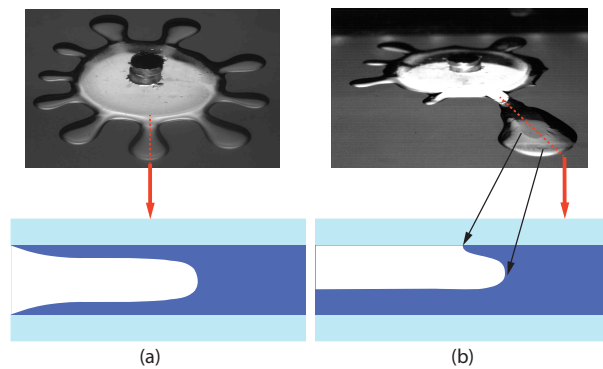


FIGURE 5.3 – Schéma illustrant les différentes possibilités pour le profil. (a) : Fissure interfaciale. (b) : Glissement dans toute l'épaisseur.



## 5.2 Une instabilité purement élastique

Une des caractéristiques principales d'une instabilité à caractère élastique est sa réversibilité liée au fait que l'énergie stockée pendant une déformation, doit être restituée lors du retour à l'état initial. Ainsi, dans notre cas, cela doit être vérifié. On a donc effectué des tests de réversibilité en injectant de l'air avec une seringue et en mesurant simultanément la pression, dans le dispositif 1. On observe alors que l'instabilité est complètement réversible, ce qui confirme son caractère purement élastique<sup>1</sup>.

On définit la déformation de l'interface dans le plan  $(x, y)$  médian du matériau comme  $\gamma = (P - P_i)/P_i$ , où  $P$  est le périmètre de l'interface et  $P_i$  le périmètre initial et on trace en figure 5.4,  $\gamma$  en fonction de la pression  $\Pi$  pendant un cycle gonflement/dégonflement. On observe bien une totale réversibilité de l'instabilité. A l'aller, on a d'abord une croissance linéaire suivie soudainement d'un plateau, correspondant à la formation de nouveaux doigts. Cette brisure de pente peut-être définie comme la déformation critique  $\gamma_c$  de l'instabilité. Au retour, on a un remarquable comportement hystérétique avant de revenir exactement sur la courbe d'aller. Ce résultat est fort, car il suggère une instabilité sous-critique et non super critique, comme c'est le cas pour l'instabilité de Saffman Taylor. Les développements théoriques pour décrire ce système sont donc plus subtils à mettre en place car la théorie des perturbations est plus difficilement utilisable. Ce résultat est également très différent de celui obtenu par [18] (cf chapitre 1) où la réversibilité est totale et l'hystérésis non visible.

Dans le dispositif 2, la déformation critique ne peut pas être déterminée grâce à des courbes pression/déplacement, car la bulle est à pression ambiante. Il faudrait mesurer la force exercée sur les pistons, ce qui n'est pas envisageable vu les forces de friction mises en jeu dans le dispositif. Cependant, comme l'air n'est alors pas comprimé, on impose rigoureusement le débit. Ainsi, lorsqu'on trace l'évolution du périmètre de la forme observée en fonction du temps, on peut clairement distinguer les différentes étapes de l'instabilité suivante (fig.5.5) :

1. La bulle commence à croître de manière bien circulaire. L'évolution du périmètre est quasi-linéaire avec le temps.

---

1. On a également effectué des expériences où la digitation est maintenue sur une longue durée pour vérifier qu'il n'y a pas de dissipation, même si la rhéologie le suggère déjà fortement

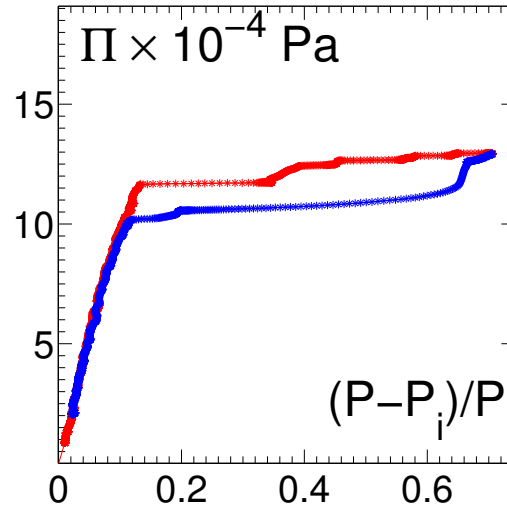


FIGURE 5.4 – Courbe d'hystérésis

2. La bulle se déstabilise et les doigts commencent à se former. Le périmètre augmente d'un coup et de manière très abrupte, présentant quelquefois des "marches".
3. Une fois que tous les doigts sont formés, ces derniers sont gonflés individuellement. On retrouve une évolution quasi-linéaire du périmètre avec le temps.
4. Le film laissé en arrière de la tête du doigt est tellement étiré qu'il casse et cette fissure fini par se propager à l'interface.

Ces observations sont très robustes et compatibles avec toutes les expériences. Ainsi on peut définir la déformation critique de l'instabilité  $\gamma_c$  comme étant la valeur à laquelle la première brisure de pente (fin de l'étape (1)) est observée, comme dans le cas de l'injection avec la courbe pression/déplacement. On peut également définir une déformation à rupture  $\gamma_R = (P_R - P_i)/P_i$  où  $P_R$  est le périmètre à rupture correspondant au moment où le gel casse (fin de l'étape (3)).

Pour analyser plus en profondeur le mécanisme de cette instabilité, on va maintenant essayer de comprendre à quels paramètres est sensible cette déformation critique. On fait donc des expériences dans les deux dispositifs en faisant varier le diamètre initial de la bulle  $D_0$ , le gap  $b$  quand c'est possible (fixé à 2.1mm dans le dispositif 2) et le module élastique  $G$ .

Pour les paramètres géométriques, on a remarqué que les déformations

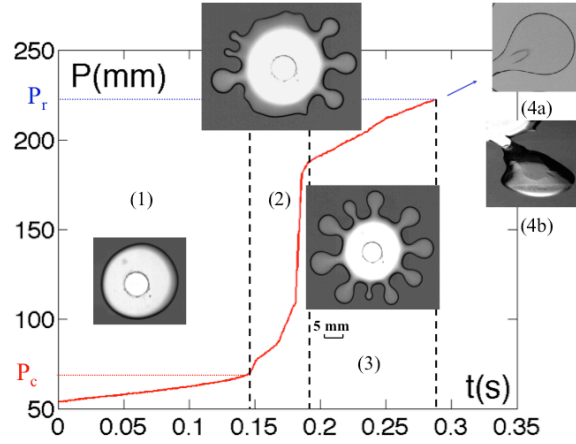


FIGURE 5.5 – *Perimètre de la forme observée en fonction du temps*

critiques ne dépendent pas indépendamment de  $b$  et de  $D_0$ , mais uniquement du rapport  $b/D_0$ . En figure 5.6, on a tracé l'évolution de  $\gamma_c$  en fonction de ce paramètre géométrique  $b/D_0$  pour un  $G$  donné. On remarque que pour les deux expériences les comportements sont compatibles avec une loi linéaire. Les différences de pente ne sont pas surprenantes vu que les sollicitations et donc les répartitions de contraintes diffèrent. Il y a donc une légère influence de la géométrie sur la valeur de la déformation critique, bien que le mécanisme de l'instabilité reste le même. Dans le cas de la cellule circulaire, la courbe expérimentale (bleu) donne :

$$\gamma_c \sim \frac{2b}{D_0} \simeq \frac{b}{R_0} \quad (5.1)$$

or, d'après la définition de  $\gamma_c$  qu'on a donné :

$$\gamma_c = \frac{R_c - R_0}{R_0} \quad (5.2)$$

soit :

$$\frac{R_c - R_0}{R_0} \simeq \frac{b}{R_0} \quad (5.3)$$

qui se simplifie :

$$R_c \sim b + R_0 \quad (5.4)$$

Si on définit l'avancé du front  $W_c = R_c - R_0$ , on en déduit :

$$W_c \sim b \quad (5.5)$$

L'avancée du front à partir de laquelle le front se déstabilise est donc le gap  $b$  pour la sollicitation circulaire, quelque soit le paramètre géométrique  $b/D_0$ .

Un des résultats majeurs de cette analyse est le comportement de cette déformation critique en fonction du module élastique. Ainsi, sur la figure 5.7 on compare les comportements de  $\gamma_c$  et de  $\gamma_R$  avec  $G$  pour des dimensions données ( $b/D_0$  fixé). La déformation à rupture décroît avec le module, ce qui est en général le cas pour les matériaux élastiques fragiles. En revanche, de manière beaucoup plus étonnante, la déformation critique ne varie pas du tout avec  $G$ . Ce résultat est très fort, car il donne une bonne indication de la nature du mécanisme de la déstabilisation sur la plage de modules étudiés (80-1080Pa) en excluant du bilan énergétique tout autre contribution que l'énergie élastique. En effet, si la tension de surface, l'adhésion ou la dissipation jouait un rôle, la modification du module devrait affecter le seuil de l'instabilité. Un mécanisme dissipatif est d'autre part exclu par les courbes de rhéologie. On voit aussi sur les images réalisées avec un gel coloré que des niveaux de gris sont très distinctement visibles derrière le front (Fig.5.5). Cela indique que le gel reste bien collé au contact du verre. Enfin, le fait que la tension de surface ne contribue pas, semble confirmé par

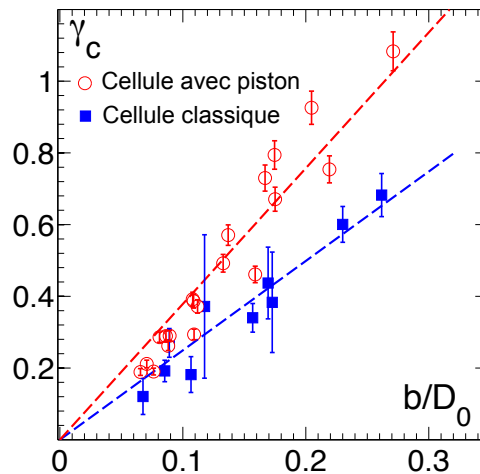


FIGURE 5.6 – Déformation critique  $\gamma_c$  en fonction du paramètre de contrôle  $b/D_0$ , pour les deux dispositifs utilisés.

la figure 5.8 où l'on compare un doigt formé par injection d'huile de silicone V20 (fig.5.14(a),  $\gamma_{V20/eau} = 20,6mN/m$ ) et un doigt formé par injection d'air (fig.5.8 (b),  $\gamma_{air/eau} = 72,8mN/m$ ). On voit que les deux doigts sont très similaires.

La courbe  $\gamma(G)$  montre également que le comportement de  $\gamma_R$  finit par croiser celui de  $\gamma_c$ , ce qui suggère que l'instabilité de digitation n'est plus visible pour des modules plus grand que  $\sim 1100Pa$ , ce que nous avons observé. Pour un gel d'un module supérieur à 1080Pa, pour ce matériau, la digitation élastique devrait survenir pour une déformation critique plus grande que la déformation à rupture. Le phénomène de rupture est donc observé avant. En d'autres termes, le matériau doit être suffisamment déformable pour que la digitation soit observée.

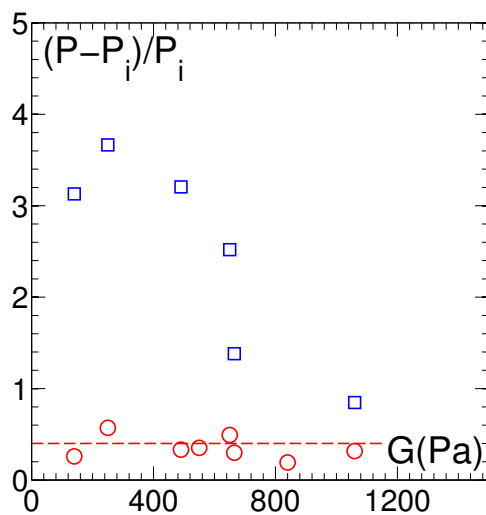


FIGURE 5.7 – Déformation critique  $\gamma_c$  et déformation à rupture  $\gamma_r$  en fonction du module élastique. Pour chaque gel utilisé, avant réticulation, une petite partie de la solution de polyacrylamide est placée dans un rhéomètre pour une mesure simultanée du module élastique et de la courbe contrainte/déplacement.  $D_0 = 15mm$ .

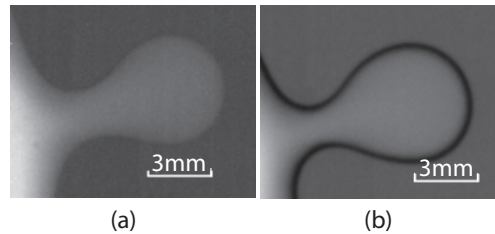


FIGURE 5.8 – Doigts formés dans les mêmes conditions (même paramètre géométrique) en injectant de l’huile de silicone Rhodorsil V20 (a) ou de l’air (b).

### 5.3 Largeur des doigts et mode de l’instabilité

Après avoir identifié le type d’instabilité, son origine, son paramètre d’ordre ainsi que ce qui semble être son paramètre de contrôle, on va maintenant essayer de comprendre l’influence de la géométrie sur les échelles de longueur du problème. La première chose qui vient à l’esprit est d’essayer de comprendre comment est paramétré la longueur d’onde de déstabilisation. Cependant, comme les doigts apparaissent de manière séquentielle, et la géométrie étant circulaire, il est très difficile de détecter des ondulations de l’interface au seuil de l’instabilité, comme on le verrait très bien pour la digitation visqueuse. La longueur la plus simple à mesurer et la plus robuste est la largeur du doigt formé  $\delta$ , mesurée à sa base (fig.5.9).

Si l’on observe comment cette largeur évolue pendant la formation du doigt, on peut alors donner la description suivante : le doigt commence à nucléer et sa largeur augmente en restant uniforme de sa base à sa tête, jusqu’à atteindre un stade où un col se forme à la base du doigt. La largeur au niveau du col augmente ensuite en même temps que le reste du doigt. Pour avoir une mesure robuste de la largeur du doigt, il faut définir un stade précis de cette croissance où la dispersion sera la plus faible possible. Sur la figure 5.9, les barres d’erreurs rouges représentent l’écart type de la mesure de tous les doigts pour une expérience donnée alors que les barres d’erreurs noires correspondent à l’erreur de mesure. Les meilleurs résultats ont été obtenus pour la mesure de la largeur juste avant la formation du col. Cette longueur n’est donc pas une longueur d’onde et il n’existe pas, à proprement parler,

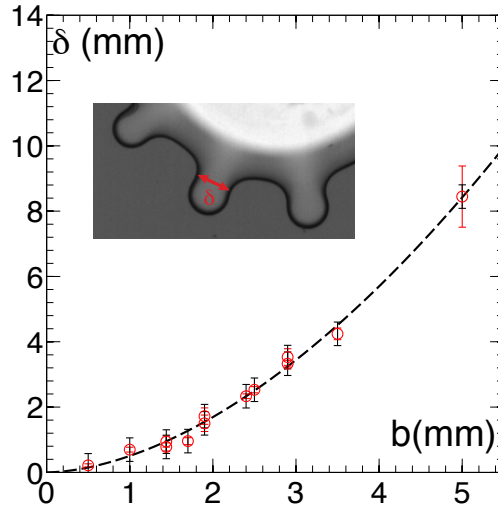


FIGURE 5.9 – Largeur  $\delta$  des doigts en fonction du gap  $b$ .

de relation simple entre  $\delta$ ,  $D_0$  et le mode  $n$ .

Pour comprendre l'effet du confinement, nous avons analysé l'influence du gap sur  $\delta$  et sur  $n$ . On a ainsi tracé en figure 5.9 l'évolution de  $\delta$  en fonction du gap  $b$ . On remarque que la relation entre ces deux grandeurs est non-linéaire, ce qui suggère donc qu'une autre longueur entre en jeu dans le problème. Si l'on trace maintenant l'évolution de  $\delta$  en unités de  $b$  en fonction de  $b/D_0$  alors on retrouve une relation affine (fig.5.10). Cette dernière est bien compatible avec la relation non linéaire trouvée en figure 5.9. En revanche elle est très différente de ce qu'on aurait pour une longueur d'onde, qui relierait de manière simple  $n$ ,  $\delta$  et  $D_0$  (courbe constante, ligne en pointillé sur fig.5.10). L'ajustement affine observé suggère que la relation triviale  $\delta \propto b$  est vérifiée seulement pour les petites valeurs de  $b$  ou les grandes valeurs de  $D_0$ , donc lorsqu'on se rapproche de la situation où l'on partirait d'un front plan.

On a tracé en figure 5.11 un diagramme spatio-temporel de la déformation locale  $\gamma_{loc} = (r(\theta, t) - r(\theta, 0)) / r(\theta, 0)$  pour un gap de 2.9mm dans le dispositif 1. Si, comme on l'a montré précédemment, la largeur des doigts  $\delta$  ne correspond pas à une longueur d'onde, en revanche ce diagramme montre clairement que malgré une apparition séquentielle, les doigts ont une place régulière et bien définie au cours du temps. Cela suggère l'existence d'une longueur d'onde bien définie. Nous verrons que cette longueur d'onde est parfaitement observable dans l'expérience en front plan (voir chapitre 6).

On peut donc relier directement le mode de l'instabilité et le nombre de doigts qui doivent être équivalents. En figure 5.12 on trace le nombre de doigts en fonction de  $D_0/b$ . La relation attendue  $n \propto D_0/b$  n'est pas incompatible avec les données (ligne en pointillés sur fig.5.12). Cependant, la courbe est mieux ajustée avec une relation affine, suggérant un nombre fini de doigts  $n = 3$  lorsque  $D_0/b$  tend vers 0.

Nous n'avons d'autre part, vu aucune différence significative en variant le rayon initial extérieur de la galette de gel. Cependant, comme montré en figure 5.13, lorsque le rayon de la galette devient très faible, en dessous d'un seuil, la digitation initie localement une variante de l'instabilité du ballon. Nous avons pu voir que cette instabilité est également réversible. Mais nous n'avons pas pu aller à des rayons extérieurs plus faible pour voir si l'instabilité de digitation disparaît au profit d'une instabilité plus proche de l'inflation d'un ballon.

Dans les expériences réalisées, l'amplitude des doigts et leur forme sont légèrement modifiées par le module élastique. Mais nous ne pouvons pas conclure, car les courbes contrainte/déformation, à très grandes déformations, ne sont pas les mêmes pour tous les gels, comme on a pu le voir en chapitre 3.

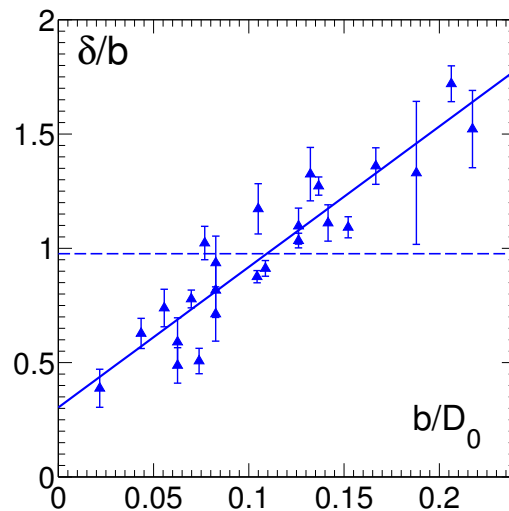


FIGURE 5.10 – Largeur  $\delta$  des doigts en fonction du rapport  $D_0/b$



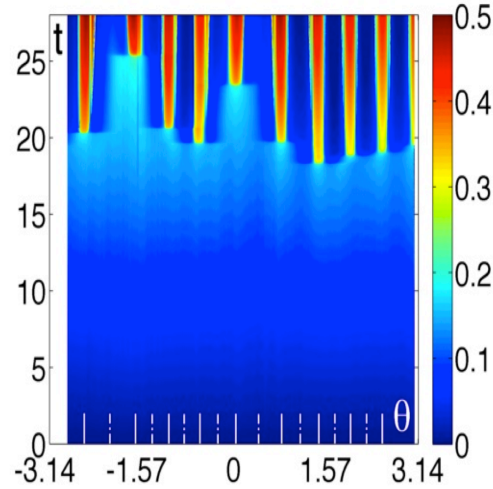


FIGURE 5.11 – Diagramme spatio-temporel représentant  $\gamma_{loc}(\theta, t)$ . Le code couleur représente la distance de l'interface par rapport au centre de la bulle initiale.  $b = 2.9\text{mm}$ .

## 5.4 Profils dans l'épaisseur

L'utilisation de colorant a permis d'identifier qualitativement ce qui se passe dans l'épaisseur de la cellule (sous-partie 5.4). On peut aller plus loin

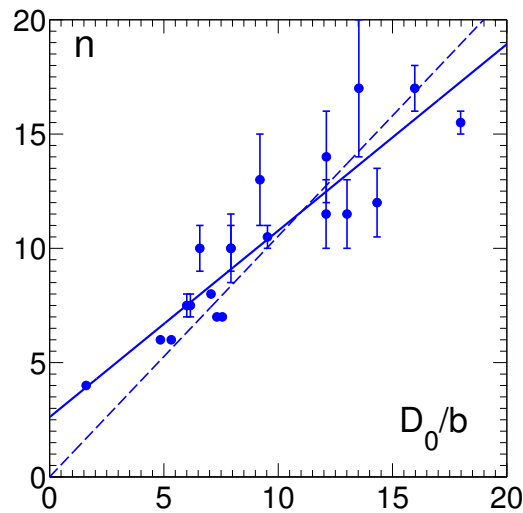


FIGURE 5.12 – Nombre de doigts  $n$  en fonction du gap  $b$ .

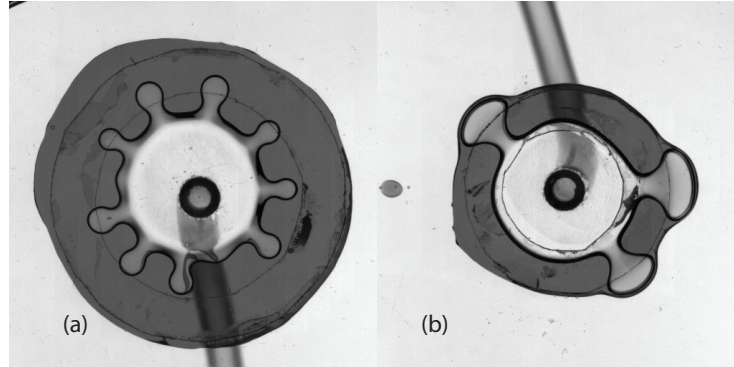


FIGURE 5.13 – Passage de l'instabilité de digitation élastique (a) à une instabilité du ballon "locale" initié par la digitation (b).  $b = 2\text{mm}$ .

et extraire de manière quantitative le profil d'épaisseur de gel, grâce à une mesure d'absorption optique. Pour ne pas avoir de distorsion optique liée aux interfaces qui ne sont pas parallèles au plan d'observation, on aspire dans le dispositif 2 une huile de silicone d'indice de réfraction proche de celui de l'eau constituant le gel ( $n_{\text{huile}} = 1.40$  et  $n_{\text{eau}} = 1.33$ ). Ainsi, la figure 5.14 montre la différence entre un profil d'absorbance en injectant de l'huile et un profil d'absorbance en injectant de l'air. On constate, comme attendu, que ces profils sont identiques dans les zones où la réfraction doit moins jouer.

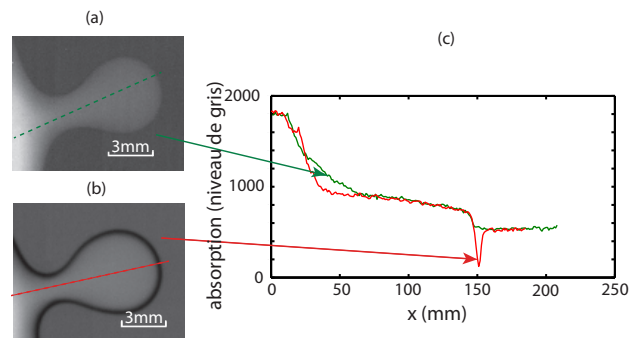


FIGURE 5.14 – Comparaison entre la forme d'un doigt nucléé par injection d'huile de silicone V20 (a) et la forme d'un doigt nucléé par injection d'air (b). (c) : Les profils d'absorbance des deux doigts mesurés le long de leurs axes se superposent bien, si l'on ne tient pas compte des effets de différence d'indice optique.

On construit le profil à partir d'une courbe de calibration absorbance/épaisseur en mesurant les niveaux de gris dans un coin rempli de gel coloré où l'épaisseur varie entre 0 et 2.1mm (figure 5.15). On peut ainsi extraire les profils en fonction de  $x$  et  $y$  à partir d'une image en niveaux de gris et la retracer avec un code de couleurs pour représenter les épaisseurs. Ainsi la figure 5.16 montre que le profil d'épaisseur de gel, le doigt une fois formé, varie peu dans l'épaisseur autour de celui-ci. On voit également, en regardant les deux images prises à deux instants successifs, que la formation du doigt s'accompagne de manière simultanée du retour en arrière du front en son voisinage.

Le profil de digitation peut-être tracé le long de l'axe médian du doigt en faisant l'hypothèse qu'il est symétrique dans l'épaisseur. On obtient alors la figure 5.17 où les profils sont tracés à des instants successifs en code couleur.

Le profil du doigt, une fois formé, est assez complexe. En revanche, avant sa formation, la forme de l'interface semble se comporter en  $x^{3/2}$  comme le montre la figure 5.18.

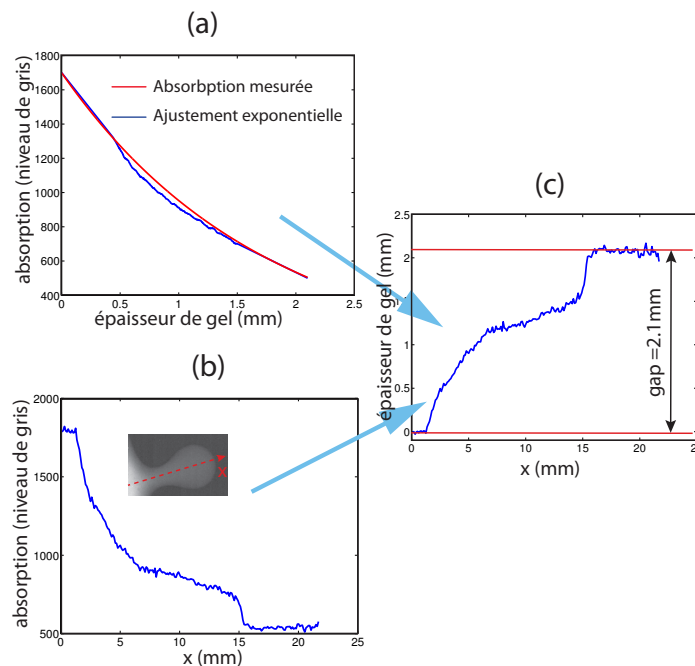


FIGURE 5.15 – Principe de calibration pour obtenir le profil.

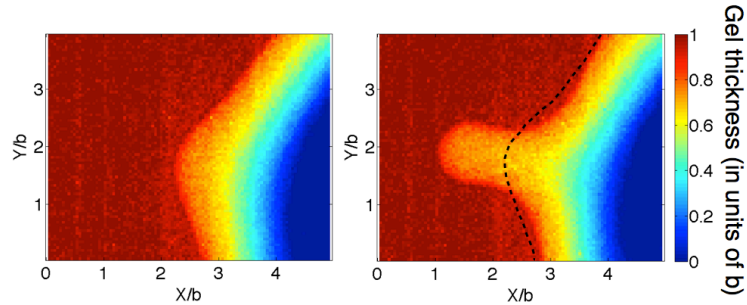
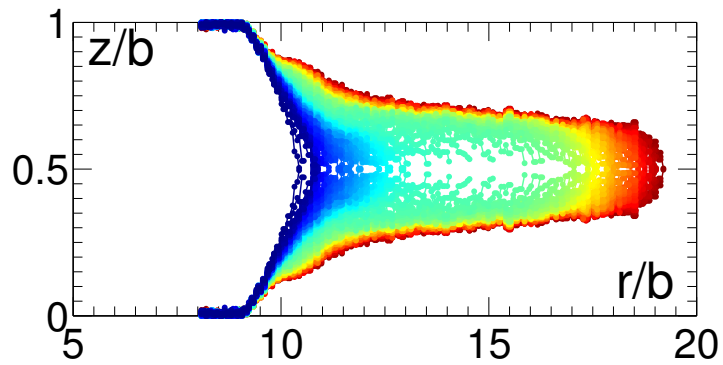
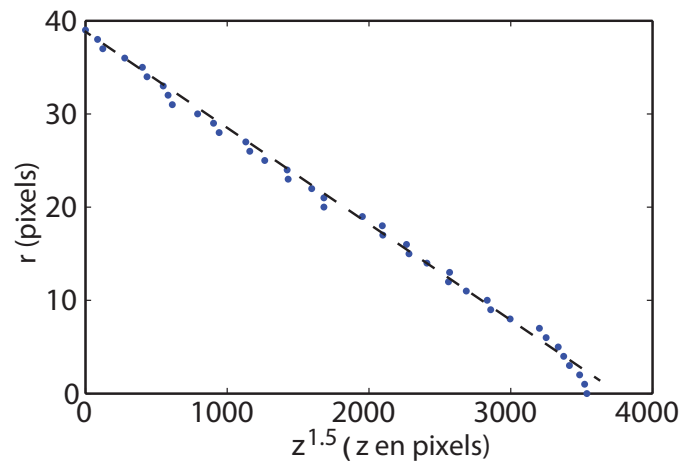
FIGURE 5.16 – Profil de la digitation dans le plan  $(x, y)$ .

FIGURE 5.17 – Profil de la digitation dans l'épaisseur en faisant l'hypothèse qu'il est symétrique.

FIGURE 5.18 – Ajustement non linéaire du profil  $r(z)$  dans l'épaisseur avant la formation du doigt.



# Chapitre 6

## L'expérience en front plan

La partie précédente a décrit les premières observations et identifié les mécanismes entrant en jeu dans l'instabilité de digitation élastique. Nous avons montré qu'elle est d'origine purement élastique et qu'il n'y a aucune dépendance en module élastique. On a également vu que cette instabilité est de caractère sous-critique, et réversible avec un comportement hystérétique. Ces résultats ont permis d'orienter la recherche d'un modèle, pour décrire quantitativement l'instabilité et en comprendre le mécanisme. La mise en évidence de son caractère sous-critique a notamment montré qu'une analyse théorique de stabilité linéaire n'est pas suffisante. Dans cette partie, nous résumons une approche théorique de minimisation globale de l'énergie, due à J. Biggins et L. Mahadevan dans une géométrie en front plan, plus abordable analytiquement. Nous la comparons ensuite aux résultats expérimentaux, obtenus sur un nouveau dispositif, et à des simulations numériques effectuées par Z. Wei avec un code d'éléments finis. Nous présenterons ensuite, dans une dernière partie, des résultats qui dépassent le cadre théorique.

### 6.1 Origine physique de la digitation élastique - approche théorique

#### 6.1.1 Le modèle simplifié

Pour comprendre quel mécanisme physique pousse le système à former des doigts, on peut d'abord construire un modèle simplifié en 2 dimensions, où les variations de déformation dans l'épaisseur sont négligées. On considère

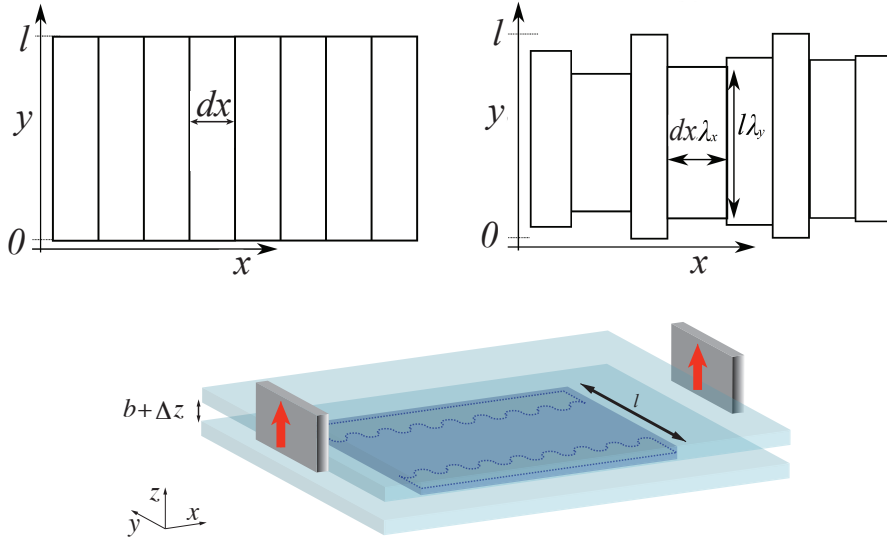


FIGURE 6.1 – Haut - Principe des bandes élastiques indépendantes, pour le modèle simplifié, où le matériau est supposé bidimensionnel dans le plan  $(x, y)$ . Bas - Schéma de l'expérience, avec la définition des axes et des longueurs.

le matériau confiné comme un rectangle de gel dans le plan  $(x, y)$ , de longueur infinie le long de  $x$  et de largeur  $l$  le long de  $y$  (Fig.6.1), incompressible, et divisé en une infinité de bandes élastiquement indépendantes, de largeur  $dx$  et de longueur  $l$ , comme schématisé sur la figure 6.1 (gauche).

Lorsque la plaque supérieure est déplacée selon  $z$ , on impose un cisaillement sur chaque bande selon les axes  $x$  et  $y$ . Si l'on définit des coefficients de déformation  $\lambda_x$  et  $\lambda_y$  associés aux directions  $x$  et  $y$ , les nouvelles dimensions de chacune des bandelettes seront alors  $dx\lambda_x$  et  $l\lambda_y$  comme montré en figure 6.1(droite). Avec une telle modélisation du problème, former des doigts revient à avoir seulement un petit nombre de bandelettes avec de grands  $\lambda_x$ , tandis que pour un majorité d'autres, ce coefficient sera faible. A ce stade de l'énoncé, expliquer pourquoi le système choisit de former des doigts revient à montrer que cette configuration minimise l'énergie élastique. Pour estimer cette énergie élastique, il faut d'abord estimer la déformation. Le déplacement en  $x$ , étant considéré comme infinitésimal, et le gap  $b$  étant l'échelle de longueur la plus petite du problème, cette déformation de cisaillement, au point d'ordonnée  $y$  est donc d'ordre :

$$\gamma \sim \frac{y' - y}{b} \quad (6.1)$$

où  $y'$  est la nouvelle coordonnée du point considéré, et  $y' - y$  désigne donc le déplacement. Or :

$$y' = l/2 + \lambda_y(y - l/2) \quad (6.2)$$

soit une déformation subie en ce point :

$$\gamma \sim \frac{2(y - l/2)(1 - \lambda_y)}{b} \quad (6.3)$$

On peut alors estimer l'énergie de cisaillement associée à cette déformation :

$$E_s \propto \int_0^l \gamma^2 dy \propto (1 - \lambda_y)^2 \quad (6.4)$$

Le passage d'une relation faisant intervenir  $\lambda_y$  à une relation faisant intervenir  $\lambda_x$  se fait en exprimant la conservation du volume, car le matériau est incompressible. Quand on écarte les deux plaques de verres, on impose un écartement selon  $z$  d'un facteur  $1 + \Delta z/b$ .

$$(1 + \frac{\Delta z}{b})\lambda_x\lambda_y = 1 \quad (6.5)$$

Relation qui permet de réécrire l'énergie élastique de cisaillement (Eq.6.4) en fonction de  $\lambda_x$  :

$$E_s \propto (1 + \frac{\Delta z}{b} - 1/\lambda_x)^2 \quad (6.6)$$

On trace cette fonction en figure 6.2. On remarque que si  $\Delta z > 0$ , elle présente un minimum pour :

$$\lambda_x = 1/(1 + \Delta z/b) < 1 \quad (6.7)$$

Or, comme le système est infini dans la direction  $x$ , on doit satisfaire la condition  $\langle \lambda_x \rangle = 1$  pour ne pas avoir de divergence des déplacements dans la direction  $x$ . On constate donc que le système est initialement dans un état qui n'est pas un optimum d'énergie. On constate par ailleurs que la forme de la courbe est non convexe pour des valeurs de  $\lambda_x$  supérieures à  $1/(1 + \Delta z/b)$ . C'est cette non convexité qui permet d'expliquer que la formation de doigts est optimale, du point de vue énergétique. Elle montre que l'énergie peut être



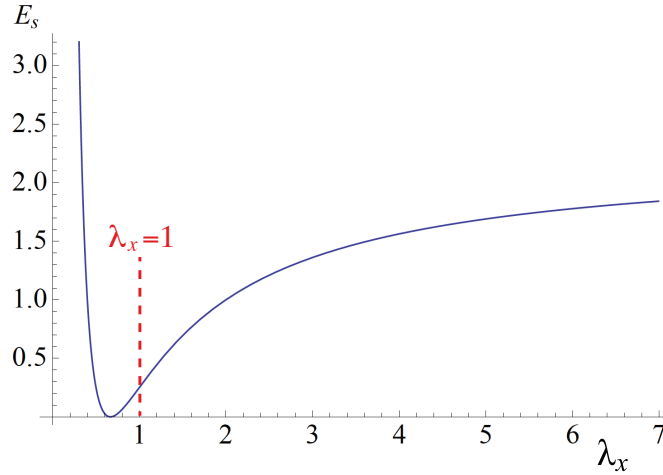


FIGURE 6.2 – Energie de cisaillement élastique  $E_s$ , en fonction du coefficient de déformation  $\lambda_x$ .

minimisée en imposant un  $\lambda_x$  très grand à un très petit nombre de bandelettes. En effet, cela contribue à augmenter significativement la valeur de  $\langle \lambda_x \rangle$  tandis que l'énergie croît beaucoup moins vite. Dans le même temps, on peut avoir une majorité de bandelettes avec un  $\lambda_x$  correspondant au minimum d'énergie. Ainsi la formation de doigt minimise l'énergie élastique totale du système. D'autre part, la non convexité a pour conséquence une transition du premier ordre avec un comportement hystérétique. Cela s'explique simplement par le fait que l'apport d'énergie nécessaire à l'augmentation de  $\lambda_x$  devient d'autant plus faible que  $\lambda_x$  augmente. Il est à noter que les deux ingrédients physiques principaux de ce modèle sont l'incompressibilité et le confinement, qui permettent d'écrire la relation 6.5 et ainsi obtenir une expression de l'énergie en fonction de  $\lambda_x$ .

Si ce modèle permet de comprendre le mécanisme qui conduit à la formation de doigts, de manière soudaine et hystérétique, comme nous l'avons mis en évidence lors des premières observations expérimentales (chapitre 5), il ne donne cependant aucune prédiction quantitative. Il ne donne en particulier aucune précision sur les longueurs d'onde ou les seuils de déstabilisation.

### 6.1.2 Le modèle quasi-2D

Pour pouvoir obtenir plus d'informations, il faut un modèle plus quantitatif, tenant compte en particulier des 3 dimensions de l'espace. Le détail du calcul, permettant de retrouver la longueur d'onde  $\lambda$  et la valeur critique de déplacement des plaques  $\Delta Z_c$ , est donné en annexe, sur la première version soumise de l'article écrit sur cette étude. Dans cette partie, nous en donnons un résumé dans les grandes lignes.

L'approche est toujours de minimiser une énergie élastique de cisaillement, mais cette fois-ci, estimée plus finement. La résolution d'un tel problème, en considérant toutes les contributions spatiales dans les équations de l'élasticité, est très complexe. On peut cependant émettre deux hypothèses simplificatrices. On va d'abord considérer que le profil de déplacement dans l'épaisseur est parabolique, et on va ensuite considérer que les déplacements ne s'effectuent que dans le plan  $(x, y)$ . La seule composante en  $z$  qui restera, sera donc liée au forçage du système, c'est-à-dire au déplacement imposé aux plaques dans la direction  $z$  (Fig.6.3). Le problème peut ainsi être ramené à deux dimensions, mais en tenant compte du forçage en  $z$ . On impose alors que suivant  $z$ , le déplacement en cisaillement en  $z = \pm b/2$  soit donnée par la relation :

$$\mathbf{U}_z = \pm(\Delta z/2)\hat{\mathbf{z}} \quad (6.8)$$

soit un déplacement total pouvant être décrit par la relation :

$$\mathbf{U} = (1 - 2z/b)(1 + 2z/b)\mathbf{u}(x, y) + (z\Delta z/b)\hat{\mathbf{z}} \quad (6.9)$$

où la forme parabolique du profil  $(1 - 2z/b)(1 + 2z/b)$  a été choisie pour satisfaire la conditions de non glissement aux plaques de verre, et où  $\mathbf{u}$  est le vecteur déplacement dans le plan  $(xy)$ , en  $z = 0$ .

Une fois la relation 6.9 écrite, la démarche consiste à calculer l'énergie élastique pour ensuite la minimiser et extraire une relation de dispersion associée à cette minimisation, en introduisant une perturbation dans les champs. On aura ainsi accès aux échelles de longueur du problème.

La densité d'énergie élastique de cisaillement  $L$ , pour un matériau néo-hookéen (voir modèle de Rivlin en 2.2.2), est définie par la relation :

$$L = \frac{1}{2}GTr(\mathbf{F}\mathbf{F}^T) \quad (6.10)$$

où  $F$  est le gradient de déformation défini par :

$$F_{ij} = \delta_{ij} + \partial_j U_i \quad (6.11)$$

Pour préserver le volume dans l'élastomère (condition d'incompressibilité) dans tout le volume, malgré la description bidimensionnelle de cette forme d'énergie, il faut ajouter à la relation de densité d'énergie (Eq.6.10), un champ de pression, dont on fait l'hypothèse qu'il varie seulement dans le plan  $(x, y)$ . Cette pression permet de minimiser l'énergie élastique tout en interdisant le changement de volume. C'est un multiplicateur de Lagrange qui impose de vérifier  $\int (Det(F) - 1)dz = 0$ , en tout point du plan  $(x, y)$ . On obtient ainsi une densité d'énergie de cisaillement effective, donnée par la relation :

$$L(\mathbf{u}, P) = \mu \int_{-b/2}^{b/2} \left( Tr(F.F^T) - \frac{P(x, y)(Det(F) - 1)}{1 + \Delta z/b} \right) dz \quad (6.12)$$

Le résultat du calcul de la relation 6.12 est donné en annexe. La minimisation de cette relation permet l'écriture d'un système de deux équations d'Euler-Lagrange auxquelles s'ajoute une troisième, imposée par les conditions aux limites, qui s'exprime sous la forme :

$$\frac{\partial L}{\partial \nabla \mathbf{u}} \cdot \hat{\mathbf{y}} \Big|_{y=0,l} = 0 \quad (6.13)$$

Pour extraire une relation de dispersion de la résolution du système d'équations constitué des équations d'Euler-Lagrange et de la condition aux limites, il faut ensuite remplacer les champs  $\mathbf{u}$  et  $P$  par une expression formée d'un état de base, correspondant au front non déstabilisé, auquel on ajoute une perturbation. Les champs peuvent être réécrits sous la forme :

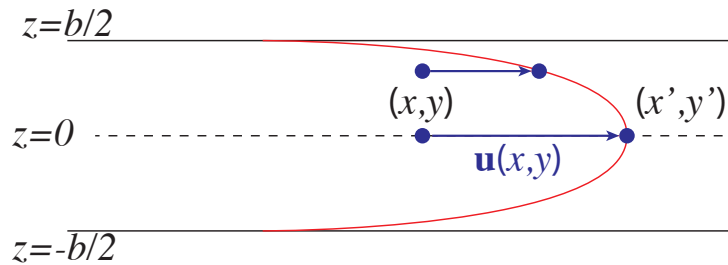


FIGURE 6.3 – Schéma illustrant les hypothèses faites dans le modèle quasi-2D.

$$\mathbf{u} = Y_1(y) + \epsilon \cos(kx)Y_2(y)\hat{\mathbf{y}} + \epsilon \sin(kx)X_2(y)\hat{\mathbf{x}} \quad (6.14)$$

$$P = 1 + P_1(y) + \epsilon \sin(kx)P_2(y) \quad (6.15)$$

qui vérifie la condition d'incompressibilité.

On résout dans un premier temps l'état de base, qui donne une expression exacte de  $Y_1(y)$  et de  $P_1(y)$  en fonction de  $\Delta z$ ,  $l$  et  $b$  :

$$Y_1(y) = -\frac{3\Delta z(L-2y)}{4(\Delta z+b)} \quad (6.16)$$

$$P_1(y) = -\frac{6(b^2+5(l-y)y)\Delta z}{5b^2(b+\Delta z)} \quad (6.17)$$

Puis on résout ensuite les équation d'Euler-Lagrange au premier ordre en  $\epsilon$ , afin d'obtenir une expression de  $X_2$  et  $P_2$ . Cela nous permet d'écrire une équation différentielle vérifiée par  $Y_2$ . Cette équation se simplifie en faisant l'approximation  $l \gg b$  et  $\Delta z \ll b$ . On obtient alors une équation différentielle linéaire homogène d'ordre 4 de solution :

$$Y_1 = c_1 \exp\left(-\sqrt{10+k^2}y\right) + c_2 \exp(-ky). \quad (6.18)$$

Maintenant que l'on a les relations 6.14 et 6.15 en fonction des paramètres du système, elle peuvent être réinjectées dans la condition aux limites (Eq.6.13). On obtient alors une condition sur  $\Delta z$  et  $k$  qui donne une expression du seuil de l'instabilité  $\Delta z_c$  en fonction de  $k$  :

$$\Delta z_t = \frac{b^2 \left( b^2 k^2 - \sqrt{b^2 k^2 + 10} b k + 10 \right) b^2 k^2 + 25}{15 b k}. \quad (6.19)$$

Cette relation donne le seuil de déstabilisation en déplacement de la plaque supérieure en fonction du vecteur d'onde  $k$ . Le seuil de l'instabilité pertinent correspond à la valeur de vecteur d'onde pour laquelle  $\Delta z_c$  est minimum, c'est-à-dire la première échelle de longueur à apparaître lorsque la distance entre les plaques,  $\Delta z$ , augmente. Ainsi le seuil de l'instabilité et sa longueur d'onde sont donnés par une minimisation de la relation 6.19. On obtient alors les relations suivantes :

$$\Delta z_c \approx \frac{1.69...b^2}{l} \quad (6.20)$$

$$\lambda \approx 2.74...b \quad (6.21)$$

ainsi qu'une expression du déplacement critique de déstabilisation du front  $W_c$  :

$$W_c \approx b \quad (6.22)$$

## 6.2 L'expérience en front plan : comparaison avec la théorie et les simulations

Nous allons maintenant comparer les résultats de cette théorie pour le front plan avec les résultats expérimentaux et de simulations numériques réalisées avec un modèle néo-Hookéen. Cependant, dans les simulations, la longueur de l'échantillon de gel n'a pas pu être prise supérieure à 40mm (contre 200mm dans les expériences), pour des raisons de temps de calcul. L'espace des paramètres dans lequel on vérifie longueur  $\gg l \gg b$  sera donc, a priori, plus restreint.

### 6.2.1 Longueur d'onde de l'instabilité

Lorsqu'on écarte la plaque supérieure, on observe, en filmant par le dessus, que l'interface air/gel avance et se déstabilise pour former des doigts, comme montré en figure 6.4. Ces doigts ont une forme tout à fait semblable à celle des doigts formés dans l'expérience en géométrie circulaire.

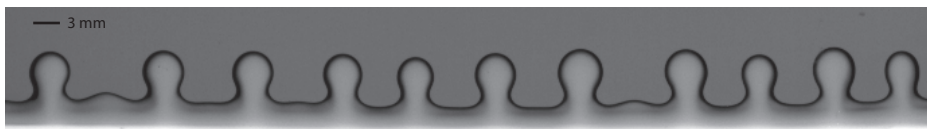


FIGURE 6.4 – Photo par le dessus, d'un front ayant formé des doigts, pour un gap  $b = 3.04\text{mm}$ .

L'instabilité se produit en plusieurs étapes. D'abord le front se propage en restant bien droit, puis il se déstabilise avec une longueur d'onde bien définie, et enfin des doigts sont nucléés au niveau des maxima d'amplitude (Fig.6.5). On observe également une interaction élastique entre doigts voisins, qui conduit éventuellement à empêcher la nucléation de certains doigts (visible sur Fig.6.4) et à former des lacunes. Cet effet d'écrantage peut également être

observé à un stade ultérieur, lorsque les doigts sont bien développés. Il se peut alors que certains doigts reculent et se referment, comme on a pu l'observer en géométrie circulaire (chapitre 5, Fig. 5.5).

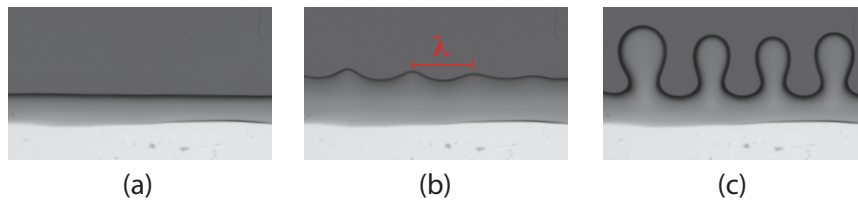


FIGURE 6.5 – Différentes étapes de l'instabilité pour un gap initial  $b = 3.05\text{mm}$ . (a) : Le front avance sans se déstabiliser. (b) : Le front s'est déplacé d'une valeur critique, et l'on voit apparaître des oscillations de longueur d'onde bien définie. (c) : Des doigts sont soudainement nucléés sur les maxima d'amplitude des oscillations.

Au final, les doigts formés, aux lacunes près, semblent espacés de manière assez régulière, comme au stade de déstabilisation initiale. Cela suggère l'existence d'une longueur d'onde bien définie, comme observé dans le cas circulaire. La théorie linéaire développée en partie 6.1, prédit une longueur d'onde de première déstabilisation (équation 6.21). Nous avons donc essayé de la mesurer dans notre expérience (Fig. 6.5(b)).

La longueur d'onde observée, une fois tous les doigts formés, pourrait être simplement évaluée en comptant, sur une longueur donnée, le nombre de doigts et en divisant par cette longueur. Mais elle serait alors surestimée, notamment à cause de la présence de lacunes. Mais on observe également un léger décalage des doigts, lorsqu'ils sont déjà bien développés. De plus, la nature soudaine de la transition, conduit à ce que les doigts ne se développent pas tous simultanément, mais plutôt de manière consécutive (Fig. 6.6).

Il se peut donc qu'une zone du front soit au stade de première déstabilisation, alors qu'une autre soit déjà à un stade où des doigts sont bien développés, ou pas du tout. Pour toutes ces raisons il faut prendre certaines précautions pour mesurer cette longueur d'onde.

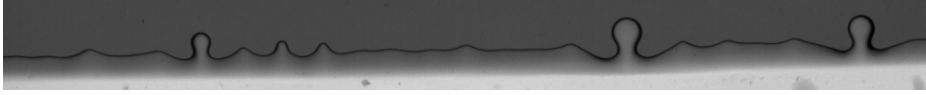


FIGURE 6.6 – Front se déstabilisant dans une expérience avec un gap initial de 2.25mm. On observe sur cette image que toutes les zones du front ne sont pas au même stade de déstabilisation.

La méthode employée est donc la suivante. On mesure d'abord une longueur de front entre deux crêtes, au stade des premières oscillations. On se focalise ensuite sur une zone de cette longueur en particulier, et on comptabilise le nombre d'oscillations qui apparaissent dans cette zone. Le moment où l'on peut les comptabiliser sera légèrement différent pour chaque zone. La majorité de ces oscillations se transforme par la suite en doigts, mais certaines sont cependant écrantées. Les lacunes observées à un stade ultérieur ne posent ainsi aucun problème pour la mesure. On montre en figure 6.7, les résultats obtenus en faisant varier le gap. On constate que l'accord avec la théorie est très bon jusqu'à  $b = 8\text{mm}$ . Pour tous ces points, la largeur  $l$  de la bande de gel n'est pas toujours la même. On retrouve donc bien que ce paramètre ne joue pas sur  $\lambda$ . Ces résultats sont également en accord avec ceux obtenus en simulation, jusqu'à des valeurs de  $b = 5\text{mm}$ . Cet écart à la théorie sera commenté en 6.3.2.

### 6.2.2 Seuil de l'instabilité

La théorie linéaire prédit un seuil de déstabilisation en déplacement du front,  $W_c$ , (Eq.6.22), ainsi qu'en déplacement de la plaque supérieure,  $\Delta z_c$ , (Eq.6.28). La mesure de  $W$  peut être faite avec deux méthodes différentes. Sur chacune des expériences, la planéité n'est pas toujours parfaite en tout point du front. La première méthode consiste donc à mesurer en plusieurs points, l'avancée du front lorsqu'il se déstabilise, mais seulement sur les parties du front où il est initialement bien rectiligne. On calcule ensuite une moyenne, et un écart type associé. Avec cette méthode on retrouve un très bon accord avec la théorie (Fig.6.8, méthode 1 en rouge). Cependant, on peut également calculer  $W$  de manière plus systématique, avec un programme de traitement d'image, et mesurer l'écart-type de l'avancée du front, à chaque instant, et en tout point du front. Sa valeur doit être nulle, ou presque, lorsque le front ne s'est pas encore déstabilisé, mais dès que les ondulations commencent à apparaître, elle croît rapidement (Fig.6.9). Il s'agit de la même méthode

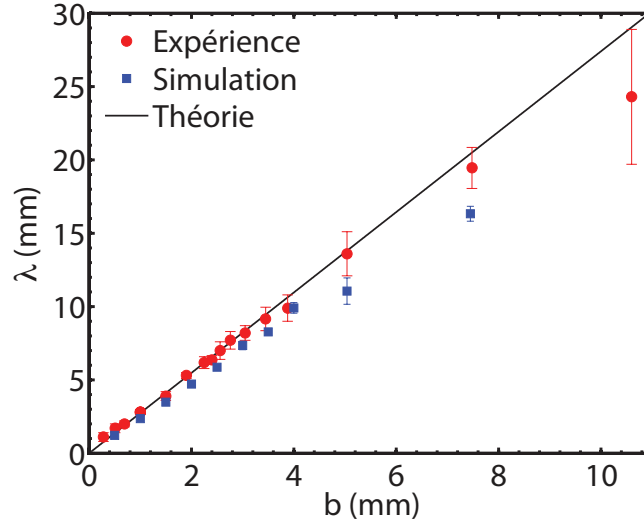


FIGURE 6.7 – Évolution de la longueur d'onde  $\lambda$  de l'instabilité en fonction du gap  $b$ .

que celle utilisée dans les simulations. Pour les expériences où le programme d'analyse d'images a bien fonctionné, on obtient la même loi d'évolution avec, cependant, un peu plus de dispersion du fait de la prise en compte de zones du front initialement moins rectilignes (Fig.6.8, méthode 2 en vert). On peut également utiliser la mesure d'amplitude décrite en partie 6.3.1. La méthode est alors équivalente, et donne les mêmes résultats.

Comme noté au chapitre 4 partie 4.3, nous n'avons pas pu faire de mesure directe et systématique de  $\Delta z$  au cours de l'expérience. On peut cependant calculer  $\Delta Z_c$  à partir de  $W_c$ . En effet, en faisant l'hypothèse que le profil du front dans l'épaisseur est quadratique, on peut écrire la relation de conservation suivante, reliant  $W$  et  $\Delta z$  :

$$W = \frac{3L\Delta z}{4(b + \Delta z)} \quad (6.23)$$

soit :

$$\Delta Z_c = \frac{4bLW_c}{3L - 4W_c} \quad (6.24)$$

Comme les expériences n'ont pas toutes été réalisées avec les mêmes valeurs de  $l$ , on a reporté les valeurs de  $l\Delta z_c$  calculées à partir de  $W_c$  en fonction



de  $b$ , sur la figure 6.15. On retrouve bien une relation cohérente avec la théorie. On verra, dans la partie suivante, qu'une mesure directe de  $\Delta z$ , réalisée pour l'expérience d'hystérésis, confirme ce résultat.

### 6.2.3 Hystérésis

Les mesures effectuées en géométrie circulaire ont révélé le caractère sous-critique de l'instabilité, en montrant ses propriétés hystérétiques et de croissance soudaine. Pour vérifier si, dans cette géométrie, comme le prédit la théorie, on retrouve bien ce comportement, on a fait une mesure directe de  $\Delta z$ , grâce à un capteur inductif qui permet d'obtenir une valeur précise du déplacement de la plaque supérieure au cours de l'expérience (voir chapitre 4). La courbe d'hystérésis est tracée pour un seul doigt, en mesurant son amplitude, simultanément à  $\Delta z$ , et en effectuant un chargement suivi d'un déchargement de l'échantillon. Cette amplitude est définie comme la distance entre l'extrémité du doigt, et le point du front le plus reculé dans son voisinage (photo en Fig.6.11). Sa valeur est donc nulle avant déstabilisation. Pour effectuer l'expérience dans les mêmes conditions que les simulations, on a choisi un doigt, tel que ses plus proches voisins soient le plus loin pos-

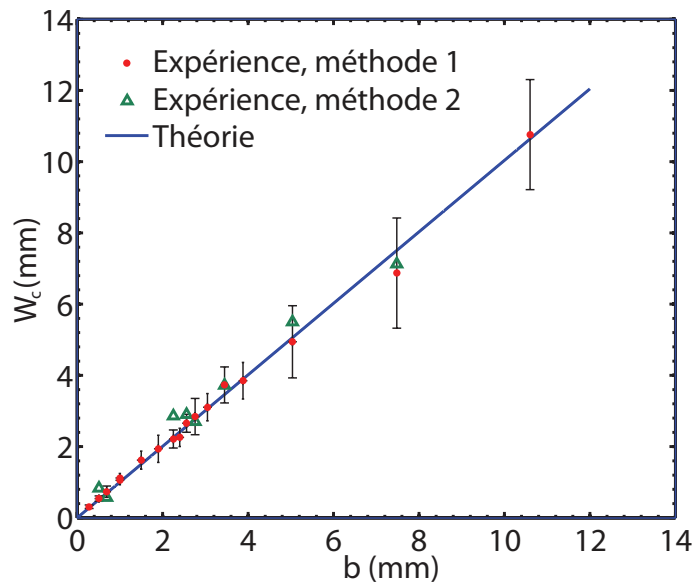


FIGURE 6.8 – Évolution du déplacement critique du front  $W_c$  en fonction du gap  $b$ .

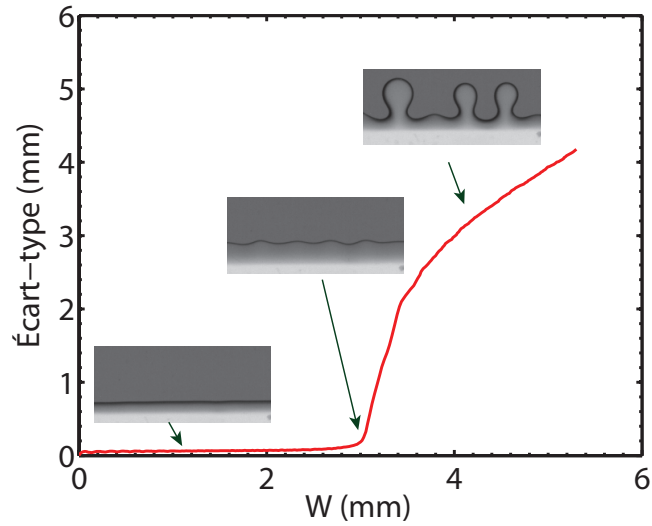


FIGURE 6.9 – Écart-type des déplacements du front sur toute sa longueur, en fonction du déplacement moyen du front  $W$ .

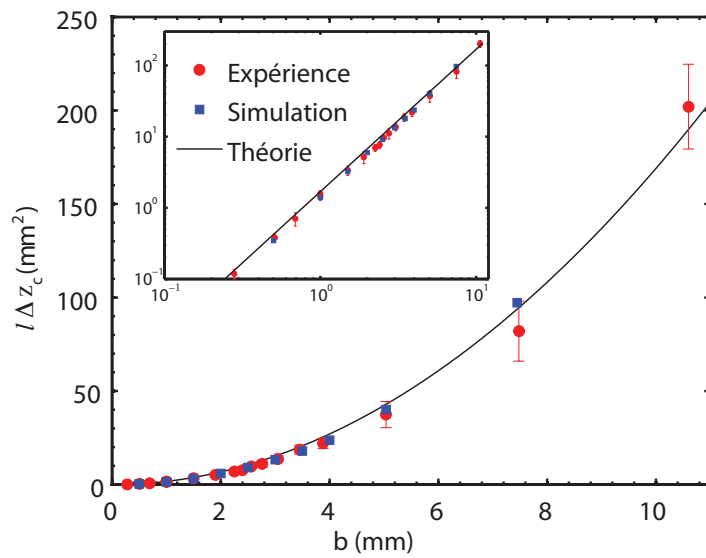


FIGURE 6.10 – Produit du seuil de déstabilisation en déplacement vertical  $\Delta z_c$ , avec la largeur  $l$ , en fonction du gap  $b$  (échelle logarithmique en insertion).

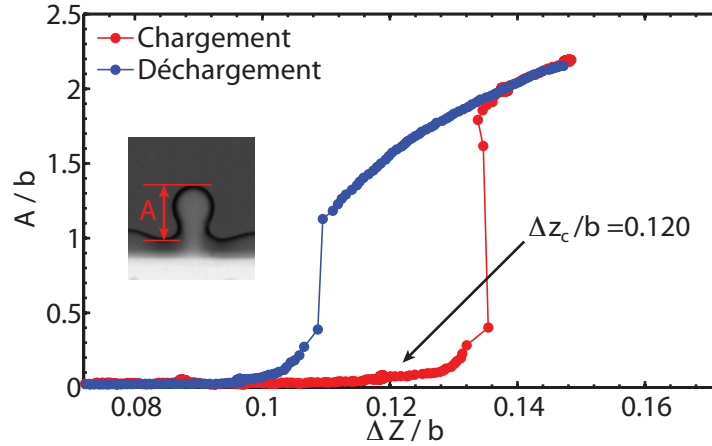


FIGURE 6.11 – Courbe d’hystérésis expérimentale, réalisée avec un gap initial  $b = 3.04\text{mm}$  et une largeur d’échantillon  $l = 41\text{mm}$ .

sible, pour minimiser l’effet des interactions. Pour bien visualiser, comme en simulation, les sauts d’amplitude lors de la charge ou de la décharge, on a également réalisé l’expérience à très faible vitesse, et en arrêtant même régulièrement les moteurs à l’approche du seuil, de manière à visualiser la croissance soudaine du doigt, à déplacement fixe, lorsqu’on atteint le seuil.

Comme le montre la figure 6.11, on retrouve bien un comportement hystérétique dans l’expérience en front plan. Ce résultat est également confirmé par les simulations numériques (Fig.6.12). À partir de la courbe expérimentale d’hystérésis, on peut remesurer  $\Delta z_c$ , mais cette fois-ci, directement. Connaissant pour cette expérience  $l$  (41mm) et  $b$  (3.04mm) on peut calculer le seuil théorique d’après l’équation 6.28 :

$$\frac{\Delta z_c}{b} \approx \frac{1.69b}{l} = 0.125 \quad (6.25)$$

Cette valeur théorique est en très bon accord avec la valeur expérimentale mesurée,  $\Delta z_c/b \approx 0.120$ . Cette dernière confirme la tendance observée avec la méthode de mesure indirecte décrite en 6.2.2.

### 6.3 Au-delà de la théorie

Nous présentons dans cette partie des résultats qui sortent du cadre théorique, mais qui donnent des perspectives intéressantes pour la compréhension, ou des applications potentielles.

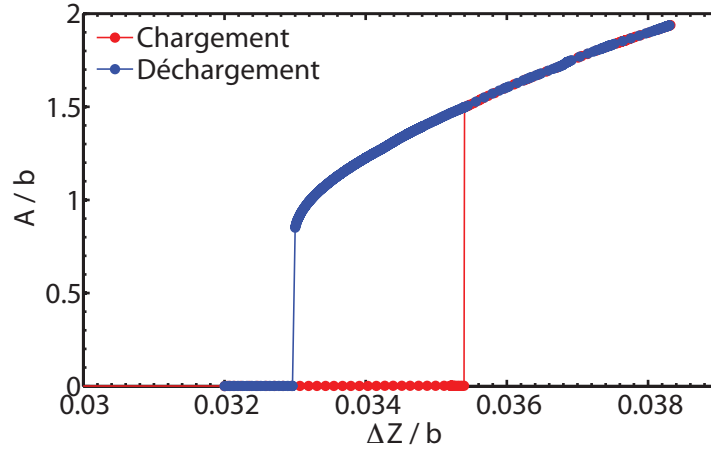


FIGURE 6.12 – Courbe d’hystérésis numérique, réalisée avec un gap initial  $b = 1\text{mm}$  et une largeur d’échantillon  $l = 40\text{mm}$ .

### 6.3.1 Régime non-linéaire : amplitude

Après avoir caractérisé le type d’instabilité, son seuil, et sa longueur d’onde, qui restent dans le cadre théorique développé en 6.1, il est intéressant de regarder l’autre échelle de longueur du problème, l’amplitude des doigts, après le ”saut” de la bifurcation sous-critique. On a pu se comparer aux mêmes simulations numériques utilisées pour les mesures de  $\lambda$  et  $\Delta Z_c$ . Dans ces dernières, on regarde l’avancée d’un front, qui se déstabilise pour former plusieurs doigts interagissant entre eux. On se rapproche ainsi plus des expériences.

Lors des simulations, la vitesse d’écartement des plaques de verre est très faible. Ainsi lors de la création soudaine d’un doigt, on peut considérer que la plaque supérieure n’a pas continué à avancer simultanément. A cet instant, le mouvement du doigt qui nucléé, n’interfère donc pas avec celui de la plaque de verre. On mesure alors l’amplitude au stade où le doigt vient tout juste de sortir. On appellera cette grandeur  $A_d$ . L’amplitude mesurée au cours du temps, pendant toute la simulation, est définie à chaque instant, de la même manière que pour les courbes d’hystérésis, mais en faisant une moyenne sur plusieurs doigts. Pour analyser les expériences et leur appliquer la même méthode, on a écrit un programme permettant d’extraire le front et ses propriétés géométriques, ainsi que permettant de détecter les minima et maxima locaux, et de mesurer leurs distances. On donne un exemple de cette détection en figure 6.13.

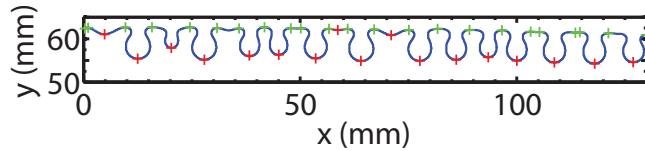


FIGURE 6.13 – Courbe représentant le front, ainsi que les maxima et minima locaux, détectés par le programme de traitement d'image.

Comme mentionné au chapitre 4, pour s'affranchir des problèmes liés à l'adhésion du gel sur les plaques de verre, on a dû choisir, pour les mesures systématiques, des vitesses qui ne permettent pas une visualisation du saut aussi nette que sur les simulations. Cependant, si l'on trace l'amplitude du front en fonction de l'avancée moyenne du front (Fig.6.14), on constate qu'il y a une très nette rupture de pente.

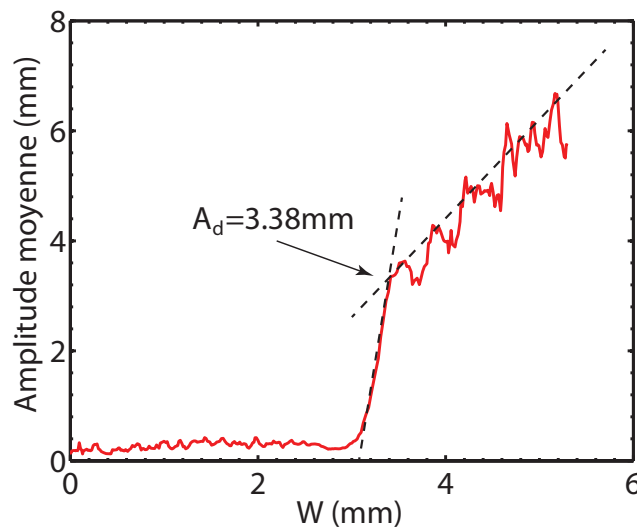


FIGURE 6.14 – Courbe représentant l'amplitude moyenne des doigts, le long du front, en fonction du déplacement moyen de tout le front, pour un gap  $b = 2.25\text{mm}$ .

Cette rupture de pente est liée au fait que la vitesse d'apparition du doigt, et la vitesse d'avancée du front, sont tout de même encore bien séparées pour

cette vitesse de moteur. Cela nous permet de définir l'amplitude moyenne d'un doigt,  $A_d$ , comme étant la valeur de l'amplitude à cette brisure de pente. Si l'on trace maintenant  $A_d$  en fonction du gap pour les simulations et les expériences (Fig.6.15), pour un gel de 500Pa, on trouve un très bon accord pour les valeurs inférieures où égales à  $a = 5\text{mm}$ . L'amplitude varie linéairement tel que  $A_d = 1.4b$ .

Comme la valeur d'amplitude  $A_d$  est une moyenne sur tout le front, on tient compte des défauts, lacunes ou effets plus ou moins grands des interactions. Le bruit est de nature beaucoup moins contrôlée dans les expériences, ce qui explique une plus grande dispersion des valeurs ou un signal d'amplitude relativement bruité. On remarque notamment que l'amplitude mesurée pour un seul doigt, sans interaction (hystérésis Fig.6.11,  $b = 3.04\text{mm}$ ), est légèrement plus grande que l'amplitude moyenne.

Nous avons également remarqué une évolution de la forme des doigts lorsque le gap varie (Fig. 6.16). Nous n'avons cependant pas fait de traitement quantitatif sur cet aspect-là. Mais nous pouvons remarquer qu'aux petits gaps, un col très net apparaît juste après le saut, et qu'on le voit être de moins en moins marqué lorsqu'on augmente le gap. Il n'est plus du tout visible pour  $b = 10.26\text{mm}$ . D'autre part, il semblerait que la rapidité du saut

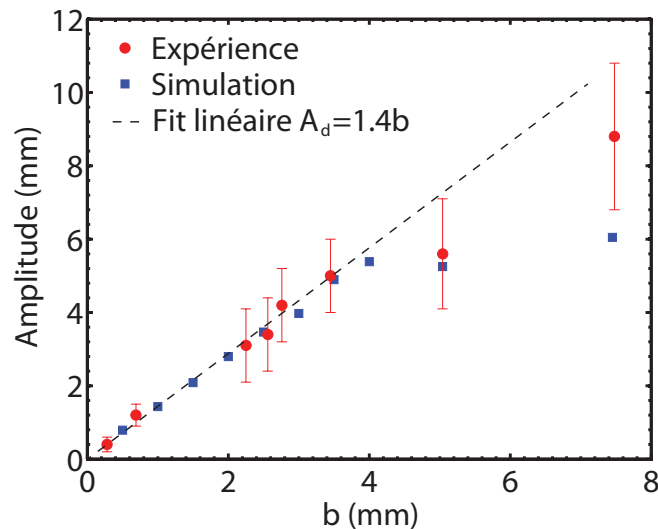


FIGURE 6.15 – Amplitudes mesurées en fonction du gap  $b$ , dans les expériences et les simulations.

et la forme du doigt soient corrélées. Ainsi, dans l'expérience à  $b = 10.26\text{mm}$  le saut est de l'ordre de 2-3 fois la vitesse du front, tandis qu'il est très net, avec une vitesse bien plus élevée que celle du front, dans le cas du gap  $b = 0.51\text{mm}$ .

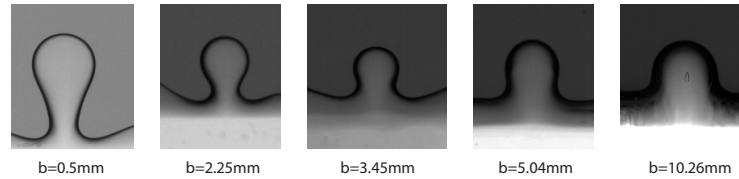


FIGURE 6.16 – Amplitudes mesurées en fonction du gap  $b$ , dans les expériences et les simulations.

### 6.3.2 Effets de taille finie et de forme initiale

On a remarqué, sur une expérience où la grande longueur a été réduite de moitié, que l'instabilité est fortement influencée par la proximité des bords (Fig.6.17). On observe que, plus on se rapproche des coins, plus le front se déstabilise tard, et plus les doigts seront petits. Cet effet est très nettement visible si l'on suit l'évolution du front sur le petit côté de l'échantillon, comme en figure 6.18. On constate sur ces images que les doigts croissent hiérarchiquement, en commençant par le centre, et de manière toujours très symétrique par rapport à ce dernier.

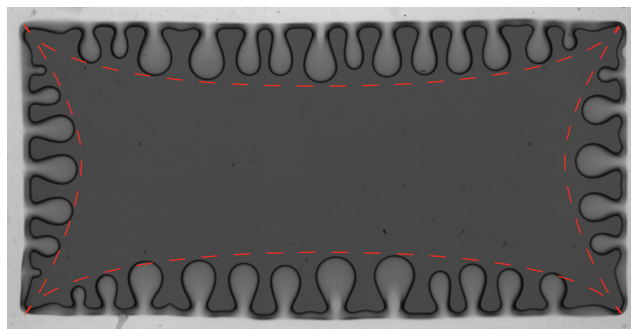


FIGURE 6.17 – Expérience réalisée en réduisant de moitié la longueur de l'échantillon.  $b = 1.92\text{mm}$ ,  $l = 57\text{mm}$ , grande longueur =  $10.8\text{mm}$ .

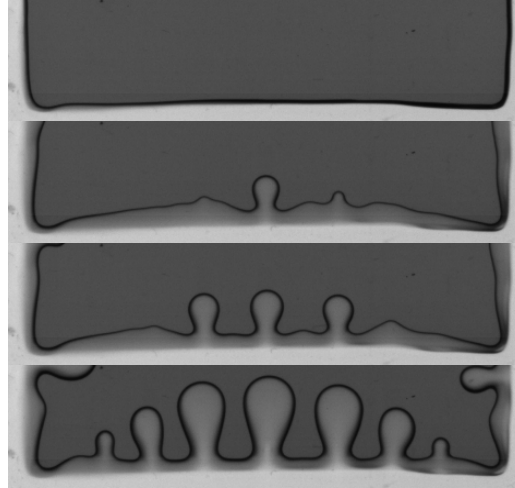


FIGURE 6.18 – Images du petit côté de l'échantillon en figure 6.17, prises à des instants successifs.

Sur la figure 6.17, on remarque, sur les grands côtés, que la zone centrale semble moins influencée par les bords. Cela suggère l'existence d'une "zone d'influence" des bords sur le front. On a tracé en figure 6.19, le front de la figure 6.17, en superposant le front obtenu pour le même gap, avec un front "infini". On peut facilement voir sur cette figure la zone perturbée par les bords, et la zone non perturbée, et mesurer leurs longueurs respectives. On voit bien sur ces images qu'une zone de 44mm ne ressent pas les bords, tandis que de part et d'autre, une zone de 36mm les ressent.

On s'attend à ce que cette distance varie linéairement avec le gap. Cette zone sera donc d'autant plus petite que le gap est petit. Pour un gap  $b = 1.92\text{mm}$  la zone d'influence totale fait 72mm, soit un rapport 40. On peut extrapoler ce résultat et estimer que ce rapport est pertinent pour tous les

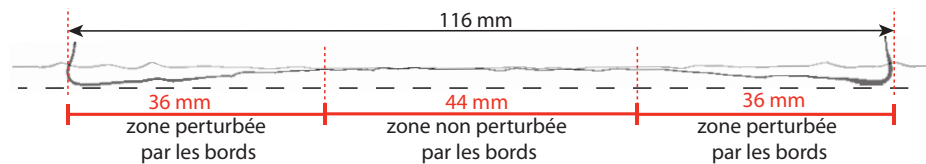


FIGURE 6.19 – Superposition d'un front de longueur "infinie", avec le front de longueur finie, présenté en figure 6.17. On visualise bien l'influence des bords.



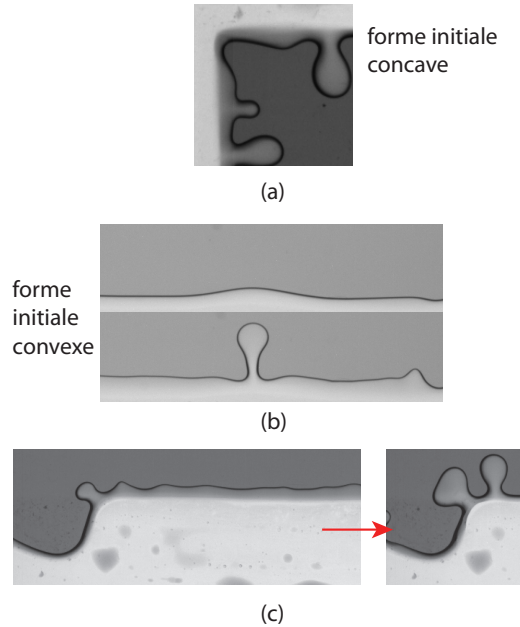


FIGURE 6.20 – Photos montrant l'influence de la forme initiale du front sur la nucléation de doigts. (a) : Une forme initiale concave tue l'instabilité. (b) : Une forme initiale convexe la favorise. (c) : Pour une courbure suffisamment élevée, on voit nettement que la forme des doigts est modifiée.

gaps. Sachant que la longueur totale de l'échantillon, dans les expériences systématiques, est de 200mm, on a donc des rapports allant de 800 ( $b = 0.28\text{mm}$ ) à 20 ( $b = 10.48\text{mm}$ ). Cela suggère que des effets de bord interviennent pour les plus grands gaps du domaine d'exploration. Le rapport 40 est atteint pour un gap de 5mm. On s'attend donc à ressentir de plus en plus les effets de bord pour des gaps supérieurs à 5mm.

Ce résultat est très cohérent avec les observations faites lorsqu'on trace la longueur d'onde ou les amplitudes en fonction du gap. On constate alors que les valeurs obtenues ont tendance à être un peu plus petites que ce à quoi on s'attendrait pour les grands gap.

On a donc vu que les effets de bord pouvaient être important, car le coin de l'échantillon est une zone qui ne se déplace pas, et donc où aucun doigt ne peut pousser. Cela nous a amenés à nous poser la question de l'influence de la forme initiale sur la nucléation et la forme d'un doigt. Sur la figure 6.20(a), on a reporté l'observation faite sur l'expérience présentée en figure 6.17. On constate sur cette image, qu'une forme concave empêche le front d'avancer

et donc de former un doigt. Sur la figure 6.20(b) on montre qu'une forme initiale convexe favorise, au contraire, la formation d'un doigt. On voit que la zone de plus grande courbure a nucléé un doigt pour un  $\Delta z$  bien plus petit (les autres parties du front commencent à peine à se déstabiliser). On peut ainsi voir une forme convexe comme une perturbation, du point de vue de l'instabilité, qui favorise son développement. Ces deux résultats montrent à quel point le front peut-être sensible à des défauts de planéité, ce qui explique les grandes difficultés rencontrées, pour définir le bon protocole de moulage du gel (cf chapitre 4). Un résultat plus étonnant est qu'il semblerait que la courbure d'une zone convexe influence de manière significative la forme d'un doigt. Sur la figure 6.20(c) on voit que pour une courbure plus grande le doigt nucléé a une extrémité plate, comme s'il allait se séparer en deux.

### 6.3.3 Contrôle de la digitation

On a donc vu que la formation et la forme d'un doigt peuvent être fortement influencées par la courbure initiale du front. En particulier, une forme concave tue l'instabilité, alors qu'une forme convexe la favorise. Cela suggère une piste intéressante pour le contrôle de l'instabilité. On peut par ailleurs, comme montré en figure 6.21, contrôler l'endroit d'apparition d'un doigt, en perturbant manuellement le front, à l'endroit voulu. Pour cette expérience, on a déplacé les plaques de verre avec précaution, de manière à se placer dans la zone hystérétique, mais sans former de doigt. Une petite perturbation suffit alors pour les faire apparaître.

### 6.3.4 Régime de rupture

Comme dans le cas circulaire, lorsqu'on continue à développer un doigt, dans toutes les expériences, on observe une rupture du film dans le doigt, en arrière du front (Fig.6.22). Les plus grosses concentrations de contrainte ne sont donc pas au niveau du maximum de courbure dans l'épaisseur du doigt, au niveau de sa tête. De plus, lorsque cette fissure atteint le front, elle est immédiatement déviée vers l'interface. Le régime qui suit est donc une rupture interfaciale, tel qu'elle a été décrite dans le chapitre 1. On a remarqué que pour un gap donné, à des vitesses élevées où des effets inertiels sont sans doute à l'oeuvre, on observe une digitation interfaciale avec du branchement latéral, tandis que si la vitesse est faible, cet effet disparaît

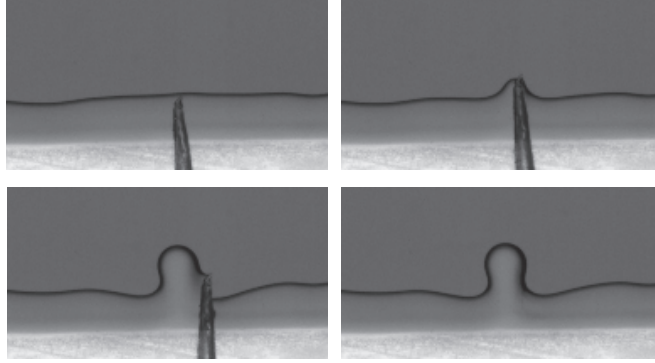


FIGURE 6.21 – Photos prises à des instants successifs, pendant une expérience, où on perturbe le front à la main, dans sa zone hystérétique. On voit alors qu'on peut nucléer des doigts où on veut.

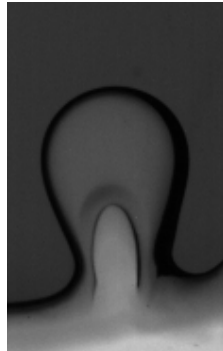


FIGURE 6.22 – Initiation d'une fracture à l'arrière de la tête d'un doigt.

(Fig.6.23). Ce branchement latéral est qualitativement observé dans certains travaux sur la digitation interfaciale quand les confinements sont élevés, mais cependant, il n'a jamais été étudié, en raison de la complexité des motifs obtenus dans les géométries circulaires classiquement utilisées. Bien que nous n'ayons pas fait de travail quantitatif pour l'instant, la géométrie linéaire permet de n'observer qu'un seul doigt à la fois, un peu à la manière du canal linéaire de Saffman-Taylor.

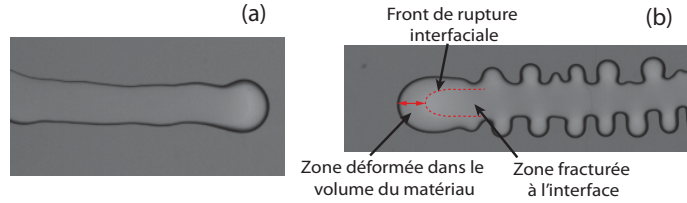


FIGURE 6.23 – *Digitation interfaciale en géométrie linéaire. Motifs observés pour  $V \sim 1\text{cm.s}^{-1}$  (a) et pour  $V \sim 100\text{cm.s}^{-1}$ .*

## 6.4 Discussion

### 6.4.1 Ondes de Rayleigh et chargement quasi-statique

L'instabilité de digitation élastique observée se produit en régime quasi-statique, et c'est dans ce cadre que la théorie la décrit. La vitesse des moteurs, ou plus précisément la vitesse du front, doit donc être faible pour ne pas faire intervenir d'effet inertiel. Ces effets sont principalement liés aux ondes élastiques qui se propagent à la surface du matériau, à une vitesse proche de la vitesse du son. On peut, dans notre cas, estimer l'ordre de grandeur de la célérité des ondes élastiques, et voir si les vitesses choisies expérimentalement sont raisonnables de ce point de vue. La vitesse du son peut être calculée à partir du module d'Young  $E$  du matériau, et de sa densité  $\rho$ , avec la relation suivante :

$$C_s = \sqrt{(E/\rho)} \quad (6.26)$$

où

$$E = 2(1 + \nu)G \quad (6.27)$$

Pour un module de cisaillement  $G = 550\text{Pa}$ , on a donc  $E = 1650\text{Pa}$ , et  $C_s \sim 1.3\text{m.s}^{-1}$ . On s'attend donc à voir des effets inertiels apparaître quand le front atteint une vitesse d'environ  $1\text{m.s}^{-1}$ .

Estimons maintenant la vitesse du front  $V_f$ , grâce à la relation :

$$V_f = \frac{W_c}{t_c} \quad (6.28)$$

où  $t_c$  est le temps critique de déstabilisation. Pour  $a = 2.25\text{mm}$  (valeur typique du domaine exploré), comme l'instabilité se produit au bout d'un temps  $t_c \sim 0.14\text{s}$ , la vitesse du front est alors  $V_f \sim 2.21/0.14 \sim 1.6\text{cm.s}^{-1}$ . On a donc

une valeur 60 fois inférieure à la vitesse du son. Pour le gap le plus petit ( $0.28\text{mm}$ ) on peut estimer que l'instabilité se produit à  $t_c \sim 0.02\text{s}$  et donc la vitesse moyenne du front est  $V_f \sim 0.31/0.02 \sim 1.6\text{cm.s}^{-1}$ . On est donc, même dans ce cas, encore raisonnablement en-dessous de la vitesse du son. La vitesse de moteur choisie,  $V = 2\text{mm/s}$  n'est donc pas incompatible avec un régime de sollicitation quasi-statique. Cependant, même dans le cas d'une sollicitation avec effets inertiels, il n'y a aucune raison pour laquelle l'instabilité disparaîtrait. On peut s'attendre à éventuellement déplacer les seuils et modifier l'interaction entre les doigts. Dans des expériences réalisées à hautes vitesses sur la géométrie circulaire (dispositif avec pistons), on observe d'ailleurs la propagation d'ondes élastiques au niveau de l'interface, en même temps que les doigts nucléent. Les modulations d'amplitude provoquées par ces ondes semblent influencer la nucléation d'un doigt voisin.

### 6.4.2 Un mécanisme générique

Nous avons vu que l'avancée du front calculée théoriquement et mesurée expérimentalement en front plan est  $W_c = b$ . On retrouve donc le résultat obtenu dans le cas circulaire (chapitre 5, Fig.5.6, Eq.5.5), montrant que ce résultat n'est pas ou peu (pour le cas de la géométrie avec piston) sensible à la géométrie, ni au type de chargement (injection ou décollement). D'autre part, on a vu qu'aucune dépendance en module n'est observée dans le mécanisme de déstabilisation. Ce mécanisme semble donc très générique pour tout les milieux très déformables, dès que le matériau est confiné et qu'il colle aux parois.

Nous avons d'autre part montré que l'amplitude varie avec le gap pour un module donné. Nous n'avons cependant pas étudié l'influence du module sur cette grandeur, ce qui nécessiterait de mieux contrôler les comportements du matériau à très grande déformation, quel que soit le module. Nous avons également vu que la forme initiale du front semble modifier la forme finale du doigt lorsqu'il est bien développé. Il semblerait même qu'un doigt puisse adopter une forme branchée, un peu comme le phénomène de "tip-splitting" dans l'instabilité de Saffman-Taylor. Quelle pourrait être l'influence de l'élasticité sur le branchement dans la digitation ?

Pour une comparaison plus poussée avec l'instabilité de Saffman-Taylor,

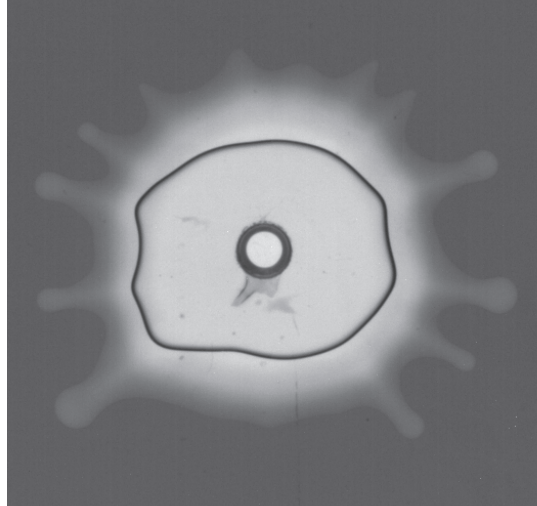


FIGURE 6.24 – *Aspiration d'une huile de silicone V1000 dans un gel de polyacrilamide avec le dispositif à piston.*

nous nous sommes demandés quelle peut être l'influence sur la digitation de l'injection d'un fluide de plus grande viscosité. Nous avons ainsi réalisé une expérience en aspirant une huile de silicone Rhodorsil V1000 (Dispositif avec pistons, Fig.6.24) et avons constaté une modification claire de la taille des doigts et du mode. Un tel comportement nous montre que le bilan des forces au niveau de l'interface est alors modifié, ce qui modifie les échelles de longueur. On pourrait tout à fait imaginer modifier ce bilan en poussant un gel sur un autre. De la même manière que dans Saffman-Taylor, un fluide moins visqueux pénètre un fluide plus visqueux, aurait-on dans notre cas, la pénétration d'un gel mou dans un gel plus dur? C'est également une perspective que nous jugeons très intéressante à exploiter à l'avenir.

Une telle tentative de "généralisation" de l'instabilité de digitation pousse naturellement à se demander s'il est possible dans un matériau viscoélastique, d'évoluer continûment d'une instabilité de digitation visqueuse à une instabilité de digitation élastique. Nous nous proposons d'explorer cette question dans le chapitre qui va suivre.



# Chapitre 7

## De la digitation visqueuse vers la digitation élastique dans les matériaux viscoélastiques

Dans ce chapitre, nous présentons des résultats expérimentaux obtenus avec les fluides viscoélastiques modèles présentés au chapitre 1. Ces expériences sont effectuées dans le dispositif avec pistons, déjà utilisé pour le polyacrylamide (chapitre 5), dans lequel le débit est contrôlé. Nous avons d'abord effectué des expériences dans des liquides Newtonien, pour comparer notre dispositif avec ceux, couramment utilisés, pour étudier la digitation visqueuse. Nous avons ensuite réalisé une étude systématique sur des fluides viscoélastiques.

### 7.1 Expérience dans les liquides newtoniens

#### 7.1.1 Phénoménologie

Les expériences dans les fluides Newtoniens ont été réalisées sur des huiles de silicone Rhodorsil, qui possèdent les propriétés intéressantes d'être calibrées en viscosité et d'être très mouillantes [92]. Ces huiles ont été largement utilisées dans l'étude de la digitation visqueuse car elles permettent de ne pas faire intervenir d'artefacts liés à l'accrochage du front ou au démouillage du film laissé derrière le doigt [93, 3, 94].

Lorsqu'on tire sur les pistons du dispositif rempli d'huile de viscosité suffisamment basse, à vitesse contrôlée, on observe dans un premier temps la



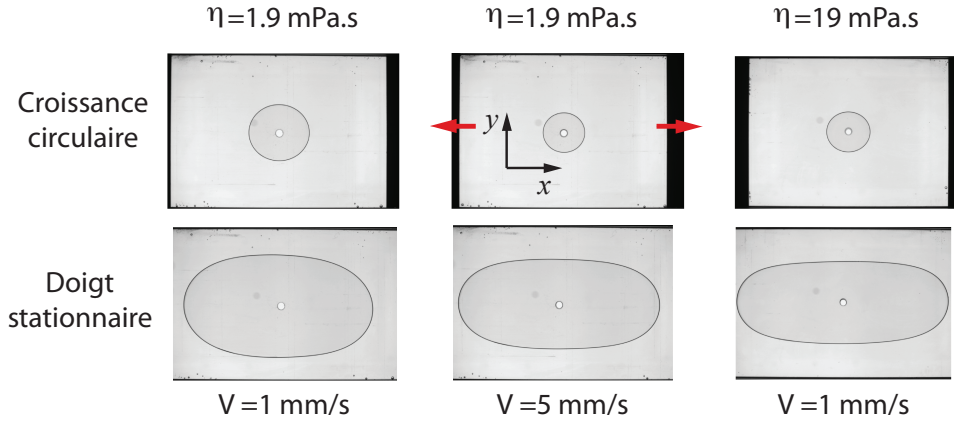


FIGURE 7.1 – Photos prises pendant des expériences à différentes vitesses et pour différentes viscosités (huiles Rhodorsil V20 et V200). Les photos du haut correspondent au début de l'expérience, pendant le régime de croissance circulaire. Celles du bas correspondent au régime de doigt stationnaire.  $L_0/W = 1.3$ .

croissance d'une bulle circulaire. Après quelques instants, cette bulle commence à sentir les bords latéraux, et la vitesse de l'interface selon  $y$  diminue par rapport à celle selon  $x$  (Fig.refphotoVisc). On constate alors que la vitesse du doigt le long de l'axe  $x$  est toujours supérieure à la vitesse des pistons (si ces derniers sont suffisamment loin). Ceci s'explique simplement par conservation de la masse car la bulle n'occupe qu'une fraction de la cellule (sa largeur est inférieure à la taille  $W$  du piston). La bulle acquiert ainsi une forme elliptique. Ce régime est ensuite suivi, selon la valeur du rapport d'aspect initial ( $W/L_0$ ) de la cellule, par un régime de doigt stationnaire, similaire au régime stationnaire de Saffman-Taylor (Fig. 7.1), ou par une forme plus complexe lorsque l'interface normal à  $x$  sent les pistons. Le régime stationnaire est clairement mis en évidence lorsqu'on mesure la largeur du doigt et sa longueur en fonction du temps (Fig. 7.2). On voit qu'au tout début de la croissance, les deux courbes sont confondues. Ce premier régime correspond à une croissance circulaire. Vient ensuite un régime transitoire où les deux courbes commencent à se séparer (croissance ellipsoïdale). Nous appellerons  $t_{max}$  le moment où la bulle quitte la croissance circulaire pour entrer dans ce régime. Il est ensuite suivi d'un régime où la largeur atteint une valeur constante et la longueur croît linéairement. Ce dernier régime correspond à

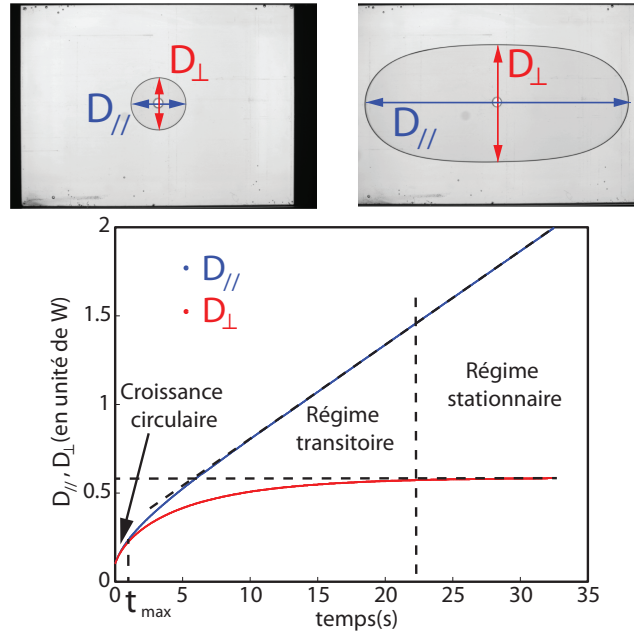


FIGURE 7.2 – Haut : Définition de la longueur  $D_{//}$  et de la largeur  $D_{\perp}$  de la bulle à différents stades de sa croissance. Bas : Longueur et largeur en fonction du temps et définition de  $t_{max}$ . Huile V100,  $L_0/W = 2$  et  $V_p = 1.5 \text{ mm/s}$

la croissance d'un doigt stationnaire (largeur  $D_{//}$  selon  $y$  et vitesse d'avancée le long de  $x$  constante).

Ces expériences ont été menées pour différents rapports d'aspect ( $W/L_0 = 0.5, 1.0, 1.3$  et  $2.0$ ). La forme de doigt stationnaire n'est atteinte que pour les rapports d'aspect  $1.3$  et  $2.0$ . Dans les autres rapports d'aspect, on observe bien une croissance circulaire au début, mais ensuite la proximité des pistons conduit à une forme plus complexe modulée par la vitesse et la viscosité du fluide (Fig. 7.4), avant que le fluide puisse atteindre un régime stationnaire.

Pour les expériences systématiques, on a utilisé des huiles de viscosité  $20, 100, 200$  fois l'eau (respectivement Rhodorsil V20, V100, V200 [92]). Une remarque importante est que quelques soient les expériences systématiques réalisées, nous n'avons jamais observé de déstabilisation dans le régime de croissance circulaire. On voit cependant que dans une expérience réalisée sur une huile de silicone V100000 à  $1 \text{ mm/s}$  (Fig.7.3), on observe une croissance instable bien avant d'atteindre un régime stationnaire. Des expériences systématiques sur cette huile n'ont cependant pas pu être faites car elle est

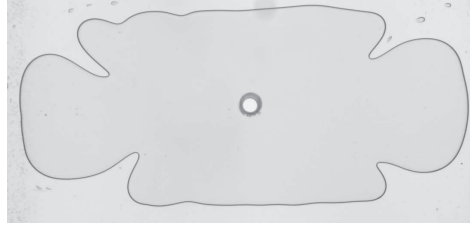


FIGURE 7.3 – Photos d’une expérience dans une huile V100000 avec  $V_p = 10\text{mm/s}$ . On observe une déstabilisation dans le régime transitoire qui conduit à une forme plus complexe qu’un doigt stationnaire.

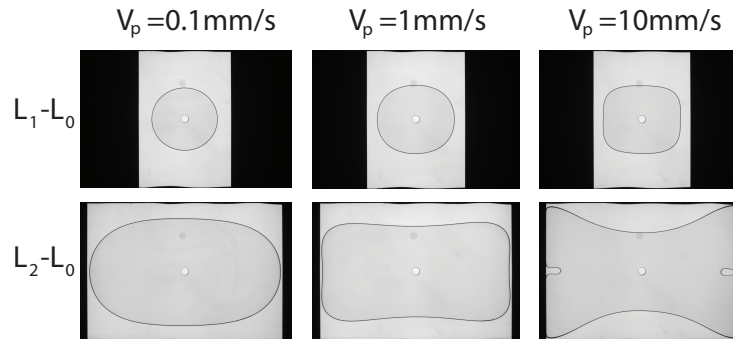


FIGURE 7.4 – Différentes formes obtenues selon la vitesse et le déplacement  $L - L_0$  des pistons, dans une huile V100 pour  $L_0/W = 0.5$ .

difficile à manipuler et a tendance à avoir rapidement des propriétés non-newtoniennes. Pour toutes les autres viscosités, il n’y a pas de déstabilisation, même dans le régime transitoire (excepté le régime de branchement à grande vitesse cf.7.1.2). On atteint un régime de digitation stationnaire, sans qu’il y ait déstabilisation de la bulle et compétition entre plusieurs tailles de doigts, comme dans le cas linéaire classique.

### 7.1.2 Paramètre de contrôle

Pour comparer la forme des doigts stationnaires dans notre expérience, par rapport à celle de l’expérience classique de digitation visqueuse en géométrie linéaire, nous avons essayé d’utiliser comme paramètre de contrôle,  $1/B$ , défini au chapitre 1. On trace en figure 7.5 la largeur relative  $\lambda$  en fonction de ce paramètre pour une huile de viscosité 100 fois supérieure à celle de l’eau, et pour les rapports d’aspect 1.3 et 2.0 (pour les rapports d’aspect 0.5 et 1.0, la forme stationnaire n’est pas atteinte). On observe que pour des valeurs

du paramètre  $1/B$  inférieures à 3000, les deux rapports d'aspect donnent des résultats similaires, et qu'ils sont relativement proches de la prédiction théorique [50, 51, 52], avec une largeur relative de doigt qui tend vers  $\lambda = 0.5$ . Cela a pour conséquence que la vitesse de l'interface au niveau de la tête du doigt, en régime stationnaire, tend vers  $(1/\lambda)V_p$  soit  $2V_p$  pour les grands  $1/B$ . Si le rapport d'aspect le permet (2.0), pour des vitesses encore plus grandes, on observe, comme dans le cas de Saffman-Taylor, un phénomène de séparation des doigts, dit de "tip-splitting", où une largeur relative n'a plus de sens (Fig. 7.6). On montre en figure 7.7 les résultats obtenus pour des viscosités V20, V100, V200. On observe alors que la V100, la V200 et la V20 donnent des résultats similaires, mais pour la V20, la courbe est légèrement au-dessus. Cette effet peut s'expliquer par des effets inertiels, étudiés en détail par Chevalier et *al* [95] pour des rapports d'aspect et des huiles de viscosités comparables, en cellule linéaire classique. Le paramètre  $1/B$ , issu de l'analyse de l'instabilité de digitation visqueuse classique, est donc un bon paramètre de contrôle pour notre dispositif. On retrouve la même phénoménologie que dans l'instabilité de Saffman-Taylor originale, pour le doigt stationnaire.

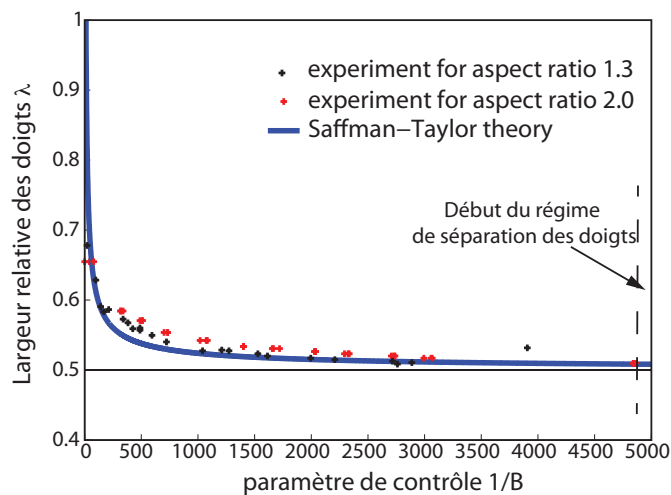


FIGURE 7.5 – Largeur relative  $\lambda$  en fonction du paramètre  $1/B$  pour des rapports d'aspect  $L_0/W = 2.0$  et  $1.3$ .

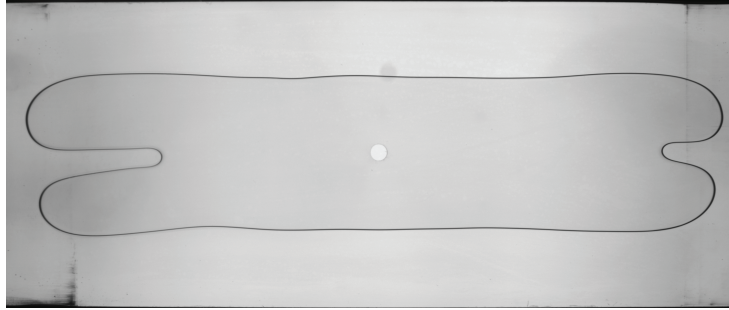


FIGURE 7.6 – Doigt se déstabilisant dans son régime stationnaire à grande vitesse (à grand  $1/B$ ). Huile V100,  $L_0/W = 2.0$ ,  $V_p = 50\text{mm/s}$ .

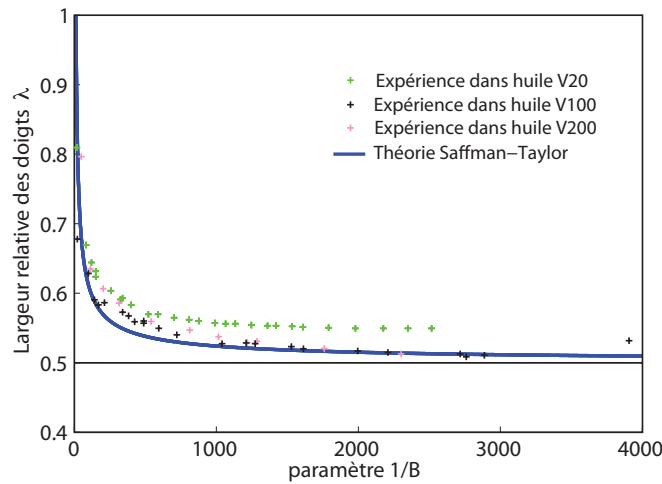


FIGURE 7.7 – Largeur relative  $\lambda$  en fonction du paramètre de contrôle  $1/B$  pour des huiles de viscosités différentes, V20, V100 et V200.

### 7.1.3 Forme du doigt stationnaire

Saffman et Taylor ont montré qu'il est possible de prédire la forme du doigt stationnaire en utilisant les transformées conformes (Eq.1.22). Ils montrent que la forme, pour une largeur relative  $\lambda$  est donné par la relation :

$$x = \frac{1-\lambda}{\pi} \ln \frac{1}{2} \left( 1 + \cos \frac{\pi y}{\lambda} \right) \quad (7.1)$$

On a tracé la forme de cette fonction, superposée à un doigt stationnaire obtenu expérimentalement en figure 7.8. On observe alors que l'accord est très bon.

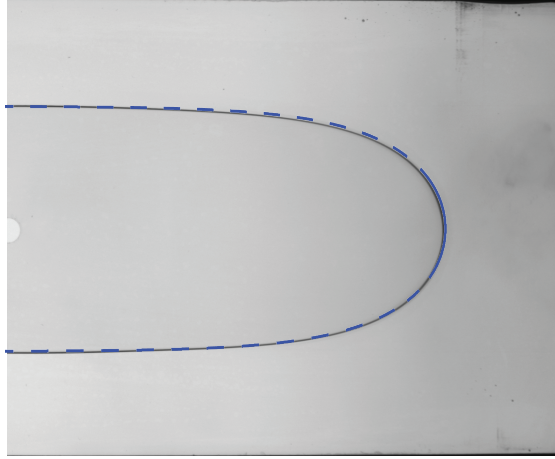


FIGURE 7.8 – Profil expérimental on a superposé la forme du doigt prédite par Saffman-Taylor pour  $\lambda = 0.53$ . Huile Rhodorsil V100,  $V_p = 4\text{mm/s}$ ,  $L_0/W = 2.0$

## 7.2 Approximation circulaire

On va maintenant appliquer les calculs de la géométrie circulaire de Saffman-Taylor, à débit constant présentée en 1.1.5, en faisant l'hypothèse qu'il s'applique à notre dispositif, au moins pendant le régime de croissance circulaire décrit en 7.1.1. Le débit d'aspiration surfacique  $Q$  en fonction de la vitesse des pistons  $V_p$  est donné par la relation :

$$Q = 2V_p W \quad (7.2)$$

L'expression du diamètre de la bulle en fonction du temps, en remplaçant  $Q$  par son expression dans l'équation 1.26, s'écrit alors :

$$D(t)^2 = D_0^2 + \frac{8V_p W t}{\pi} \quad (7.3)$$

D'après les équations 1.35 et 1.36, si nous considérons le mode  $n = 2$  qui est le plus instable, il vient les relations :

$$D_2^c = \frac{\pi b^2 \gamma}{V_p W \eta} \quad (7.4)$$

$$t_2^c = \frac{\pi}{8V_p W} \left( \frac{\pi^2 b^4 \gamma^2}{\eta^2 V_p^2 W^2} - D_0^2 \right) \quad (7.5)$$

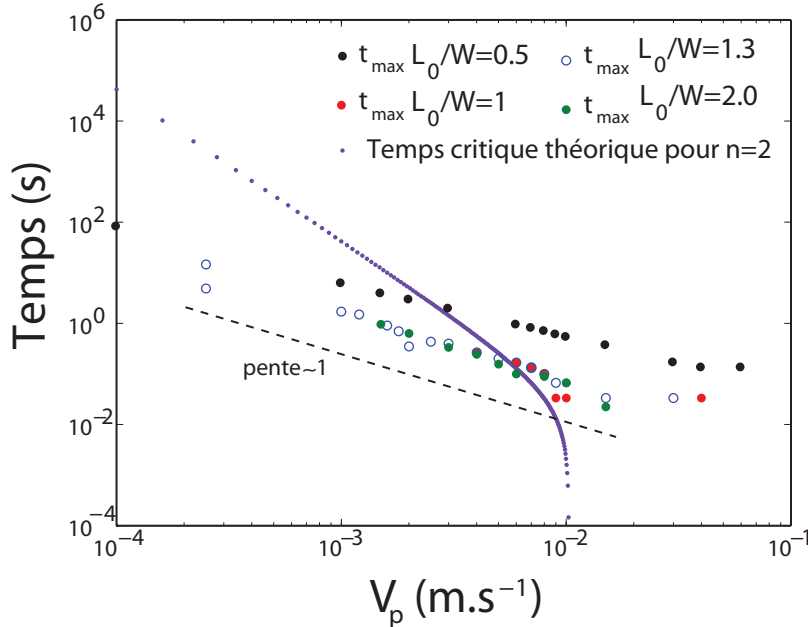


FIGURE 7.9 – Temps  $t_{max}$  au bout duquel la bulle sort de son régime circulaire, en fonction de la vitesse des pistons, pour différents rapports d'aspects, et temps critique théorique de déstabilisation  $t_c$  pour une huile Rhodorsil V100.

Au delà du temps  $t_{max}$  défini précédemment, on ne peut plus décrire le système avec la théorie classique circulaire. Pour savoir si l'instabilité, telle qu'elle est décrite dans ce cadre, peut se développer dans notre système, on va comparer le temps  $t_{max}$  au temps  $t_2^c$  calculé pour une injection circulaire classique à débit contrôlé (équation 1.36).

En figure 7.9, on a tracé l'évolution de  $t_c$  et de  $t_{max}$  en fonction de  $V_p$  pour une huile de silicone V100 avec différents rapports d'aspect. On constate que, pour une vitesse de piston donnée et pour les rapports d'aspect  $L_0/W = 1, 1.3$  et  $2.0$ , les temps  $t_{max}$  correspondant à la fin du régime de croissance circulaire, autrement dit au moment où la bulle commence à sentir les bords, sont identiques. Pour le rapport d'aspect  $L_0/W = 0.5$ , ce temps est supérieur, suggérant que la proximité des pistons retarde le début du régime transitoire.

On voit d'autre part, que pour une gamme relativement large de vitesses de piston ( $V_p \lesssim 10^{-2} \text{m.s}^{-1}$ ),  $t_{max}$  est toujours inférieur à  $t_2^c$  suggérant que

l'instabilité de mode 2, qui est celle qui devrait apparaître la première, n'a pas le temps de se développer avant le début du régime transitoire où les bords stabilisent la bulle. Pour des vitesses plus élevées ( $Vp \gtrsim 10^{-2} \text{m.s}^{-1}$ ), on a  $t_{max} > t_2^c$ . Dans ce cas-ci, l'instabilité dispose du temps  $t_{max} - t_2^c$  pour se former. On peut alors, grâce à la relation 1.37, calculer le rapport d'amplitude  $\zeta_2/\zeta_0$ , atteinte pendant ce temps, pour une perturbation initiale  $\zeta_0$ . On trace les valeurs de rapport d'amplitude en figure 7.10. On constate que pour les rapports d'aspect  $L_0/W = 1, 1.3$  et  $2.0$ , la perturbation a le temps de croître, mais dans tous les cas, son amplitude reste inférieure à deux fois celle de la perturbation initiale dans la gamme de vitesses étudiées.

Pour le rapport d'aspect  $L_0/W = 0.5$ , le rapport des amplitudes n'excède pas 4 pour les grandes vitesses. Si l'on suppose que la perturbation initiale est de l'ordre de 1 pixel, cela signifie que l'amplitude de la perturbation n'excède pas 4 pixels avant que la bulle sente l'effet stabilisant des bords. Cette dimension est inférieure à l'épaisseur du front sur les images, et la perturbation reste indécélable. Ce résultat indique donc que la proximité des bords, qui fait sortir du régime circulaire, a pour influence de tuer l'instabilité.

Il est d'ailleurs intuitif de voir les bords comme stabilisants, puisque la forme elliptique est liée au fait que l'interface côté bord voit sa vitesse décroître plus vite que côté piston. Cette géométrie est en fait un mélange de l'instabilité de digitation visqueuse en cellule circulaire et en canal linéaire. L'existence d'un rayon critique, en géométrie circulaire, retarde l'apparition de l'instabilité, ce qui a pour effet, dans notre géométrie, dans certaines conditions, d'atteindre un régime de digitation stationnaire sans déstabilisation ou phénomène de compétition comme dans l'instabilité de Saffman-Taylor classique en géométrie linéaire.

### 7.3 Expériences dans les viscoélastiques

Après avoir effectué des expériences systématiques dans les liquides Newtoniens, nous nous sommes intéressés à un matériau viscoélastique modèle, lorsqu'on modifie le taux de sollicitation autour de sa fréquence caractéristique. Nous avons travaillé avec les microémulsions connectées décrites au chapitre 3, pour lesquelles les temps caractéristiques varient de 0.4 à 1.8s pour les données traitées.



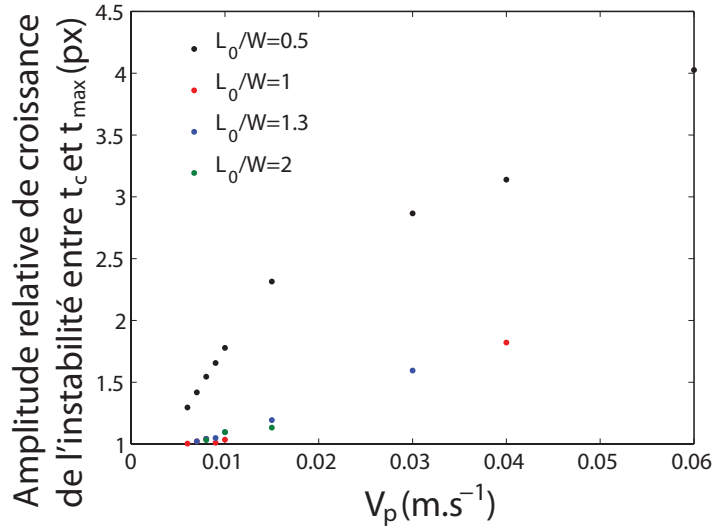


FIGURE 7.10 – Rapport de l'amplitude de la perturbation à  $t_{max}$  à l'amplitude initiale de la perturbation initiée à  $t_c$ , lorsque  $t_{max} > t_c$  sur la figure 7.9. Mode  $n = 2$ .

### 7.3.1 Observations

Lorsqu'on tire sur les pistons à vitesse constante, selon la valeur imposée, on observe grossièrement deux types de réponses. Pour des faibles vitesses de piston, la bulle croît puis se déstabilise en formant de longs doigts, plus ou moins tard (Fig.7.11, haut et milieu). Pour de grandes vitesses de piston, la bulle se déstabilise rapidement et cette déstabilisation est suivie par un nouveau processus s'apparentant aux fractures interfaciales observées dans le polyacrylamide en géométrie circulaire (Fig.7.11 (bas)).

### 7.3.2 Seuil de l'instabilité

Pour caractériser de manière quantitative ces observations, on peut, comme dans le cas du polyacrylamide, mesurer la déformation critique de l'interface  $\gamma_c$ , qui correspond au début de la déstabilisation. Cependant, dans le cas des micelles connectées, quelle que soit la vitesse, on ne peut pas utiliser le périmètre en fonction du temps, car son évolution n'est pas assez abrupte pour permettre une détermination suffisamment précise du début de la déstabilisation. Comme montré en figure 7.12 (courbe bleue), il est difficile

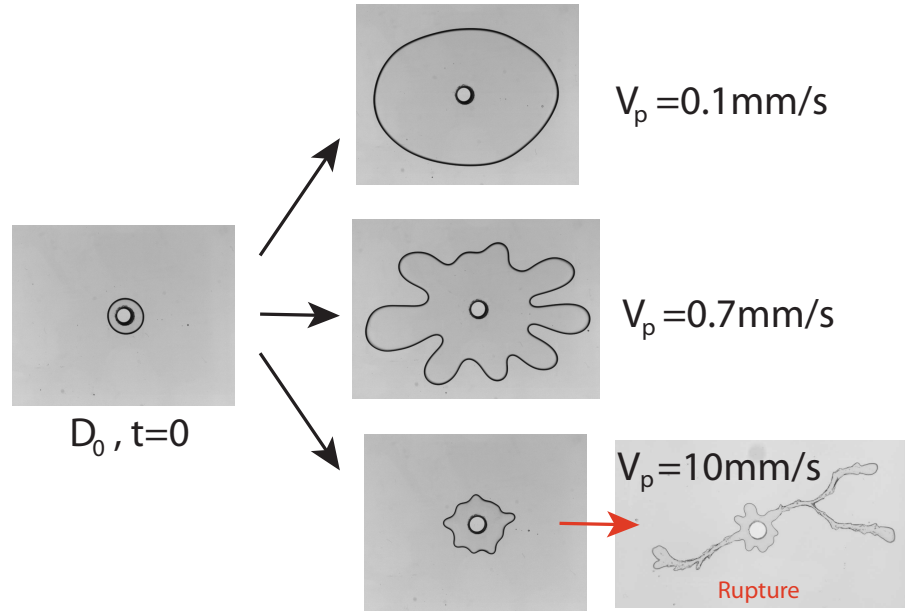


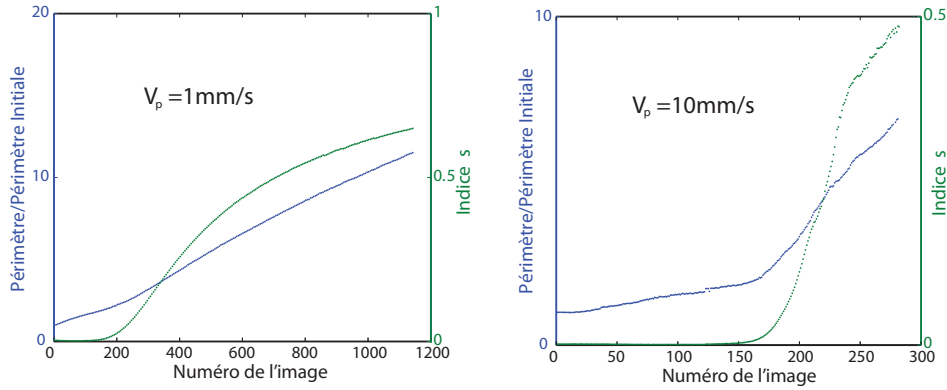
FIGURE 7.11 – Phénoménologie observé lorsqu'on augmente la vitesse des pistons, pour un diamètre initial  $D_0 = 11\text{mm}$  (fluide 2).

de détecter de manière indiscutable un seuil. Il faut donc trouver un critère plus sensible à la déstabilisation. On peut par exemple calculer, à partir des coefficients de Fourier ( $a_i$  et  $b_i$ ), l'indice suivant :

$$s = \frac{\sum_{i \geq 2} (a_i^2 + b_i^2)}{R^2 + \sum_{i \geq 2} (a_i^2 + b_i^2)} \quad (7.6)$$

Ce coefficient est nul lorsque la bulle est parfaitement circulaire, et il croît rapidement dès qu'elle se déstabilise (Fig.7.12, courbe verte). On peut alors relever le seuil en temps où l'indice dépasse la valeur initiale considérée comme un "bruit" entachant la mesure (la bulle n'est pas tout à fait circulaire), ou bien déterminer le croisement entre régime de croissance et régime constant à sa valeur initiale. Connaissant l'instant donné par ce seuil, on mesure le périmètre à ce temps et on en déduit la déformation correspondante dans le plan. Ces deux méthodes ne donnent cependant pas des résultats complètement identiques. L'une n'étant a priori pas meilleure que l'autre, on prendra la moyenne. L'écart obtenu entre les deux valeurs alors mesurées, nous permet d'estimer des barres d'erreur.

Avec cette méthode, on a mesuré les déformations critiques pour différentes

FIGURE 7.12 – Périmètre  $P$  et Indice  $s$  en fonction du temps.

| Nom du fluide | Temps caractéristique | Module élastique | Vitesse caractéristique |
|---------------|-----------------------|------------------|-------------------------|
| Fluide 1      | 1.8 s                 | 500 Pa           | 0.1963 mm/s             |
| Fluide 2      | 0.58 s                | 35.5 Pa          | 0.6201 mm/s             |
| Fluide 3      | 0.44 s                | 75.8 Pa          | 0.8125 mm/s             |
| Fluide 4      | 0.66 s                | 26 Pa            | 0.5480 mm/s             |

TABLE 7.1 – Propriétés des fluides utilisés.

vitesse de pistons  $V_p$  et pour 4 fluides différents, dont on résume les propriétés dans le tableau 7.1. On a utilisé également deux valeurs de diamètre initial  $D_0 = 11\text{mm}$  et  $D_0 = 13\text{mm}$ . Si on va au-delà de ces valeurs, il devient difficile de faire de grandes bulles circulaires. Les résultats obtenus pour un rayon  $D_0 = 11\text{mm}$  pour quelques fluides, sont tracés en fonction de  $V_p$ , sur la figure 7.13.

On constate que la déformation critique est d'abord dans un régime où elle dépend fortement de la vitesse des pistons, puis elle atteint un plateau où elle ne varie plus. Ce résultat est très robuste et il est observé dans tous les fluides testés.

### 7.3.3 Interprétation

L'existence d'un régime dépendant de la vitesse et d'un autre qui n'en dépend plus, suggère la passage d'un régime visqueux à un régime où des effets élastiques deviennent dominants, comme il l'a été proposé, dans des circonstances un peu différentes, par Nase et *al* [68] ou par Lindner et *al* [23]. Peut-on expliquer cette transition en connaissant les paramètres mécaniques

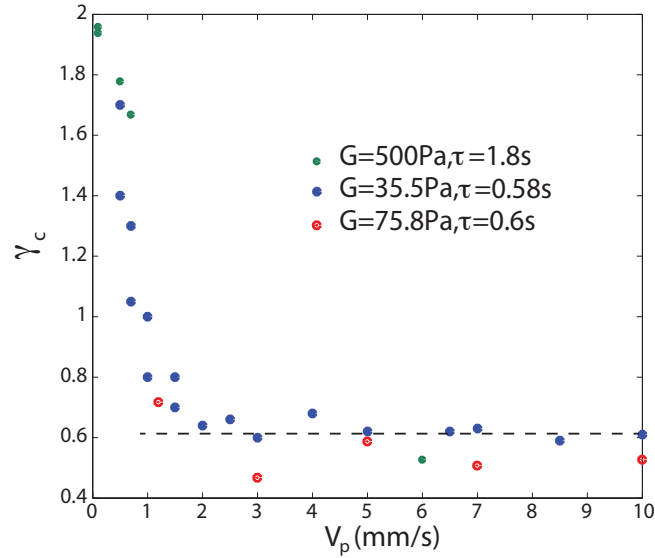


FIGURE 7.13 – Déformation critique  $\gamma_c$  en fonction de la vitesse des pistons  $V_p$  pour les fluides 1,2,3.

de l'instabilité, et le temps caractéristique du matériau ? Sachant que l'instabilité est observée dans le régime de croissance circulaire, on peut commencer par calculer les taux de cisaillement associés à la sollicitation au niveau de l'interface de la bulle :

$$\dot{\gamma}_1 = \frac{\dot{R}}{b} \quad \text{et} \quad \dot{\gamma}_2 = \frac{\dot{R}}{R} \quad (7.7)$$

où  $R$  est le rayon de la bulle. Dans tous les cas,  $\dot{\gamma}_1 > \dot{\gamma}_2$ . Or :

$$\dot{R} = \frac{dR}{dt} = \frac{Q_{tot}}{2\pi b R(t)} \quad (7.8)$$

avec  $Q_{tot}$  le débit volumique et

$$Q_{tot} = 2WbV_p \quad (7.9)$$

On déduit donc de l'équation 1.26 avec  $Q = 2WV_p$  le débit surfacique :

$$\dot{\gamma}_1 = \frac{WV_p}{\pi b \sqrt{R_0^2 + \frac{2WV_p t}{\pi}}} \quad (7.10)$$

On voit que  $\dot{\gamma}$  présente un maximum à  $t = 0$ . Autrement dit, le cisaillement est maximum lorsque la bulle est plus petite. À  $t = 0$  on a :

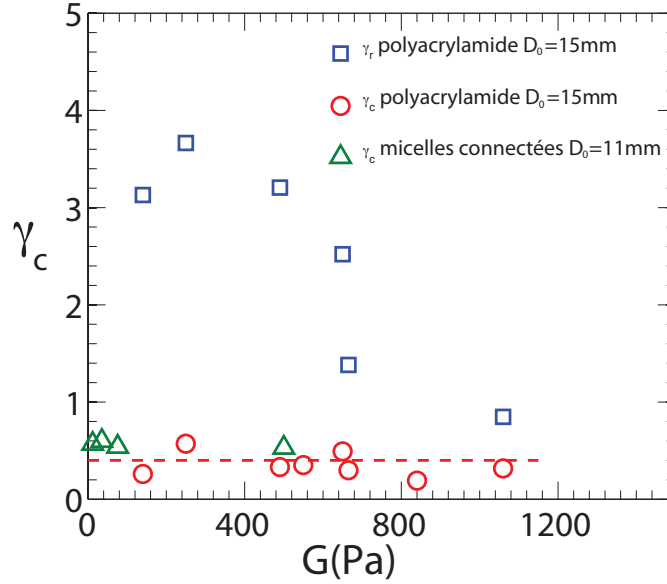


FIGURE 7.14 – Déformation critique  $\gamma_c$  en fonction du module élastique pour les micelles connectées (vert) et pour le polyacrylamide (rouge). Les points en bleu représentent la déformation à rupture  $\gamma_r$  pour le polyacrylamide.

$$\dot{\gamma}_1(t=0) = \frac{WV_p}{\pi b R_0} \quad (7.11)$$

On peut maintenant comparer ce taux de cisaillement imposé à l'inverse du temps de relaxation du matériau, qui correspond au cisaillement qui sépare un régime de réponse liquide et un régime de réponse solide :

$$\frac{WV_p}{\pi b R_0} = 1/\tau \quad (7.12)$$

Il vient ainsi une relation donnant la vitesse de piston caractéristique qui sépare un régime de réponse liquide et un régime de réponse solide :

$$V_p^c = \frac{\pi b R_0}{\tau W} \quad (7.13)$$

On donne le résultat du calcul de  $V_p^c$  en tableau 7.1 pour une température de 21°C. On voit alors que la valeur de cette vitesse est cohérente avec le passage à un régime où  $\gamma_c$  ne dépend plus de  $V_p$ . On a vu aux chapitres 5 et 6 qu'il est possible de faire de la digitation d'origine purement élastique dans notre dispositif. Si l'on trace la valeur de plateau atteinte en fonction

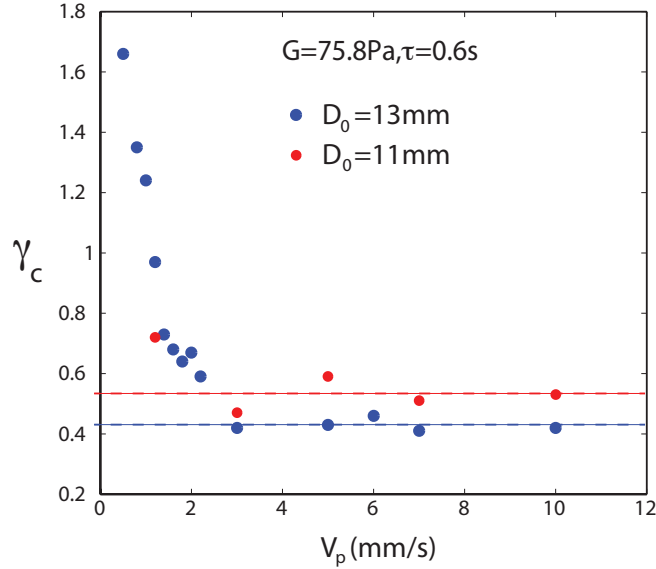


FIGURE 7.15 – Déformation critique  $\gamma_c$  en fonction de  $V_p$  mesurée pour deux fluides de diamètres  $D_0 = 13\text{mm}$  (bleu) et  $D_0 = 11\text{mm}$  (rouge) sur le fluide 3.

des modules élastiques (Fig.7.14), on constate que comme dans le cas du polyacrylamide, la déformation critique n'en dépend pas. Elle a d'autre part une valeur en accord quantitatif avec celle obtenue dans le polyacrylamide pour un même diamètre initial. En effet, la figure 5.6 permet d'écrire pour la cellule avec pistons :

$$\gamma_c \sim 3 \frac{b}{D_0} \quad (7.14)$$

Soit, pour un diamètre  $D_0 = 11\text{mm}$  et un gap  $b = 2.1\text{mm}$ ,  $\gamma_c \sim 0.6$ . C'est exactement la valeur qu'on trouve pour le fluide 2. Pour le fluide 3, on trouve une valeur plus proche de 0.5, qui est toujours en accord acceptable. Une valeur légèrement plus faible peut s'expliquer par le fait que des viscosités plus grandes rendent plus épais le film de mouillage laissé derrière le front pendant la préparation de l'expérience (cf. protocole en partie 4.2.3). L'épaisseur  $e$  de ce film de mouillage peut être estimée, d'après Tabeling *al* [94], en utilisant une loi de Bretherton [96], donnée par la relation :

$$e = 0.643b(3\eta U/\gamma)^{2/3} \quad (7.15)$$

avec  $\eta U/\gamma$  le nombre capillaire, où  $\gamma$  est la tension de surface. On a alors un gap effectif plus faible, qui diminue  $\gamma_c$ . Pour le fluide 3, on trouve alors  $2e \sim 3\text{mm}$ , soit un gap effectif  $b^* = 1.8\text{mm}$ . On calcule alors  $\gamma_c \sim 3b^*/D_0 \sim 0.5$ . On constate d'autre part que pour un même fluide, on observe une position différente du plateau en changeant  $D_0$ . Sur la figure 7.15, on constate que pour un rayon plus grand,  $\gamma_c$  diminue et on retrouve à nouveau un très bon accord avec les observations dans le polyacrylamide.

### 7.3.4 Discussion

On a donc montré qu'on passe d'un régime de digitation visqueuse à un régime de digitation purement élastique et que le passage d'un régime à l'autre correspond à un taux de cisaillement initial comparable à l'inverse du temps caractéristique du matériau. Cette phénoménologie est également très cohérente, dans le cas des grandes vitesses de piston, avec l'observation d'un processus de rupture interfaciale après la digitation (Fig.7.11, bas). Le fait que la vitesse de transition soit un peu avant le plateau élastique n'est guère surprenant, car à  $V_p^c$ , par définition, les contributions élastiques et visqueuses sont équivalentes. On n'est donc pas encore dans un régime majoritairement élastique, qui ne sera atteint que pour des vitesses un peu plus grandes.

Pour une étude quantitative du régime viscoélastique, on peut calculer pour le fluide 2, la valeur de la déformation critique pour l'instabilité de digitation visqueuse dans un fluide Newtonien de viscosité équivalente, en reprenant l'équation 1.35 présentée en chapitre 1 avec :

$$\gamma_c^{visq} = \frac{R_c(n) - R_0}{R_0} \quad (7.16)$$

On peut maintenant tracer  $\gamma_c^{visq}$  en fonction de la vitesse des pistons sur la même courbe que les déformations critiques mesurées pour le fluide 2. On constate alors, en choisissant le mode 9 d'après les observations (Fig.7.11), que le fluide passe d'un régime où les déformations critiques sont proches de la courbe visqueuse à basse vitesse, à un plateau élastique, en transitant de manière continue. Nous faisons alors l'hypothèse que ces mesures de déformation critique sont faites en régime circulaire, ce qui est conforme aux observations. Ce résultat est représenté sur la figure 7.16. Nous avons également fait des expériences à des vitesses plus faibles que la plus petite représentée sur cette courbe, mais nous n'avons alors pas pu mesurer de  $\gamma_c$ , faute de déstabilisation (ce qui est cohérent avec la divergence à vitesse nulle).

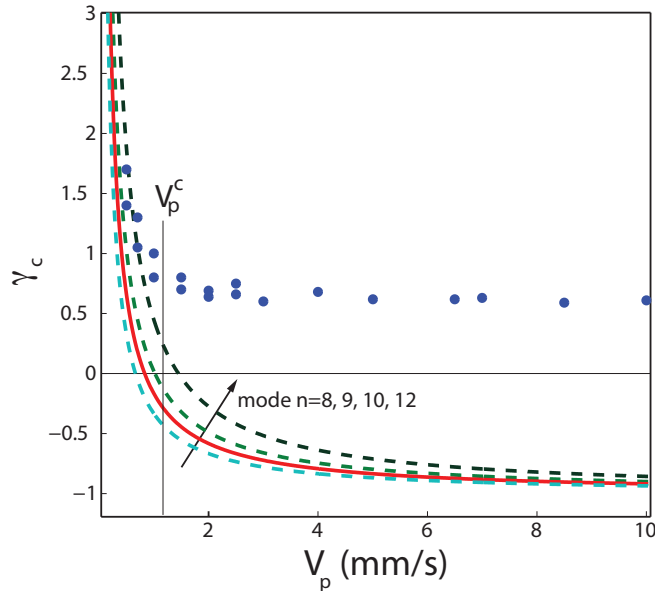


FIGURE 7.16 – Courbes représentant  $\gamma_c^{visq}$  en fonction de  $V_p$  pour plusieurs modes, comparées aux points expérimentaux des seuils mesurés sur le fluide 2.

D'autre part, on a tracé les résultats théoriques pour les liquides Newtoniens pour les modes voisin de 9. On voit que l'erreur faite sur la détermination du mode, à partir des observations, n'a pas d'incidence notable sur ce résultat. On voit donc sur cette courbe qu'entre le moment où  $\gamma_c$  quitte la courbe de  $\gamma_c^{visq}$ , et le moment où il atteint le plateau élastique, on a un régime de digitation viscoélastique, qui coïncide avec la vitesse caractéristique  $V_p^c$  calculée à partir du temps caractéristique. Le fait que la déformation critique du côté élastique  $\gamma_c^{el}$  soit au dessus de  $\gamma_c^{visq}$  pour  $V_p > V_p^c$  signifie que l'instabilité de digitation est dans ce cas, plutôt stabilisée par l'élasticité, avant que  $\gamma_c^{el}$  soit atteint en déformation.

Cependant, l'entrée dans le régime viscoélastique ne doit a priori être pilotée que par la valeur de  $V_p^c$ . Or nous avons montré que la déformation critique de l'instabilité élastique  $\gamma_c^{el}$  ne dépend pas du module élastique. Cela signifie que quelles que soient les propriétés élastiques du matériau, du moment que ce dernier est assez déformable, l'instabilité se produira au même  $\gamma_c$ , déterminée par  $D_0$ . Ainsi, modifier le temps caractéristique  $\tau$ , le module élastique  $G$  ou la viscosité  $\eta$  n'a pas d'incidence sur la valeur du plateau élastique. Admettons maintenant que nous refassions une expérience avec



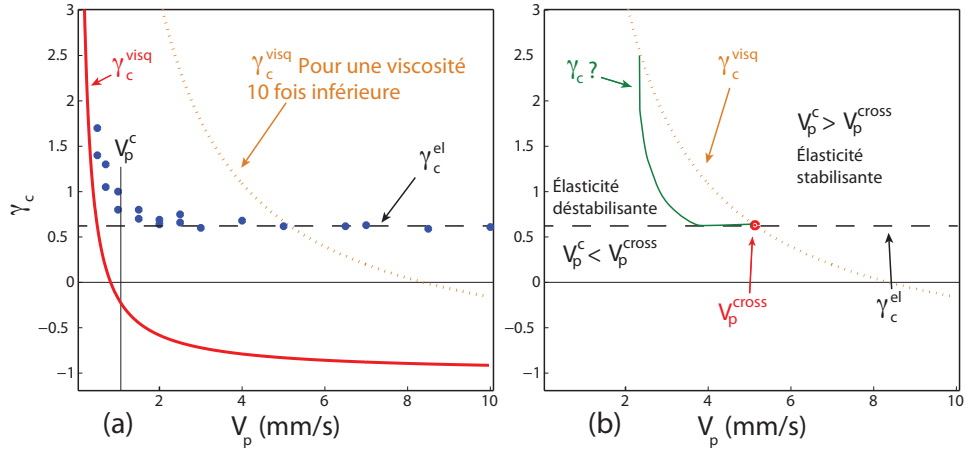


FIGURE 7.17 – (a) Courbe représentant  $\gamma_c^{visq}$  en fonction de  $V_p$  pour le mode 9 dans le fluide 2 (rouge), courbe représentant  $\gamma_c^{visq}$  en fonction de  $V_p$  pour une viscosité 10 fois inférieure (orange) et seuils expérimentaux pour le fluide 2 (bleu). (b) : Illustration de l'idée proposée sur une influence stabilisante ou déstabilisante de l'instabilité élastique.

un fluide possédant le même temps caractéristique et donc la même vitesse caractéristique que le fluide 2 mais en diminuant de 10 fois la viscosité et en diminuant le module élastique en conséquence. Si on fait l'hypothèse que le mode reste le même, comme le montre la figure 7.17(a),  $\gamma_c^{visq}(V_p)$  coupera  $\gamma_c^{el}(V_p)$  à la même valeur de déformation. Cependant, la vitesse correspondant au croisement sera à gauche de  $\gamma_c^{visq}(V_p)$ , contrairement aux cas précédents, rencontrés expérimentalement. Dans ce cas-ci, cela suggère que les propriétés élastiques soient plutôt déstabilisantes du point de vue de la digitation et que  $\gamma_c(V_p)$  quittera  $\gamma_c^{visq}(V_p)$  par en dessous, pour rejoindre  $\gamma_c^{el}(V_p)$ . On doit donc définir la vitesse de croisement  $V_p^{cross}$  correspondant à  $\gamma_c^{visq}(V_p) = \gamma_c^{el}(V_p)$ . Ainsi, cela suggère que si  $V_p^c < V_p^{cross}$ , l'élasticité est déstabilisante, et si  $V_p^c > V_p^{cross}$ , elle est stabilisante avant d'atteindre  $\gamma_c^{el}$ . On résume cette idée en figure 7.17(b). Bien entendu, cette remarque est spéculative et nécessite une vérification expérimentale. Cela fait partie des prochains travaux que nous entreprendrons. En particulier, quelle est l'influence du taux de croissance grandissant côté élastique prédit par Mora et al [26], par rapport à cette remarque ?

Les résultats expérimentaux que nous obtenons sont à comparer avec ceux obtenues par Lindner et al [22] dans une solution de polymères flexibles de PEO. Les auteurs montrent que l'élasticité a pour effet d'augmenter la largeur

des doigts. Cette élargissement peut être prédit en intégrant l'élasticité à une tension de surface effective qui se retrouve plus forte que la vraie tension de surface du fluide. Lindner et *al* montrent ainsi que pour leurs paramètres d'expérience, l'élasticité est stabilisante. Cependant, dans une expérience de digitation avec un fluide à seuil, Lindner et *al* [23] montrent qu'à très basse vitesse, quand les effets élastiques du seuil commencent à se faire sentir, alors les doigts deviennent plus fins et des structures branchées apparaissent. Dans ce cas-ci, l'élasticité apparaît plutôt déstabilisante, comme nous en suggérons la possibilité dans le paragraphe précédent.

D'autre part, Mora et *al* [26] montrent que l'élasticité augmente le taux de croissance de l'instabilité jusqu'à le faire diverger. On peut remarquer, que dans notre cas, sur la figure 7.11 (milieu), les doigts ont pu croître avec un taux plus grand que dans le cas de la V100000, pourtant instable dès le début de l'expérience pour une vitesse comparable. Cependant dans leur cas, l'influence grandissante de l'élasticité est suivie d'une rupture. Une comparaison rigoureuse des deux expériences, avec les critères utilisés dans notre étude est délicate, car l'existence d'une déformation critique est propre à la géométrie circulaire. La description de Mora et *al* est une description en géométrie quasi-linéaire, où ils peuvent faire une analyse de stabilité linéaire en utilisant les calculs en géométrie linéaire. Dans ce cas-ci il n'y a pas de seuil d'instabilité et leur description doit donc être différente. Il faudrait donc dans notre système faire une description expérimentale allant plus dans ce sens.

Une étude morphologique des doigts en régime viscoélastique serait également particulièrement pertinente. Pour cela, une géométrie permettant de plus grandes déformations sans effets de bord serait indispensable. On pourrait notamment utiliser une cellule circulaire, dans laquelle nous avons déjà observé la transition doigt visqueux/doigt élastique (Fig.7.18). Il faudrait alors pouvoir contrôler le débit en injectant un liquide immiscible de faible viscosité, et chimiquement inerte vis à vis des solutions de micelles connectées.

Une autre question intéressante à explorer serait de comprendre pourquoi, dans le cas du matériau viscoélastique, la digitation a une forme un peu différente. On constate notamment que la forme avec un col resserré de la digitation dans le polyacrylamide n'est jamais observée. Une piste intéressante serait d'étudier l'influence du comportement du matériau aux grandes déformations. Une différence fondamentale entre les micelles connectées

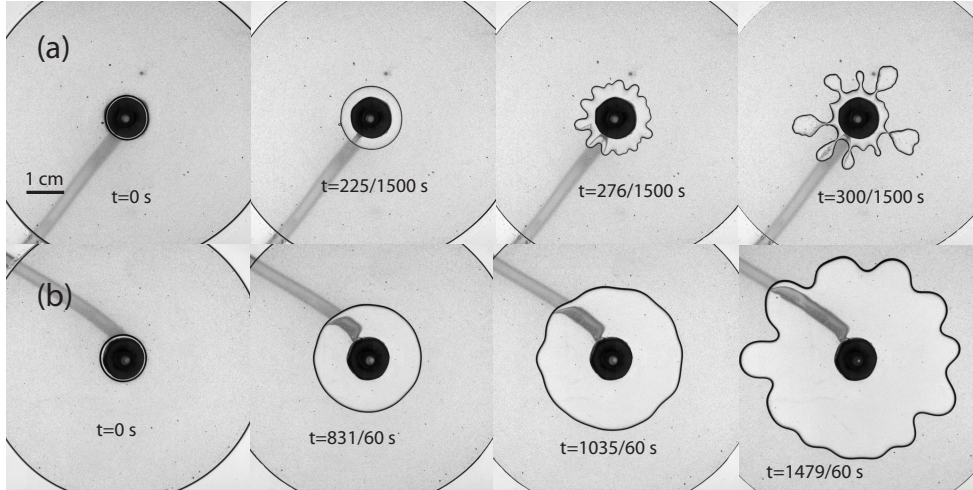


FIGURE 7.18 – *Expérience mettant en évidence la transition doigt visqueux/doigt élastique dans une géométrie circulaire classique avec le fluide 4.*

et le polyacrylamide est que ce dernier possède des propriétés de durcissement à grande déformation. Il n'est sans doute pas néo-Hookéen sur toute sa plage de déformation. Nos observations qualitatives semblent montrer que la forme avec un col est d'autant plus marquée que cet effet est grand. Les micelles connectées, en revanche, suivent un modèle néo-Hookéen jusqu'à la rupture.

# Conclusion et perspectives

Au cours de ce travail, nous avons montré l'existence d'une nouvelle instabilité de digitation dans un gel hyperélastique confiné dans une cellule de Hele-Shaw. Nous avons d'abord, dans une géométrie circulaire, prouvé que cette instabilité se propage dans le volume du matériau, comme dans le cas de l'instabilité de Saffman-Taylor. De plus, son mécanisme d'apparition est d'origine purement élastique. Nous avons pu clairement écarter l'influence de la tension de surface, de l'adhésion ou de tout autre contribution énergétique en montrant que le module élastique n'influence ni la déformation au seuil de l'instabilité ni la distance critique d'avancée du front. Nous avons également montré que cette avancée critique du front est proportionnelle à l'espacement entre les deux plaques de verre. Elle n'est donc gouvernée que par la géométrie.

Cette instabilité est d'autre part sous-critique. Une hystérésis a clairement pu être identifiée en mesurant la pression pendant l'injection d'air. Nous avons montré expérimentalement que la largeur des doigts, à leur base, varie de manière non-linéaire avec le gap en géométrie circulaire. Cependant, ces observations suggèrent une relation linéaire dans la limite du front plan. Une étude morphologique suggère qu'il existe une longueur d'onde dans cette instabilité, dont nous avons déterminé les modes en fonction d'un paramètre géométrique défini comme le rapport du gap et du diamètre initial de la bulle. Nous avons pu, d'autre part, faire une mesure du profil dans l'épaisseur grâce à des mesures d'absorption de lumière dans des gels colorés.

L'expérience en géométrie circulaire a permis d'identifier clairement le type de mécanisme à l'oeuvre. Cette instabilité est sous-critique, élastique, et d'origine purement géométrique. Pour aller plus loin, et décrire cette instabilité de manière théorique, la géométrie radiale n'est cependant pas adaptée. Nous avons ainsi construit un nouveau dispositif de manière à faire croître de la digitation en front plan. Cela nous a permis de développer une colla-

boration avec l'équipe du Prof. Mahadevan pour modéliser théoriquement le problème. La théorie prédit la longueur d'onde de l'instabilité et son seuil d'apparition. Les résultats sont très cohérents avec les expériences que nous avons menées. Un très bon accord a également été trouvé avec des simulations par éléments finis. Nous avons aussi pu montrer, en confrontant expériences et simulations, que l'amplitude, pour un module élastique donné, varie linéairement avec le gap.

La position d'un doigt peut être finement contrôlée lorsque le front est amené dans sa zone hystérétique. Cela ouvre peut-être la voie à certaines applications en micro-fabrication. Des expériences qualitatives ont montré une grande sensibilité du seuil à la courbure initiale du front. En particulier, une forme convexe abaisse ce seuil, tandis qu'une forme concave fait disparaître l'instabilité. Il semblerait aussi que le rayon de courbure influence la forme du doigt et que, lorsqu'il est comparable au gap, il puisse provoquer du branchement.

Après avoir montré l'existence d'une instabilité de digitation d'origine purement élastique, nous nous sommes intéressés dans un second temps, à la digitation dans un matériau viscoélastique. Dans un liquide de Maxwell, nous avons mis en évidence, dans une géométrie circulaire, le passage d'un régime de digitation où les seuils en déformation de l'interface dépendent de la vitesse de sollicitation (comme dans l'instabilité de Saffman-Taylor en circulaire), à un régime de digitation où ce seuil n'est plus dépendant de la vitesse. Dans ce dernier régime, la digitation est suivie par un phénomène de rupture similaire à celui observé dans le cas purement élastique. Nous avons d'autre part montré que le seuil observé aux grandes vitesses correspond quantitativement à la valeur du seuil observé dans un gel purement élastique. Nous avons ainsi montré qu'on passe continûment d'un régime de digitation majoritairement visqueuse, à un régime de digitation purement élastique. Nous suggérons d'autre part, qu'en géométrie circulaire, selon la valeur du temps caractéristique du matériau et de sa viscosité, le module élastique n'ayant aucune influence sur l'instabilité, l'élasticité pourrait avoir une influence soit stabilisante, soit déstabilisante.

Nous avons par ailleurs montré qu'en injectant un fluide de viscosité élevée, nous modifions les échelles de longueur typiques des motifs formés. Cette observation nous a inspiré une expérience, qui, dans l'esprit, se rapproche de celle de Saffman-Taylor : qu'observerait-on si un gel mou poussait un gel plus dur ? Ou si le fluide envahissant était viscoélastique ? On

voit là que le simple fait d'avoir observé de la digitation dans un matériau élastique et d'avoir mis en évidence une transition continue de digitation visqueuse à digitation élastique ouvre certaines pistes intéressantes pour une généralisation de la digitation aux solides et aux liquides. Nous avons également parlé de l'existence potentielle de branchement dans l'instabilité de digitation élastique. Il est tout à fait envisageable, avec le dispositif en front plan, d'étudier cela plus en détail, en modifiant de manière contrôlée les courbures locales initiales.

Les doigts visqueux, comme les doigts élastiques, se propagent dans l'épaisseur du matériau, avec des conditions de déplacement nul aux parois dans les deux cas. Nous avons ainsi mis en évidence un des rares exemples de forme générique dont l'origine peut être visqueuse ou élastique dans les instabilités mécaniques. L'enroulement de filament en est un autre. Cependant, la digitation constitue un modèle de croissance, ce qui conduit à des perspectives particulièrement intéressantes. Dans la mesure où nous avons montré qu'on passe continûment de la digitation visqueuse à la digitation élastique, peut-on imaginer un motif dont la forme et les échelles de longueur seraient contrôlées en dosant contributions élastiques et visqueuses ? D'autre part, si le branchement existe dans la digitation élastique, quelle influence cela peut-il avoir dans la croissance de structures branchées telles que les poumons ou les vaisseaux sanguins ? Y-a-t-il un retro-contrôle dû à l'action simultanée de l'élasticité et de la viscosité ? Nos observations ont lieu bien entendues dans des géométries confinées en deux dimensions. Il existe encore de nombreuses questions sans réponse, sur la manière de créer des structures branchées en trois dimensions. Comme la digitation élastique n'a pas été étudiée jusqu'à présent, il serait ainsi très intéressant d'étudier son influence sur la croissance de telles structures.

D'autre part, l'expérience en front plan est à ce jour la seule expérience de décollement en géométrie linéaire. Elle pourrait permettre d'étudier de manière systématique le mécanisme de digitation interfaciale en ne faisant croître qu'un seul doigt dans une géométrie plus simple à contrôler et à modéliser, un peu comme le canal linéaire de Saffman-Taylor. En particulier, une étude de la digitation interfaciale branchée à haute vitesse paraît particulièrement accessible à court terme.



## Annexe A

# De la digitation vers la rupture dans la laponite

Dans cette annexe, nous présentons des résultats qualitatifs obtenus dans une suspension colloïdale de laponite. Ces expériences ont été réalisées sur le dispositif avec pistons, dupliqué dans le laboratoire du Prof. JO Fossum à l'université de Trondheim. Nous avons réalisé ces expériences en collaboration avec JO Fossum et Kristian Hox, un étudiant de Master. Le but de ce projet est d'étudier comment la digitation visqueuse est influencée par une transition de phase de type vitreux. Comme mentionné au chapitre 4, lorsque le matériau devient solide, on s'attend à observer une fissure, mais que se passe-t-il entre le régime de réponse liquide et le régime de réponse solide ? Et dans quelle mesure une signature de la transition vitreuse pourrait-elle être observée à travers la transition doigt/fissure ? Nous avons choisi de travailler avec une argile synthétique, la laponite, car ce système a été beaucoup étudié ces dernières années et présente un certain nombre d'avantages expérimentaux. L'étude des argiles est d'autre part d'une grande importance en géophysique car elle constitue un composé omniprésent de la croûte terrestre. De nombreux défis technologiques y sont associés, tels que le stockage des déchets ou la séquestration du CO<sub>2</sub>. Elle trouve également de nombreuses applications dans l'industrie.



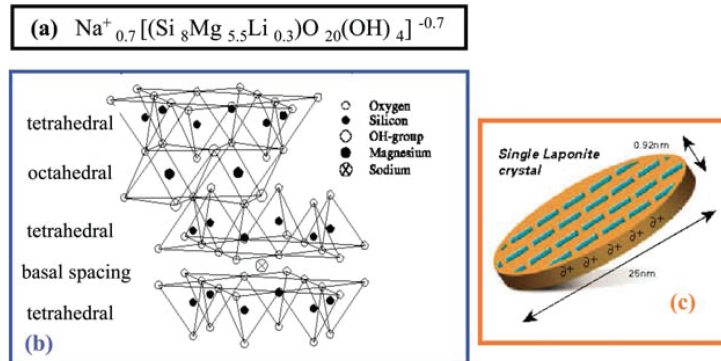


FIGURE A.1 – (a) Formule chimique empirique de la laponite. (b) Schéma de la structure physico-chimique de la laponite. (c) Schéma représentant une particule de laponite. D’après [29]

## A.1 La laponite

La laponite est une argile synthétique aux propriétés proches de l’hectorite, présente dans la nature. Elle est constituée de silicate de magnésium hydraté (cf Fig.A.1(a) pour sa formule chimique empirique) et se présente sous la forme d’un feuillet d’oxyde de magnésium de structure octaédrique, pris en sandwich entre deux feuillets de silice, de structure tétraédrique, comme schématisé en figure A.1(b). Une particule de laponite possède une forme proche d’un disque dont le diamètre serait de  $\sim 30\text{nm}$  et l’épaisseur de  $\sim 1\text{nm}$  (Fig.A.1(c)). Une propriété intéressante des particules de laponite est qu’elles sont biréfringentes. On se servira de cette propriété pour effectuer nos observations.

Les propriétés chimiques de la laponite ont pour conséquence que la surface d’une particule est chargée négativement et que sa tranche est chargée positivement. Des molécules d’eau peuvent venir s’intercaler entre les particules et former des structures complexes, qui dépendent de différents paramètres expérimentaux. On peut notamment former des gels, constitués d’un réseau macroscopique de particules reliées par des interactions attractives. On peut également, à plus grande concentration, former des verres répulsifs et des verres de Wigner, où les interactions sont répulsives, et où la micro-structure présente une structure en cage, chaque particule étant entourée d’un grand nombre de particules. En ajoutant du sel, on peut également écranter les interactions répulsives et les rendre attractives, et ainsi former un verre attractif. Ces états sont hors d’équilibre et dépendent

fortement de l'âge des échantillons. On préfère d'ailleurs parler de diagramme d'état, plutôt que de diagramme de phase. C'est précisément ces états qui nous intéressent dans cette étude. Il existe cependant d'autres états. A haute concentration, on peut observer des états nématiques. Lorsque les quantités de sel sont élevées, on observe des processus de floculation tandis qu'à basse concentration en laponite, il peut y avoir séparation de phase.

Depuis le début des années 90, un intense effort de recherche a été mené, dans le but de dresser un diagramme d'états de la laponite. Mais de nombreux résultats expérimentaux obtenus par le passé dans différents groupes n'étaient pas cohérents, faisant naître une certaine controverse. Des protocoles ou des temps d'attente trop différents d'une étude à l'autre, ont été proposés comme raisons possibles. En 2011, Ruzicka et *al* [29] ont publié une revue comparant et synthétisant différents travaux réalisés ces dernières années dans le but de dresser un diagramme actualisé. Ce diagramme est présenté en figure A.2. Il représente les différents états observés à temps long, en fonction de la concentration en laponite et en sel. Pour notre étude, nous avons choisi de fixer la concentration en laponite à 3.0 wt% en faisant varier l'âge de l'échantillon et la concentration en sel. Nous pouvons ainsi passer d'un état liquide à un verre aux interactions répulsives pour de faibles concentrations

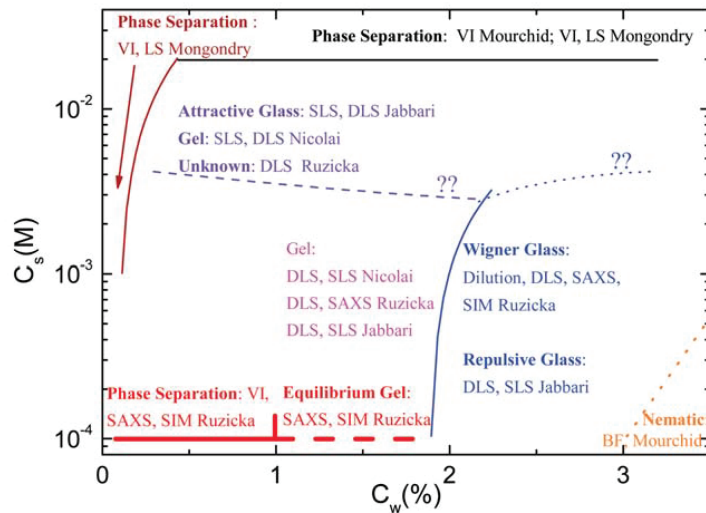


FIGURE A.2 – Nouveau diagramme d'état de la laponite, proposé par Ruzicka et *al* [29], synthétisant des données expérimentales de la littérature. SIM fait référence à des simulations numériques. D'après [29]

en sel, ou d'un état liquide à un verre attractif pour des concentrations en sel plus élevées.

## A.2 Protocole

Pour ces expériences, nous avons utilisé la laponite RD, fournie par Laporte Ltd. Nous avons reproduit le protocole suggéré par Ruzicka et *al* [29]. Comme l'ont montré Bonn et *al* [97], le protocole est crucial pour une meilleure comparaison des différents travaux expérimentaux. Avant de manipuler la laponite, celle-ci est séchée 24 heures dans un four à 170°C. Comme mentionné dans la partie précédente, nous avons travaillé à une concentration massique de 3.0 wt% en dissolvant les particules dans de l'eau distillée plus ou moins riche en NaCl, avec des valeurs de concentration en sel allant de  $10^{-3}$  à  $10^{-2}$ M. Nous avons ainsi pu nous placer dans une zone de transition liquide/verre répulsif ou liquide/verre attractif. Tous les échantillons ont été préparés à une température d'environ 23°C dans une boîte à gants, saturée en azote. Lorsque la laponite est introduite dans l'eau, celle-ci est remuée avec un agitateur magnétique pendant 30 minutes. L'échantillon est ensuite filtré avec une membrane de taille de pores 0.8 micromètre, afin d'avoir un état initial reproductible. Le décompte du temps d'attente débute juste après la filtration.

## A.3 Résultats expérimentaux

On a utilisé le dispositif avec pistons en fixant le rapport d'aspect à 1 pour toutes les expériences ( $L \times W = 100 \times 100\text{mm}^2$ ). La vitesse des pistons est fixée à 0.2mm/s. On part d'une condition initiale circulaire, avec un diamètre de bulle de 10mm. Les expériences sont filmées par au-dessus, comme dans le cas du polyacrylamide ou des fluides de Maxwell. On a maintenant ajouté des polariseurs croisés, pour tirer parti de la biréfringence de l'échantillon. La forme en plaquettes de la laponite a tendance à la rendre rhéofluidifiante lorsqu'elle est cisailée (cf. chapitre 2) car les particules s'alignent dans l'écoulement. Cet alignement peut être mis en évidence grâce à des polariseurs croisés.

On a observé trois types de réponses clairement identifiables. Ils sont résumés en figure A.3 où l'on a représenté les différents états en code couleur

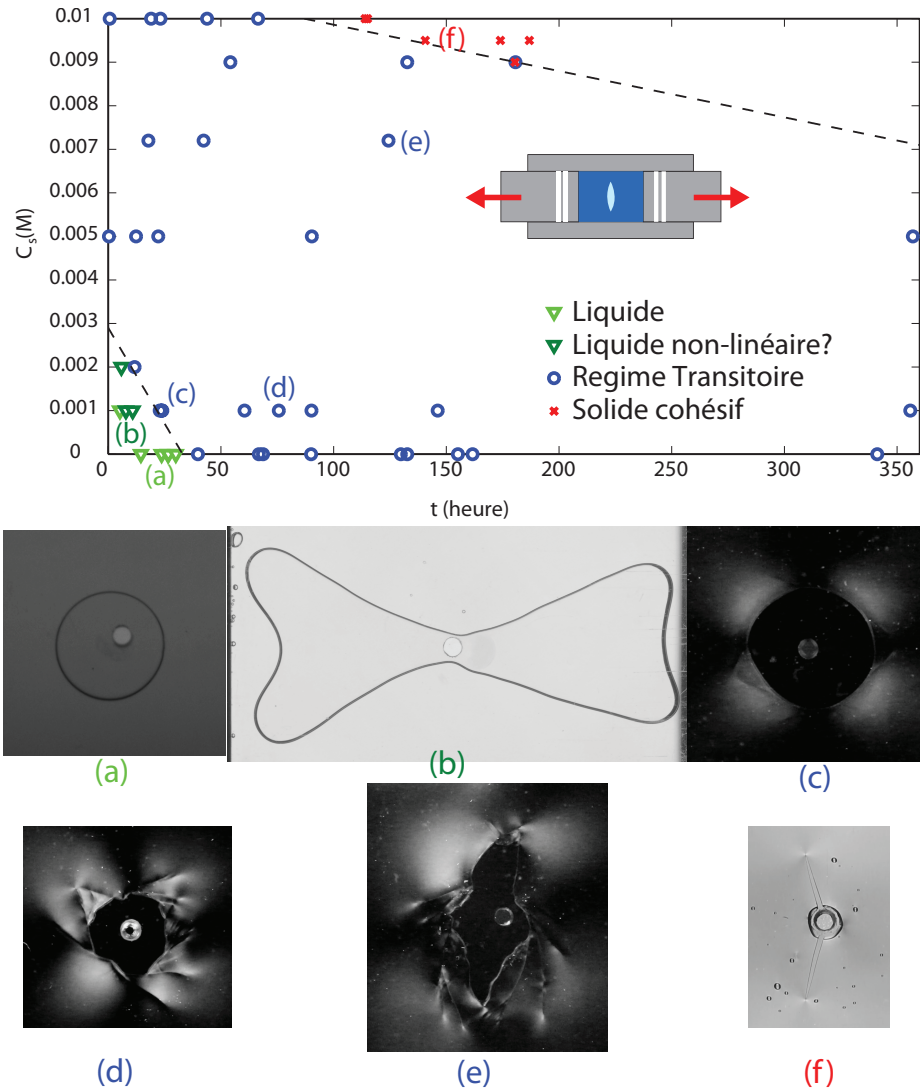


FIGURE A.3 – Diagramme d'état en réponse mécanique, mesurée expérimentalement pour une concentration massique en laponite fixée à 3.0wt%. L'axe des ordonnées représente la concentration en sel  $C_s$  et l'axe des abscisse représente la concentration en laponite  $C_w$ . Chaque point représente une expérience distincte.

pour toutes les expériences réalisées en faisant varier la concentration en sel et la concentration en laponite. On peut observer une réponse liquide, où l'on fait croître une bulle, qui donne ensuite un doigt dans l'axe du mouvement

des pistons. On peut également observer un régime transitoire, où l'on fait croître une interface rugueuse, et où la forme est complexe, ou alors une réponse complètement solide où l'on observe la propagation d'une fissure dans le sens perpendiculaire à celui du mouvement des pistons. On passe ainsi de manière continue d'une réponse liquide - dans le sens du mouvement des pistons - à une réponse solide - dans le sens perpendiculaire - en passant par un régime transitoire où la réponse est plus complexe. On voit qu'aux temps longs, ces observations sont en accord avec le diagramme tracé en figure A.2.

Pour dépasser le stade descriptif, nous avons voulu mettre au point une méthode pour sonder la réponse du matériau dans son volume, devant l'interface. Lorsqu'on réalise une expérience dans le régime transitoire, entre deux polariseurs croisés, comme le montre l'image (d) de la figure A.3, on observe des lignes éclairées. Nous avons pu mettre en évidence, en effectuant des expériences avec des particules, pour visualiser les déformations, que ces lignes représentent des lignes de cisaillement dans l'échantillon. On explique cet éclairissement comme étant lié à l'alignement des particules sur des plans de glissement dans l'épaisseur. Elles correspondent à une localisation de la déformation. Lorsqu'on réalise ce type d'expérience du côté liquide, on n'observe pas de tels éclairissements. Du côté solide, lorsqu'une fissure se propage, seules les pointes s'éclairent, sans faire apparaître de ligne (cf. Fig.A.3(f), mais en polarisation circulaire).

Comme le montrent les images correspondant à différents points du diagramme, plus la concentration en sel est grande, et donc plus les interactions sont attractives, et d'autre part plus les temps d'attente sont longs, plus le matériau répondra en localisant sa déformation. On passe d'une réponse totalement homogène dans le cas du liquide (Fig.A.3(a), (b)) à une réponse qui commence à localiser, tout en gardant une forme globalement circulaire (Fig.A.3(c)) lorsqu'on attend quelques heures de plus, pour de faibles concentrations en sel ( $10^{-3}M$ ). Lorsqu'on attend quelques dizaines d'heures de plus, on observe une réponse très hétérogène. L'interface est rugueuse et un certain nombre de "lignes de cisaillement" de tailles différentes sont observées. Aucun axe de réponse de la forme de l'interface n'est cependant clairement privilégié (Fig.A.3(d)). En revanche, pour des temps encore plus longs, et en ajoutant du sel, on observe une forme d'interface qui ressemble de plus en plus à une fissure (Fig.A.3(e)). Dans ce cas aussi, des lignes de cisaillement sont observées dans l'échantillon. Au-delà d'un certain temps

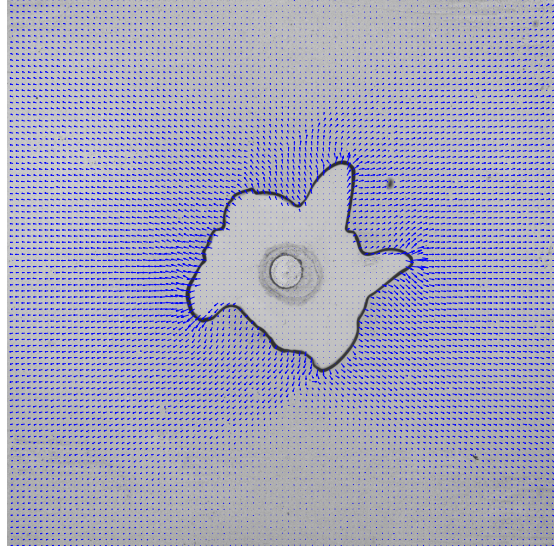


FIGURE A.4 – *Champ de déplacement mesuré dans le régime transitoire, en mettant des particules de silice dans l'échantillon.*

d'attente et d'une certaine concentration en sel, on a toujours observé une réponse solide avec formation d'une fissure, où la déformation ne se localise qu'aux deux pointes (Fig.A.3(f)). Dans ce dernier régime, on n'observe aucune hétérogénéité de réponse dans le volume du matériau, hormis autour des pointes de la fissure. Nous n'avons, d'autre part, jamais observé de fracture de ce type pour un verre répulsif. Une remarque intéressante est que lorsque des lignes d'éclairement apparaissent dans les échantillons, celles-ci finissent par disparaître si l'on attend suffisamment longtemps, suggérant que les particules reprennent une conformation désordonnée.

Dans le cas des expériences correspondant à l'image (b) de la figure A.3, on obtient une forme de doigt très particulière, avec une largeur d'autant plus grande qu'on est proche des pistons. Dans ce cas on n'observe aucune hétérogénéité en biréfringence, et c'est la raison pour laquelle nous avons considéré cette réponse comme "liquide". Une telle forme peut être liée à des propriétés rhéologiques non-linéaires.

## A.4 Perspectives

L'utilisation de la biréfringence ne nous a pas permis de remonter à des observables expérimentales pour caractériser la transition vitreuse de la la-

ponite en réponse du matériau. Nous avons cependant pu mettre en évidence le passage d'une réponse liquide homogène à celle d'un solide cohésif, très localisée. Entre ces deux régimes, une réponse très hétérogène et plus ou moins localisée semble cohérente avec les propriétés de fluide à seuil de la laponite dans les régimes répulsif, reportée dans la littérature. En effet, un certain nombre d'expériences de rhéologie, ont montré qu'au-delà du seuil, "l'écoulement" peut ne pas être homogène [98].

Nous pourrions sans doute avoir plus de mesures quantitatives en introduisant des particules dans les échantillons, afin de remonter aux déformations, par corrélation d'images. Cette technique nous a déjà permis de faire quelques mesures de champ de déplacement (Fig. A.4) ou de mettre en évidence que les lignes d'éclairement en biréfringence correspondent à des "plan de cisaillement" dans l'épaisseur. Mais elle pose cependant un certain nombre de problèmes. D'abord, avec des particules de taille très inférieure au gap, le problème est purement tridimensionnelle. Or la corrélation d'images, par définition, ne nous donne que des déplacements bidimensionnels. Nous avons pu montrer qu'à temps d'attente élevé (verre répulsif ou attractif), l'échantillon glisse sur les plaques de verre. Dans le régime liquide, on s'attend à un profil de Poiseuille avec une condition de non glissement aux parois, mais nous ne connaissons pas a priori le profil dans les régimes intermédiaires. D'autre part, cette méthode est intrusive, et nécessite donc qu'on soit sûr que le diagramme d'état n'est pas trop modifié. Il faut utiliser de la silice, et les bonnes dimensions pour les particules, afin de ne pas agir sur la physico-chimie [99]. Il y a également le problème de la sédimentation, qui se produit rapidement sur des gaps aussi faibles et qui interdit toute expérience dans des régimes trop proches du liquide. Il faudrait utiliser des particules iso-densité et étudier différentes concentrations pour optimiser la résolution spatiale des observations, sans trop modifier les propriétés de la microstructure.

## **Annexe B**

### **Articles**



## Bulk Elastic Fingering Instability in Hele-Shaw Cells

B. Saintyves,<sup>1,2,\*</sup> O. Dauchot,<sup>2,3</sup> and E. Bouchaud<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup>CEA-Saclay, IRAMIS, SPEC, F-91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

<sup>2</sup>PSL, 75231 Paris Cedex 05, France

<sup>3</sup>ESPCI-Paris Tech, UMR Gulliver, EC2M, 10 Rue Vauquelin, 75231 Paris Cedex 05, France

(Received 22 June 2012; revised manuscript received 26 April 2013; published 22 July 2013)

We demonstrate experimentally the existence of a purely elastic, nonviscous fingering instability which arises when air penetrates into an elastomer confined in a Hele-Shaw cell. Fingers appear sequentially and propagate within the bulk of the material as soon as a critical strain, independent of the elastic modulus, is exceeded. Key elements in the driving force of the instability are the confinement of the gel and its adhesion to the plates of the cell, which result in a considerable expense of elastic energy during the growth of the air bubble.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.111.047801](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.047801)

PACS numbers: 61.41.+e, 62.20.-x, 68.35.Gy, 68.35.Np

Bulk fingering instabilities in viscous liquids confined in Hele-Shaw cells, commonly known as the Saffman-Taylor instability, have given rise to considerable experimental [1] and theoretical effort [2]. In the context of the liquid to solid transition (in gels [3], foams [4], yield stress fluids [5–7], and Maxwell liquids [8]), this instability translates into a fingering to fracture transition.

Purely elastic instabilities in a confined geometry have received much less attention. An elastic fingering instability has been observed during the peeling of a thin layer of elastomer from a rigid substrate [9,10] or in probe-tak experiments [11] where a semispherical probe in contact with the soft solid is pulled up at a constant speed. In most cases, the instability settles on the crack line, which is observed to progress at the interface [9,12–14]. In a probe-tak geometry, Shull *et al.* [15] have observed fingers propagating within the bulk of an acrylic triblock copolymer gel, but there has been no quantitative characterization of the observed patterns yet, and one dramatically lacks experimental data to constrain the possible mechanisms at the origin of this instability.

In this Letter, we demonstrate the existence of a large scale—centimetric—elastic fingering instability arising within the bulk of a polyacrylamide gel confined in a Hele-Shaw cell. The instability appears when a critical strain, independent of the shear modulus is exceeded. Fingers appear sequentially, and, ultimately, lead to the spectacular flower-shaped pattern displayed in Fig. 1. The number of fingers increases linearly with the ratio of the initial air bubble diameter to the sample thickness, but it tends to 3 when this ratio tends to zero. More remarkably, the width of the fingers scales in a strongly nonlinear way with the elastomer thickness.

*Materials and methods.*—We use polyacrylamide gels made from acrylamide monomers and bisacrylamide cross-linkers [16]. The relative concentrations of these two components control the shear modulus of the gel from  $G = 80$  to 1060 Pa. The strain to fracture of the

produced materials decreases with  $G$ , but exceeds 300% in all cases. Adding dye to the gel allows us to see where the material sticks to the glass plates. Cyclic shear rheology of the gels with dye indicates a very small ratio of the elastic modulus to the loss one:  $G''/G' < 10^{-3}$  for frequencies ranging from 0.01 to 100 Hz.

Two different experimental setups are used. Setup 1 [Fig. 2(a)] is a classical Hele-Shaw cell: it consists in two 10 mm thick glass plates of lateral sizes (250 mm  $\times$  250 mm) separated by thin spacers of thickness  $b \in [0.5\text{--}5]$  mm. Setup 2 [Fig. 2(b)] is an original design, which consists in a sealed Hele-Shaw cell made of two 10 mm thick glass plates of lateral sizes (250 mm  $\times$  125 mm), with two opposite mobile walls, acting as pistons, and pulled at a prescribed velocity  $V$  by synchronized step motors. The gap is fixed to the value  $b = 2.1$  mm. This setup is closer to classical tensile tests in solid mechanics. In both experiments the cells are filled with polyacrylamide before gelation. During this process, we maintain an initial air bubble of controlled diameter  $D_0$ . In setup 1, air is blown with a syringe pump in order to grow this bubble. The pressure varies from 0 to 1.5 bar. In setup 2, the depression induced by the motion of the pistons sucks air into the gel. Because polyacrylamide is

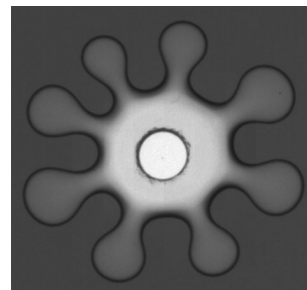


FIG. 1. Elastic fingering instability. Pattern of the destabilized interface ( $G = 650$  Pa;  $b = 2.1$  mm;  $Q = 126$  ml/min).

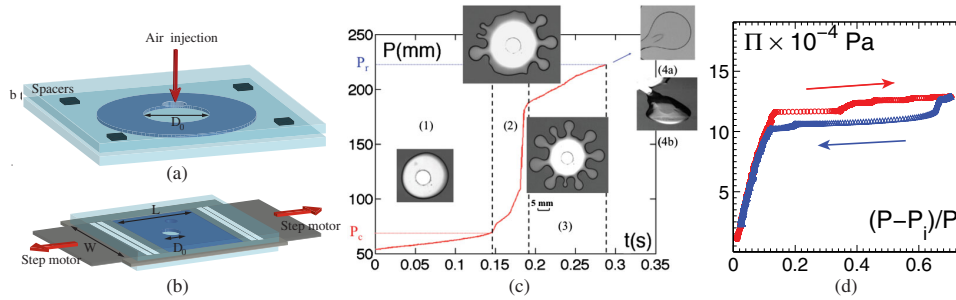


FIG. 2 (color online). Setups and basic observations. (a) Setup 1, classical Hele-Shaw cell with air injection at the center. (b) Setup 2, sealed Hele-Shaw cell with two moving walls acting as pistons. (c) Sketch of the instability observed in setup 2 ( $G = 500$  Pa,  $b = 2.1$  mm). Evolution of the perimeter  $P$  of the pattern as a function of time, exhibiting four distinct stages: (1) circular growth, (2) nucleation of the fingers, (3) swelling of the fingers, and (4a) crack appearing in the gel layer leading to (4b) an interfacial fracture.  $P_c$  ( $P_r$ ) is the bubble perimeter at the onset of fingering (reps. just before fracture). (d) Reversibility and hysteresis observed in setup 1 ( $G = 840$  Pa,  $b = 1.4$  mm): pressure  $\Pi$  vs strain  $\gamma = (P - P_i)/P_i$  (red circles: inflation; blue triangles: deflation).

incompressible, the speed and size of the pistons impose an air flow rate equal to  $Q = 2WbV = 126$  ml/min. In both cases, the loading rates are such that the material can safely be considered as purely elastic. The temperature was kept constant, at 21.5 C, during all the experiments (including rheology).

Most observations are top views of the cell recorded at 50 Hz for setup 1 and 1500 Hz for setup 2, which gives an idea of the robustness of the instability over a wide range of interface speeds. We measure the thickness of the gel layers through light absorption. When performing such measurements, we use a silicon oil (Rhodorsil V20), which is immiscible with the gel but has a similar refractive index and therefore avoids refraction. The observed patterns show no differences with the one obtained when injecting air. The interfacial tension between the injected fluid and the gel is not a relevant parameter.

*Experimental results.*—The same scenario holds in both setups and can be summarized as follows (Fig. 2(c) and the Supplemental Material [17]). The evolution of the perimeter  $P$  of the pattern allows us to distinguish four stages. During stage (1), a circular bubble grows. Shades of gray behind the dark line of the front show the existence of layers of gel adhering to the glass plates. In stage (2), fingers burst out successively, with an experiment-dependent order of appearance, and with a speed much larger than the velocity of circular extension. This leads to a sharp increase of the perimeter. Stage (3) corresponds to the swelling of the fingers once they are all formed, and the increase of the perimeter is much slower again. Then, in stage (4), the layer of gel behind the tip breaks, leading to an interfacial crack.

Prior to the interfacial fracture stage, the phenomenon is completely reversible: fingers deflate when the tensile stress is released, and the initial bubble is recovered. The reversibility of the process clearly demonstrates the purely—possibly nonlinear—elastic nature of the instability. Figure 2(d) displays the pressure  $\Pi$  as a function of

strain  $\gamma = (P - P_i)/P_i$ , where  $P_i = \pi D_0$  is the initial bubble perimeter. It shows that the phenomenon is hysteretic: the pressure needed to form the fingers is significantly larger than the pressure released when they deflate. When air is injected a second time, the pressure follows the red curve again, which shows that the material has not been damaged during the first cycle.

By filming the cell at an angle, we could see a clear meniscus on all fingers. Besides, as already shown in Fig. 2(c), interfacial cracking occurs at a late stage, after the full development of the instability. There, two distinct fronts are easily observable, one corresponding to the interfacial crack, the other one to a bulk deformation ahead of it [Fig. 2(c), image 4(b)]. Further quantitative evidence of this 3D character is provided in Fig. 3, where color encodes the gel thickness measured from light absorption (Fig. 3). Before a finger bursts out, the interface is already locally deformed. The gel thickness increases with the distance to the injection point. The finger first develops with a constant width and almost with a constant thickness as further illustrated in Fig. 3(b), where the finger profiles within the thickness of the cell have been plotted at constant time intervals, assuming a symmetric shape. The finger grows up to a certain size where only the extremity is swelling while the back, forming a saddle, does not evolve any more. This early stage is followed by a regime where both the extremities and the “saddle” parts of the fingers increase in size. Note that the formation of the finger is accompanied by a relaxation of the elastic strain in its vicinity, where the front is seen to recede [Fig. 3(a), right]. The two phenomena arise instantaneously—within experimental accuracy—and are far more rapid than the growth rate of the whole pattern. In some cases, one observes small fingers, which start to develop and which eventually recede, if they are surrounded by larger ones [see inset (3) of Fig. 2(c)]. Again, this is a clear signature of the elastic nature of the process.

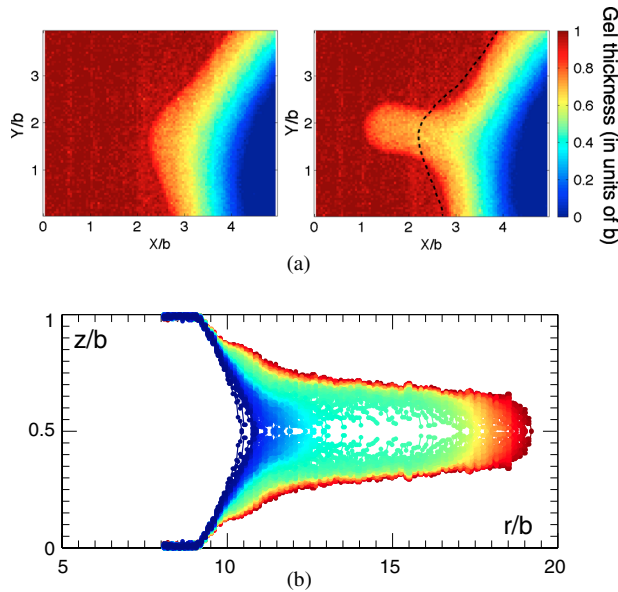


FIG. 3 (color online). Formation of a finger: (a) top view before (left) and after (right) the finger has formed. The initial front (black dotted line) recedes in the finger vicinity. Color bar shows thickness of the gel in  $b$  units. (b) Thickness profiles of a finger developing in time. Color codes 137 time steps from blue to red separated by 0.6 ms.  $G = 100$  Pa.

As can be seen from the perimeter temporal evolution (Fig. 2(c)), the instability sets in when the strain exceeds a critical value  $\gamma_c = (P_c - P_i)/P_i$ , which increases linearly with  $b/D_0$  for both setups [see Fig. 4(a)]. The mechanism of the instability is the same for the two experiments, but the stress distribution depends on the geometry of the device, hence the difference of slope. It is remarkable that  $\gamma_c$  does not depend on the shear modulus [Fig. 4(b)], in contrast with the strain to fracture  $\gamma_r = (P_r - P_i)/P_i$ , which decreases with  $G$ .

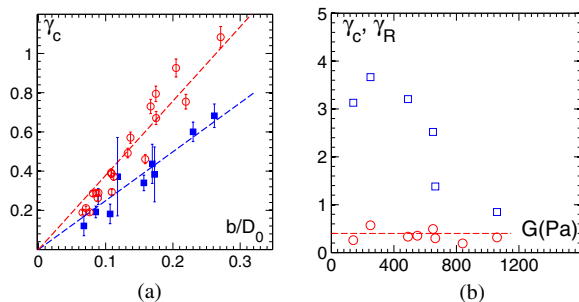


FIG. 4 (color online). Critical strain: (a)  $\gamma_c$  at the onset of fingering as a function of  $b/D_0$  for setup 1 (solid square) and setup 2 (open circle). (b) Setup 2: critical strain  $\gamma_c$ , (open circle), and strain to fracture  $\gamma_r$ , (open square), as a function of the shear modulus  $G$ ,  $D_0 = 23$  mm.

Finally, experiments performed with setup 1, for which  $b$  can be varied easily, allow us to estimate the role of the vertical confinement. The number of fingers  $n$  [Fig. 5(a)] and the width  $\delta/b$  of the fingers at their roots in units of  $b$ , measured when they are just formed [Fig. 5(b)] depend only on  $D_0/b$ . Because  $\delta$  is not a wavelength, there is no simple relationship between  $\delta$ ,  $n$ , and  $D_0$ . The expected scaling  $n \propto D_0/b$  [dashed line in Fig. 5(a)] is not incompatible with our data, although they are better fitted by an affine law suggesting a finite number of fingers ( $n \approx 3$ ) when  $D_0/b$  tends to zero. More strikingly, the fingers width  $\delta/b$  is clearly not a constant [dashed line in Fig. 5(b)] as one could have expected;  $\delta/b$  rather follows an affine law [solid line in Fig. 5(b)], which tends to a constant ( $\approx 0.3$ ) when  $b/D_0$  tends to zero. This suggests that the simple expected scaling  $\delta \propto b$  is verified only when  $b$  tends to zero (infinitely thin layer of elastomer) or  $D_0$  tends to infinity (limit of an initial straight front).

Figure 6(a) displays a spatiotemporal diagram of the local strain  $\gamma_{loc} = [r(\theta, t) - r(\theta, 0)]/r(\theta, 0)$  recorded in setup 1 for a gap of 2.9 mm. Despite their sequential appearance, fingers end up regularly spaced, without having drifted. One can even identify the location of a missing finger [ $\theta \approx -2\pi/3$  in Fig. 6(a)], which would eventually develop, if the pattern were not to fracture before. This suggests the existence of a well-defined wave number. Figure 6(b) shows the evolution of strain both along each finger, and between the fingers. The strain is evenly distributed until the fingers start to grow. Then blue curves take off, showing stress concentration at each finger tip, while red curves decrease, showing that this local stress concentration is accompanied by a stress release in between fingers. This release is what causes the front to recede in the close vicinity of fingers.

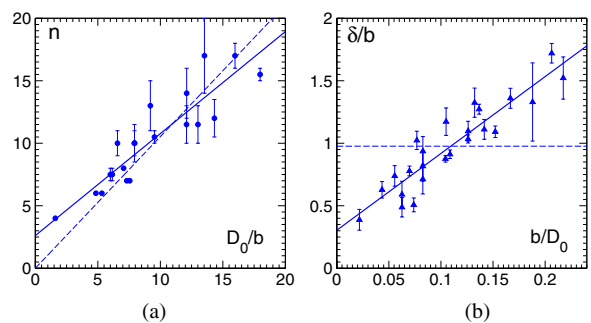


FIG. 5 (color online). (a) Number of fingers  $n$  as a function of  $D_0/b$ . The black dashed line is a linear fit; the solid black line is an affine fit extrapolating to  $n = 3$  when  $D_0/b$  tends to 0. (b)  $\delta/b$  width of the fingers  $\delta$  at their roots in  $b$  units as a function of  $b/D_0$ . The blue dashed line is the simplest expected scaling, here a constant. The solid line is an affine fit (see text for details).

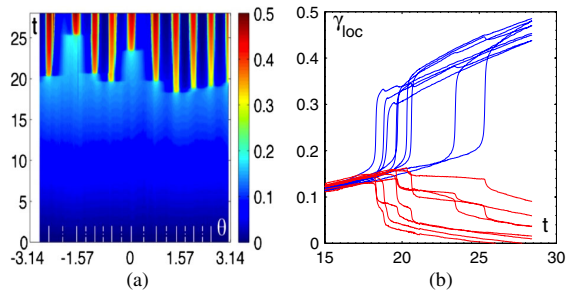


FIG. 6 (color online). Spatiotemporal diagram: (a) local strain  $\gamma_{loc}(\theta, t)$ . (b) Evolution of  $\gamma_{loc}$  as a function of time: blue curves are along the fingers [indicated by ticks in solid white lines in (a)]. Red curves are between two adjacent fingers [as indicated by ticks in dotted-dashed white lines in (a)].  $b = 2.9\text{mm}$ .

*Discussion.*—We have reported experimental evidence of a bulk fingering instability arising in a confined layer of a purely elastic gel. This bulk instability is clearly different from the interfacial fingering observed in peeling [9,10]. It shares some similarities with the preliminary probe-tak experiments reported by Shull *et al.* [15], but a crucial difference with their observations lies in the existence of a clear hysteresis in the present case.

The origin of the instability reported here is, we believe, very similar to the well-known balloon instability in hyperelastic materials [18]. In that case, the dependence of the pressure inside the balloon as a function of its radial elongation has a nonmonotonic shape. While for a pressure lower than a certain value, there is a unique elongation, for larger pressures there are three solutions for a given value of the balloon radius. The solution which corresponds to the intermediate deformation being unstable, the deformation jumps from the smallest to the largest value. In a very similar way, the layers of gel which stick to the glass plates are sheared due to the inflation of the air bubble, up to a point where they can elongate considerably at constant stress. Indeed, if one considers that, due to confinement, stresses are screened out at distances of the order of the gap  $b$ , then one can restrict the analysis to a membrane of gel of initial thickness  $b$ , of cylindrical shape, with internal radius  $R_0$  and height  $b$ . An increase  $\Delta R \gg b$  of the bubble radius results in an elongation of this membrane of order  $1 + \Delta R/R_0$  in the orthoradial direction, and  $2\Delta R/b$  in the radial direction. As a consequence, because of the gel incompressibility, the final thickness of the membrane is equal to  $b/[2(\Delta R/b)(1 + \Delta R/R_0)]$ . Using Gent's hyperelastic model [18,19] to link stresses and elongations, one finds that the pressure within the bubble increases up to a maximum value as a function of  $\Delta R/R_0$  and reaches a plateau before increasing again at much larger deformations.

As in the balloon instability, the physical origin of the observed phenomenon resides in the fact that, beyond a certain pressure, it becomes easy to stretch the two

hyperelastic films that adhere to the surfaces of the cell. In this sense, the observed instability is very generic, and its origin resides (i) in the hyperelasticity of the material, (ii) its incompressibility, and (iii) the nongliding boundary conditions at the glass plates. As a matter of fact, experiments performed on an agar gel which glides along glass surfaces show no instability. On the contrary, the same elastic instability has been observed also in connected microemulsions which stick to glass like polyacrylamide.

A more detailed mathematical analysis, that partially accounts for the results reported here, can be found in Ref. [20]. However, much remains to be done to deepen and exploit the balloon instability analogy.

Finally, let us recall that fingering is commonly associated to liquids, while fracture is associated to solids. In this experiment, we show that fingering occurs also within the bulk of a purely elastic soft confined solid. In future work, it will be particularly interesting to analyze the crossover from our instability to a viscous fingering instability in a viscoelastic medium, as a function of the injected flow rate.

Nothing could have been done without the technical support of V. Padilla and C. Gasquet. This work was funded by ANR (F2F project) and by Triangle de la Physique (FracHet). Many thanks to F. Boulogne for his hospitality at FAST/Orsay, and to R. Gy for providing plates made of Saint-Gobain float glass. We are also indebted to J. Biggins, L. Mahadevan, S. Mora, and Z. Wei for interesting discussions. Particular thanks to J.-P. Bouchaud for enlightening suggestions. E. B. also acknowledges the hospitality of CAS in Oslo, Norway.

\*baudouin.saintyves@cea.fr

- [1] P. Saffman and G. Taylor, *Proc. R. Soc. A* **245**, 312 (1958).
- [2] D. Bensimon, L. P. Kadanoff, S. Liang, B. I. Shraiman, and C. Tang, *Rev. Mod. Phys.* **58**, 977 (1986).
- [3] T. Hirata, *Phys. Rev. E* **57**, 1772 (1998).
- [4] S. S. Park and D. J. Durian, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3347 (1994).
- [5] E. Lemaire, P. Levitz, G. Daccord, and H. VanDamme, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2009 (1991).
- [6] P. Coussot, *J. Fluid Mech.* **380**, 363 (1999).
- [7] A. Lindner, P. Coussot, and D. Bonn, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 314 (2000).
- [8] S. Mora and M. Manna, *Phys. Rev. E* **81**, 026305 (2010).
- [9] A. Ghatak, M. K. Chaudhury, V. Shenoy, and A. Sharma, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4329 (2000).
- [10] A. Ghatak, *Phys. Rev. E* **73**, 041601 (2006).
- [11] K. R. Shull, D. Ahn, W.-L. Chen, and C. M. Flani, *Macromol. Chem. Phys.* **199**, 489 (1998).
- [12] J. Nase, A. Lindner, and C. Creton, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 074503 (2008).
- [13] M. Adda-Bedia and L. Mahadevan, *Proc. R. Soc. A* **462**, 1 (2006).
- [14] T. Vilmin, F. Ziebert, and E. Raphael, *Langmuir* **26**, 3257 (2010).

- [15] K. R. Shull, C. M. Flanigan, and A. J. Crosby, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3057 (2000).
- [16] R. Nossal, *Rubber Chem. Technol.* **61**, 255 (1988).
- [17] See Supplemental Material at <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.111.047801> for a movie where we blow in a circular air bubble, trapped in a polyacrylamide gel layer confined between two glass plates. The gap size is 1.9 mm, the gel modulus 500 Pa, and the initial diameter 17 mm. The movie is at real speed.
- [18] A. N. Gent, *Int. J. Nonlinear Mech.* **40**, 165 (2005).
- [19] A. N. Gent, *Rubber Chem. Technol.* **69**, 59 (1996).
- [20] J. Biggins, B. Saintyves, Z. Wei, E. Bouchaud, and L. Mahadevan, [Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. (to be published)].

# Digital instability of a confined elastic meniscus

John S. Biggins<sup>a,b</sup>, Baudouin Saintyves<sup>c</sup>, Zhiyan Wei<sup>a</sup>, Elisabeth Bouchaud<sup>c,d</sup>, and L. Mahadevan<sup>a,e,f,g,1</sup>

<sup>a</sup>Wyss Institute for Biologically Inspired Engineering, <sup>g</sup>Kavli Institute for Bionano Science and Technology, <sup>g</sup>School of Engineering and Applied Sciences, and <sup>e</sup>Department of Physics, Harvard University, Cambridge, MA 02138; <sup>b</sup>Cavendish Laboratory, University of Cambridge, Cambridge CB3 0HE, United Kingdom; <sup>c</sup>Commissariat à l'Énergie Atomique, Institut Rayonnement Matière de Saclay, Service de Physique de l'Etat Condensé, F-91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France; and <sup>d</sup>Ecole Supérieure de Physique et de Chimie Industrielles ParisTech, Unité Mixte de Recherche Gulliver, 75231 Paris Cedex 5, France

Edited\* by Grigory Isaakovich Barenblatt, University of California, Berkeley, CA, and approved June 4, 2013 (received for review February 6, 2013)

**Thin soft elastic layers serving as joints between relatively rigid bodies may function as sealants, thermal, electrical, or mechanical insulators, bearings, or adhesives. When such a joint is stressed, even though perfect adhesion is maintained, the exposed free meniscus in the thin elastic layer becomes unstable, leading to the formation of spatially periodic digits of air that invade the elastic layer, reminiscent of viscous fingering in a thin fluid layer. However, the elastic instability is reversible and rate-independent, disappearing when the joint is unstressed. We use theory, experiments, and numerical simulations to show that the transition to the digital state is sudden (first-order), the wavelength and amplitude of the fingers are proportional to the thickness of the elastic layer, and the required separation to trigger the instability is inversely proportional to the in-plane dimension of the layer. Our study reveals the energetic origin of this instability and has implications for the strength of polymeric adhesives; it also suggests a method for patterning thin films reversibly with any arrangement of localized fingers in a digital elastic memory, which we confirm experimentally.**

hysteresis | confinement | elastomer | gel

In adhesive joints, the strains and stresses due to joint loading are magnified by the effects of geometric confinement and scale separation (1), making them susceptible to stress-driven instabilities that often lead to failure. Joints usually fail in one of two broad ways: via adhesive failure along the solid–solid interface (2–5) or via bulk cohesive failure of the glue joint via cavitation (6–8). Though these modes of failure have been well documented and studied (see ref. 1 for a review), there is a third mode of failure, where an elastic instability at the meniscus may lead to fracture in its vicinity and can arise either when a joint is loaded under tension (9) or by a fluid that is injected into a cavity in the confined elastic layer (10). This mode of failure has been largely overlooked experimentally and is not understood theoretically. Interestingly, the last experiment is an elastic analog of a well-studied classical hydrodynamic free-surface instability associated with the relative motion between liquids of different viscosities in a narrow gap (11, 12), and provides a point for comparison. As we will see, the elastic instability is fundamentally different given its reversible nature and lack of dependence on interfacial forces. We use a combination of theory, experiment, and computation to unravel the mechanism behind the elastic meniscus instability, the threshold strain for its onset, the critical wavelength of the resulting fingers, and the nonlinear development of its amplitude.

Geometrically, our setup, sketched in Fig. 1*A*, consists of a thin, highly elastic layer occupying the region  $-a/2 < z < a/2$ ,  $-\infty < x < \infty$ ,  $0 < y < l$  with  $a/l \ll 1$  that is adhered to rigid plates at  $z = \pm a/2$ . Experimentally, we used a layer of polyacrylamide gel with a shear modulus of 550 Pa, thickness  $a \in [0.28, 10.64]$  mm, and width  $l \in [50, 60]$  mm bound between 10-mm-thick glass plates that were  $\sim 200$  mm long. The plates are then pulled apart, increasing their separation to  $a + \Delta z$ , while maintaining adhesion. Experimentally, the separation was increased at a constant speed of  $\sim 200$  mm/s. As the rigid plates are separated, the free boundaries of the elastomer (at  $y = 0$  and  $y = l$ ) retreat to form an elastic

meniscus that is curved in the direction perpendicular to the plates but remains parallel to its original position, thus penetrating into the elastic film without causing any loss of adhesion to the glass plates. At a critical separation of the plates, this curved meniscus loses stability via a sharp transition to an undulatory configuration in which fingers of air protrude into the elastomer, shown schematically in Fig. 1*A*. To ensure that elastic equilibrium was achieved at each stage, and to rule out any rate dependence, we also performed experiments at much lower velocities and saw quantitatively similar results.

Fig. 1*B* shows the undulatory pattern observed. We note that this instability is qualitatively different from the crack-like adhesive undulatory instabilities seen at the glass–gel contact line when adhesion starts to fail (2). In our experiments, adhesion is maintained everywhere due to the natural propensity of polyacrylamide to stick strongly to glass. Thus, fingers appear along the retreating elastic meniscus. Fig. 1*B* also shows a loading/unloading hysteresis loop for the transition, showing that the instability sets in suddenly past a given threshold in displacement via a subcritical instability, leading to large amplitude “digits” or fingers whose amplitude grows further upon further loading (Movie S1). On unloading, the fingers snap back at a lower value of the displacement, suggestive of the hysteretic nature of this first-order transition (Movie S2). We find that the undulatory transition is fully reversible and has no dependence on the shear modulus of the elastomer, strongly suggesting that the phenomenon is purely elastic. The similarity in the small smooth part of the loading and unloading curves, which corresponds to a plate separation of  $\sim 1.5\%$  at most, is likely due to inhomogeneities in the meniscus when it was first formed via our molding protocol. To test this, we waited for up to 30 min after the destabilization of the front, and did not see any additional fingers form. On retracing the loading/unloading cycle, we saw that the system traced the same curves as the first time, consistent with this explanation. Finally, we performed identical experiments in oil rather than in air to determine the effect of surface tension on the instability (Movie S3), and find that the system responds just as when it is in air, eliminating a role for the effects of surface tension in the phenomenon. It is useful to contrast these observations with the case of viscous fingering (11), where fingering is dynamic and out of equilibrium, and surface tension effects cannot be neglected.

Because the deformations involved are large, we resorted to numerical simulations of the process in terms of a finite element method, using an incompressible neo-Hookean constitutive model for the elastic layer. To capture the subcritical nature of the instability, we needed to carry out a dynamical simulation

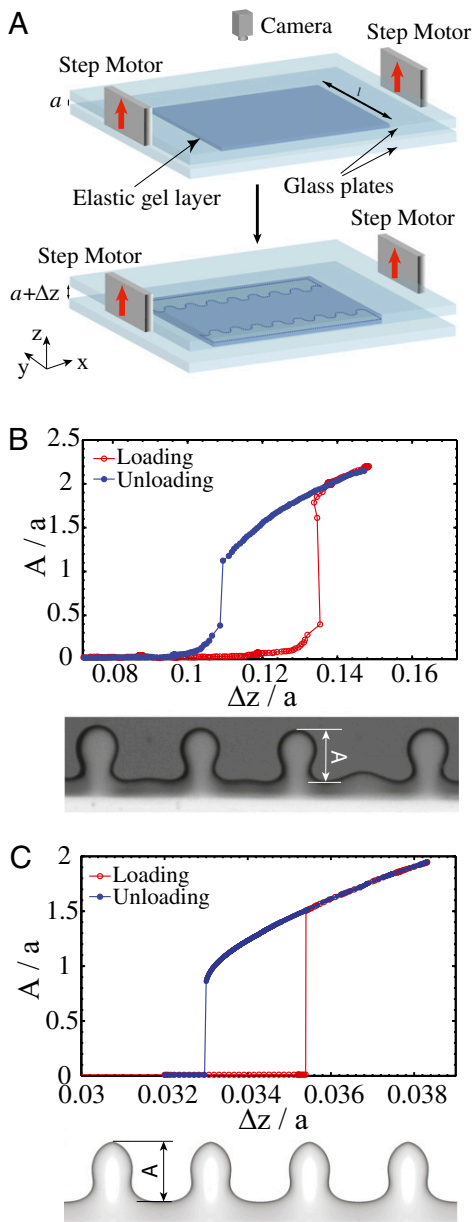
Author contributions: J.S.B., Z.W., and L.M. designed and carried out theoretical and computational research; B.S. and E.B. designed experiments and analyzed experimental data; B.S. performed experiments; and J.S.B. and L.M. wrote the paper.

The authors declare no conflict of interest.

\*This Direct Submission article had a prearranged editor.

To whom correspondence should be addressed. E-mail: lm@seas.harvard.edu.

This article contains supporting information online at [www.pnas.org/lookup/suppl/doi:10.1073/pnas.1302269110/-DCSupplemental](http://www.pnas.org/lookup/suppl/doi:10.1073/pnas.1302269110/-DCSupplemental).



**Fig. 1.** (A) Schematic of an elastic layer between two rigid plates. Pulling the plates apart causes the two free menisci to lose stability by forming a series of undulating digital fingers. (B) The experimentally measured amplitude of the fingers as a function of plate separation  $\Delta z$ , along with a top view of the undulating meniscus showing the fingers of air (Lower) invading the elastic layer (Upper). The layer thickness is  $a = 3.05$  mm and the width is  $l = 56$  mm. Observe the hysteresis in the transition associated with the difference between the loading and unloading curves. (C) Numerical results for an identical quasi-static loading and unloading protocol (SI Appendix, Numerical Simulations) calculated using a finite element method for an elastic layer of thickness  $a = 1$  mm and width  $l = 40$  mm show the same qualitative features—a hysteretic transition (Upper) associated with the formation of undulating fingers (Lower).

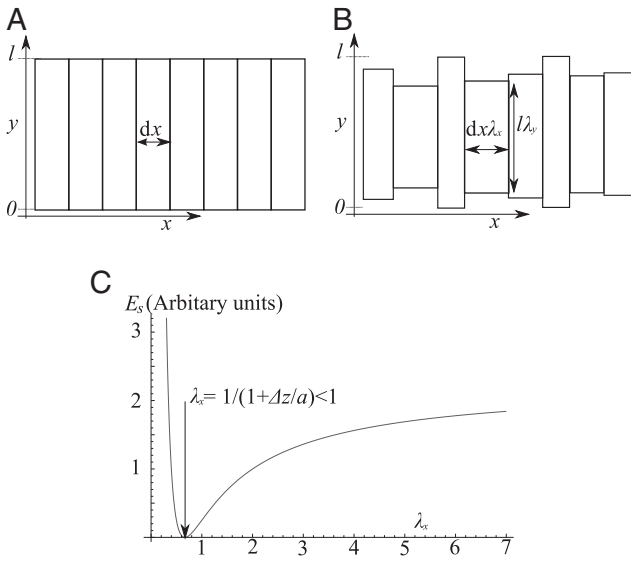
with damping, modeled via a Rayleighian dissipation function. The boundary conditions were imposed using the symmetry of the problem, and a small amount of initial noise in the position of the meniscus was used to seed the instability. All numerical simulations were carried out using a commercial finite element package ABAQUS (SI Appendix, Numerical Simulations), allowing us to reproduce this instability. We note that once the fingers

develop and have a finite amplitude, they may not be described by a single-valued function, but this is not an issue in our simulations, which use a natural coordinate system for the meniscus. In Fig. 1C, we show that both the form of the fingers and the hysteresis loop associated with a loading/unloading loop arise in a purely elastic simulation.

To understand our experiments and numerical simulations, we start by estimating the energies and length-scales in the problem. Displacement of a point in the central plane of the elastomer by an amount  $u \sim a$  in the  $y$  direction of the  $x-y$  plane leads to a shear strain in the elastomer  $\gamma \sim u/a$ . Because the subcritical fingering transition is purely elastic, it is likely to occur at large strains with a threshold  $\gamma \sim 1$  when geometrically nonlinear effects are important. Incompressibility of the elastomer implies that  $\Delta z l \sim ua$ , so that the instability threshold  $\Delta z_l \sim O(a^2/l)$ , which vanishes for infinitesimally thin films when  $l/a \rightarrow \infty$ . We note that this threshold arises from purely geometric considerations and expect that it does not depend on any material properties, because the only energy scale in the system, the shear modulus, can be scaled away. Furthermore, if fingers form with wavelength  $\lambda$  and amplitude  $A$ , this introduces additional strain associated with the in-plane distortion of magnitude  $A/\lambda$ . At the onset of the instability, the elastic screening length  $O(a)$  must scale with the thickness of the layer, so that we expect the wavelength of the instability to also be independent of any material parameters, with  $\lambda \sim O(a)$ . However, how is it that the formation of fingers, which are areas that have receded deeply into the bulk and therefore undergone huge shear strains, can reduce the total shear energy in the elastomer?

To clarify how fingering can alleviate shear, we first build a very simple model completely neglecting in-plane strain. Again, focusing our attention on the central plane of the elastomer, we assume that it is made of thin strips of width  $dx$ , which we treat as elastically independent. If one of these strips is stretched in-plane by a factor  $\lambda_y$  in the  $y$  direction and a factor  $\lambda_x$  in the  $x$  direction, as shown in Fig. 2A and B, the small thickness of the strip guarantees that the displacements in the  $x$  direction are small compared with  $a$ , and therefore do not give rise to large shear strains. However, a point with coordinate  $y$  is moved by an amount  $(y - l/2)(1 - \lambda_y)$  and so suffers a strain  $\gamma \sim (y - l/2)(1 - \lambda_y)/a$ , and the elastic shear energy of the strip is therefore  $E_s = \alpha \int_0^l \gamma^2 dy \propto (1 - \lambda_y)^2$ . A stretch in the  $z$  direction by a factor of  $(1 + \Delta z/a)$ , together with volume conservation requires  $(1 + \Delta z/a)\lambda_x \lambda_y = 1$ , which allows us to re-write the shear energy of our strip as  $E_s \propto (1 + \Delta z/a - 1/(\lambda_x))^2$ . Plotting this as a function of  $\lambda_x$  in Fig. 2C, we see that the energy has a minimum at  $\lambda_x = 1/(1 + \Delta z/a) < 1$  for  $\Delta z > 0$ . However, because our system is infinite in the  $x$  direction, we know that the average  $x$ -stretch  $\langle \lambda_x \rangle = 1$ ; otherwise, the strips will build up infinite displacements in the  $x$  direction. Inspecting Fig. 2C, we see a large nonconvex region extending from the minimum till  $\lambda_x \rightarrow \infty$ , i.e., the total energy of the system is minimized when  $\Delta z > 0$  with most strips being stretched by the optimal value of  $\lambda_x = 1/(1 + \Delta z/a) < 1$  and a very small number having large  $\lambda_x$ ; these digits dig deep into the bulk of the elastomer, leading to the fingering instability. We note that if the energy was convex, the minimum energy compatible with the average stretch  $\langle \lambda_x \rangle = 1$  would be achieved by each strip individually taking  $\lambda_x = 1$ . This simple explanation thus accounts for how the lack of convexity drives the energetics of finger formation and predicts a first-order transition to a large-amplitude state, consistent with the experimentally observed hysteresis shown in Fig. 2B.

Though our zero-dimensional model provides a mechanism for the instability, it is unable to provide information about the wavelength and threshold for the instability; for this, we now turn to an asymptotic simplification of the 3D problem by taking advantage of the small thickness and symmetry of the elastic layer. We expand the displacement vector  $U(x, y, z)$  to leading



**Fig. 2.** (A) The simplest model that characterizes the phenomenon focuses on the central ( $z=0$ ) plane of the elastomer and considers it to be composed of many independent thin strips of width  $dx$ . (B) A schematic of the deformation of the strips when stretched perpendicular to the plane of the paper leads them to undergo independent planar deformations. (C) The constraint of incompressibility causes the energy of a strip  $E_s$  to not be a convex function of  $\lambda_x$  so the minimal average energy with  $\langle \lambda_x \rangle = 1$  is achieved by most strips taking the optimal value of contraction and a small number taking divergent values and hence receding deeply into the bulk and forming fingers. This minimal model highlights the mechanism of instability but provides no information about the wavelength and threshold for the instability (see text).

order in  $z$  and impose the condition that  $\mathbf{U} = \pm \Delta z \hat{\mathbf{z}}/2$  at  $z = \pm a/2$ , leading to the form

$$\mathbf{U} = (1 - 2z/a)(1 + 2z/a)\mathbf{u}(x,y) + (z\Delta z/a)\hat{\mathbf{z}}, \quad [1]$$

where  $\mathbf{u}(x,y)$  is the 2D displacement of a point on the central ( $z=0$ ) plane. With  $\nabla$  as the in-plane gradient operator and  $I$  as the 2D identity matrix, we can then write the 3D deformation gradient,  $F_{ij} = \delta_{ij} + \partial_j U_i$ , as

$$F = I + (1 - 4z^2/a^2)\nabla\mathbf{u} - 8z\mathbf{u}\hat{\mathbf{z}}/a + (1 + \Delta z/a)\hat{\mathbf{z}}\hat{\mathbf{z}}, \quad [2]$$

and see the decomposition that results as a consequence of scale separation.

To characterize the energetic cost of this deformation, we model the elastomer as an incompressible neo-Hookean solid with volumetric elastic energy density  $\frac{1}{2}\mu\text{Tr}(F.F^T)$ , which we can explicitly integrate in the thickness direction. Here we assume that surface tension effects are unimportant, as our experiments show. Thus, when the energy of the system is rescaled by this single constant, what remains is a purely geometric problem. The constraint of volume preservation in the elastomer when integrated through the depth requires us to introduce a 2D pressure field  $P(x,y)$  that constrains the depth-averaged volume change at each point in the elastomer, and leads us to an effective 2D energy density  $L$ :

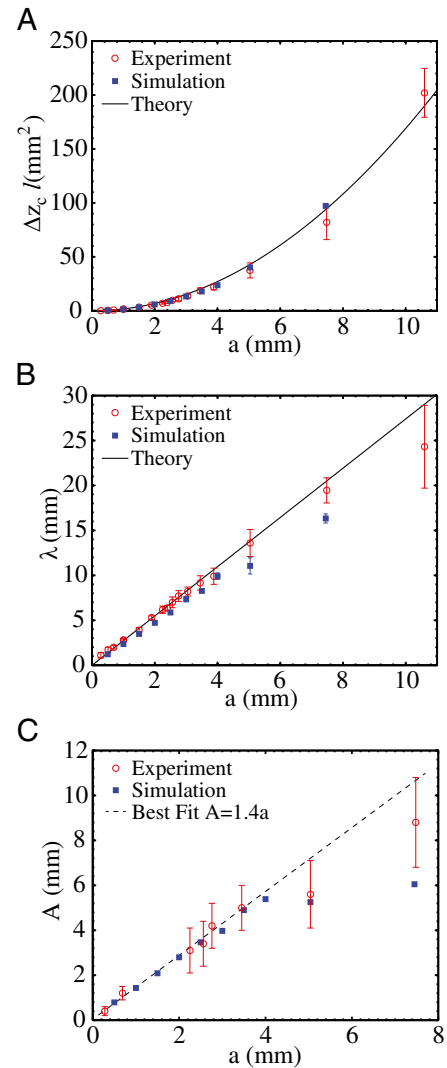
$$L(\mathbf{u}, P) = \mu \int_{-a/2}^{a/2} \frac{1}{2} \text{Tr}(F.F^T) - \frac{P(\text{Det}(F) - 1)}{1 + \Delta z/a} dz$$

$$\propto \frac{1}{2} \text{Tr}(G.G^T) + \frac{16}{5} |\mathbf{u}/a|^2 - P \left( \text{Det}(G) - 1 + \frac{6}{5} \Delta z/a \right). \quad [3]$$

In carrying out the integral (*SI Appendix, Theoretical Model*), we have introduced an effective 2D deformation gradient  $G = I + \frac{4}{5}\nabla\mathbf{u}$  and, because we expect  $\Delta z_l \sim a^2/l \ll a$ , retained only the leading-order term in  $\Delta z/a$ . We note that  $\frac{\partial L}{\partial \mathbf{u}} = \frac{4}{5}(G - P\text{Det}(G)G^{-T})$ , so extremizing this energy leads to the following Euler–Lagrange equations for the planar displacement field  $\mathbf{u}$  and the pressure  $P$ ,

$$\frac{4}{5}\nabla^2\mathbf{u} - \text{Det}(G)G^{-T} \cdot \nabla P = 8\mathbf{u}/a^2$$

$$\text{Det}(G) = 1 - \frac{6}{5}\Delta z/a. \quad [4]$$



**Fig. 3.** Comparison of experimental and theoretical/numerical predictions. (A) Threshold separation  $\Delta z_c \times$  width  $l$  as a function of thickness  $a$  shows that the experimental and numerical results follow the theoretical prediction (Eqs. 13 and 14). (B) Finger wavelength  $\lambda$  at instability as a function of thickness  $a$  shows that the experimental and numerical results follow the theoretical prediction (Eqs. 13 and 14). (C) Finger amplitude  $A$  just after threshold as a function of thickness  $a$  shows that the experimental and numerical results agree, but only over a range of thickness values. For large  $a$ , the separation of scales between the thickness  $a$  and width of the film  $l$  is less, and the number of wavelengths in the sample is smaller, leading to end effects that make agreement between theory and experiment only qualitative.



It is interesting to note that the form of the depth-integrated Eq. 4 is similar to the Darcy–Brinkman equation for flow through a dilute porous media (13), with the displacement reinterpreted as a velocity. Here, the most interesting aspect of the equation is the appearance of the bare displacement of the central plane  $\mathbf{u}$ . On the free surfaces  $y = 0, l$ , we must satisfy the natural boundary condition

$$(G - P \text{Det}(G)G^{-T}) \cdot \hat{\mathbf{y}} = 0. \quad [5]$$

Taking each field to be the sum of a large translationally invariant base state corresponding to the deformations before the instability and an infinitesimal oscillation in the  $x$  direction, we may write

$$\mathbf{u} = Y_1(y)\hat{\mathbf{y}} + \epsilon \cos(kx)Y_2(y)\hat{\mathbf{y}} + \epsilon \sin(kx)X_2(y)\hat{\mathbf{x}} \quad [6]$$

$$P = 1 + P_1(y) + \epsilon \cos(kx)P_2(y). \quad [7]$$

Substituting this into [4]–[5] and solving for the translationally invariant fields, we get

$$Y_1(y) = \frac{3}{4} \Delta z(l - 2y)/a \quad [8]$$

$$P_1(y) = 6y\Delta z(y - l)/a^3 - \frac{6}{5} \Delta z/a. \quad [9]$$

At order  $\epsilon$ , the Euler–Lagrange equations (Eq. 4) can be solved algebraically for  $X_2$  and  $P_2$  to yield a linear fourth-order eigenvalue equation for  $Y_2$ , whose solution provides us the wavelength and threshold for instability (*SI Appendix, Theoretical Model*). A substantial simplification arises by considering the limit  $l \gg a$  and, consequently,  $\Delta z \ll a$ , which allows us to drop all terms proportional to  $\Delta z$  except those also containing powers of  $l$ , reducing the final equation to

$$(a^2k^2 + 10)a^2k^2Y_2(y) + a^4Y_2^{(4)}(y) = 2(a^2k^2 + 5)a^2Y_2''(y), \quad [10]$$

which has the allowable decaying solutions

$$Y_2 = c_1 \exp\left(-\sqrt{10/a^2 + k^2}y\right) + c_2 \exp(-ky). \quad [11]$$

Substituting this into Eq. 5 gives  $c_1 = -c_2k^2/(5/a^2 + k^2)$  and a condition which yields the threshold separation  $\Delta z_t$  for instability at wavenumber  $k$

$$\Delta z_t = \frac{a^2 \left( a^2k^2 - \sqrt{a^2k^2 + 10}ak + 10 \right) a^2k^2 + 25}{15ak}. \quad [12]$$

Minimizing this expression with respect to  $k$  yields the threshold of the first unstable mode ( $\Delta z_t$ ) and the wavelength ( $\lambda$ ), which are given by

$$\Delta z_t \approx 1.69a^2/l \quad [13]$$

$$\lambda \approx 2.74a. \quad [14]$$

We see that the wavelength of the instability scales with the thickness of the elastic layer and the threshold displacement is inversely proportional to the slab width, and are independent of any material parameters, as we argued earlier based on scaling arguments.

In Fig. 3, we show a comparison of these predictions with experiments and numerical simulations (*SI Appendix, Numerical Simulations*); the results compare very well. Although our linearized analysis cannot extend beyond the point of instability, our finite element simulations have no such limit. Experimental and numerical results show that the amplitude of the fingers  $A \approx 1.4a$ , and confirm the subcritical nature of the instability with a region of bistability wherein the homogeneous and undulatory phases of the interface coexist. In this regard, our elastic instability is fundamentally different from the hydrodynamic Saffman–Taylor instability that is supercritical.

Our study has uncovered the form and nature of the confined elastic meniscus fingering instability in a minimal rectilinear setting using a combination of theory, experiment, and numerical simulation. We show the origin of the transition is essentially geometric and hence likely to be ubiquitous, just as its fluid counterpart is, and predict and verify the wavelength and threshold of the instability. At a practical level, our results have implications for the strength of elastic adhesive layers; because the peak strain jumps very significantly during the fingering transition, fingering is very likely to lead to fracture and adhesive failure. From our 2D model, the stored energy per unit area scales as  $\mu a(\Delta z/l/a^2)^2$ , so that the normal stress that must be applied to the plates  $\sigma_t \sim \mu l/a$ , and predicts that the fracture stress of polymeric adhesives is inversely proportional to the thickness of the layer, and that the total strength of the adhesive bond increases faster than the adhesion area.

We have also shown that the transition is sudden with a region of bistability between the fingered and flat states. The hysteretic nature of the transition permits control over the placement of fingers or digits; if the system is in the bistable regime one may “write” out arbitrary “bits” onto the interface by applying a large perturbation at the desired location (*Movie S4*). These bits are completely reversible localized elastic structures, so that this fingering transition might be used to build a digital mechanical memory. Because our system produces fingers with wavelength proportional to the smallest length-scale in the problem—namely, the thickness of the layer—without any prepatterning on this length-scale, this mechanism may also have uses in microfabrication. Although the digitization instability is fully reversible, it may be easily made permanent by further cross-linking; additionally, the use of a nematic elastomer may allow the transition to be driven by heat or light rather than separation.

**ACKNOWLEDGMENTS.** This work was supported by the Royal Society (J.S.B.), the French ANR F2F project (E.B.), the MacArthur Foundation (L.M.), and Grant DMR0820484 from Harvard-MRSEC NSF (Materials Research Science and Engineering Centers, National Science Foundation).

- Shull KR (2002) Contact mechanics and the adhesion of soft solids. *Mater Sci Eng Rep* 36(1):1–45.
- Ghatak A, Chaudhury MK, Shenoy V, Sharma A (2000) Meniscus instability in a thin elastic film. *Phys Rev Lett* 85(20):4329–4332.
- Monch W, Herminghaus S (2001) Elastic instability of rubber films between solid bodies. *Europhys Lett* 53(4):525–531.
- Adda-Bedia M, Mahadevan L (2006) Crack-front instability in a confined elastic film. *Proc R Soc A* 462(2075):3233–3251.
- Vilmin T, Ziebert F, Raphaël E (2010) Simple view on fingering instability of debonding soft elastic adhesives. *Langmuir* 26(5):3257–3260.
- Gent A, Lindley PB (1959) Internal rupture of bonded rubber cylinders in tension. *Proc R Soc A* 249(1257):195–205.
- Crosby AJ, Shull KR, Lakrout H, Creton C (2000) Deformation and failure modes of adhesively bonded elastic layers. *J Appl Phys* 88(5):2956–2966.
- Shull KR, Creton C (2004) Deformation behavior of thin compliant layers under tensile loading conditions. *J Polym Sci B Polym Phys* 42(22):4023–4043.
- Shull KR, Flanigan CM, Crosby AJ (2000) Fingering instabilities of confined elastic layers in tension. *Phys Rev Lett* 84(14):3057–3060.
- Saintyves B, Dauchot O, Bouchaud E (2012) Bulk elastic fingering instability in Hele-Shaw cells. *Phys Rev Lett*, in press.
- Saffman PG, Taylor GI (1958) The penetration of a fluid into a porous medium or Hele-Shaw cell containing a more viscous liquid. *Proc R Soc Lond A* 245(1242):312–329.
- Homsy GM (1987) Viscous fingering in porous media. *Annu Rev Fluid Mech* 19:271–311.
- Brinkman HC (1949) A calculation of the viscous force exerted by a flowing fluid on a dense swarm of particles. *Appl Sci Res* 1(1):27–34.





# Bibliographie

- [1] Jean-Jacques Scheuchzer. *Herbarium Diluvianum*. litt. D. Gesneri, Zürich, 1709-1711.
- [2] P.G. Saffman and G. Taylor. The penetration of a fluid into a porous medium or hele-shaw cell containing a more viscous liquid. *Proc. of the Royal Soc. of London, Series A, Math. and Phys. Sci.*, 245 :312–329, 1958.
- [3] P. Tabeling, G. Zocchi, and A. Libchaber. *J. Fluid Mech.*, 177 :67–82, 1987.
- [4] L. Paterson. *J. Fluid Mech.*, 113 :513–529, 1981.
- [5] L. Paterson. Fingering with miscible fluids in a hele shaw cell. *Physics of Fluids*, 28(1) :26–30, 1985.
- [6] E. Cerda and L. Mahadevan. Geometry and physics of wrinkling. *Physical Review Letters*, 90(7) :074302, February 2003.
- [7] E. Cerda, K. Ravi-Chandar, and L. Mahadevan. Thin films - wrinkling of an elastic sheet under tension. *Nature*, 419(6907) :579–580, October 2002.
- [8] J. Huang, M. Juskiewicz, W. H. de Jeu, E. Cerda, T. Emrick, N. Menon, and T. P. Russell. Capillary wrinkling of floating thin polymer films. *Science*, 317(5838) :650–653, August 2007.
- [9] J. Hure, B. Roman, and J. Bico. Stamping and wrinkling of elastic plates. *Physical Review Letters*, 109(5) :054302, August 2012.
- [10] R. Bernal, C. Tassius, F. Melo, and J. C. Geminard. Elastic response and wrinkling onset of curved elastic membranes subjected to indentation test. *European Physical Journal E*, 34(2) :13, February 2011.

- [11] T. Savin, N. A. Kurpios, A. E. Shyer, P. Florescu, H. Y. Liang, L. Mahadevan, and C. J. Tabin. On the growth and form of the gut. *Nature*, 476(7358) :57–+, August 2011.
- [12] J. Dervaux, Y. Couder, M. A. Guedeau-Boudeville, and M. Ben Amar. Shape transition in artificial tumors : From smooth buckles to singular creases. *Physical Review Letters*, 107(1) :018103, July 2011.
- [13] Eric Sultan. *Instabilités et Singularités : des films minces aux plaques élastiques*. PhD thesis, Université Paris 6, 2005.
- [14] A. Mallock. Note on the instability of india-rubber tubes and balloons when distended by fluid pressure. *Philosophical Transactions*, 49 :458–463, 1890.
- [15] A. Ghatak, M. K. Chaudhury, V. Shenoy, and A. Sharma. Meniscus instability in a thin elastic film. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :4329–4332, 2000.
- [16] T. Vilmin, F. Ziebert, and E. Raphael. Simple view on fingering instability of debonding soft elastic adhesives. *Langmuir*, 26 :3257–3260, 2010.
- [17] K. R. Shull and C. Creton. Deformation behavior of thin, compliant layers under tensile loading conditions. *J. of Pol. Sci. Part B : Pol. Phys.*, 42 :4023–4043, 2004.
- [18] K. R. Shull, C. M. Flanigan, and A. J. Crosby. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :3057–3060, 2000.
- [19] Camille Duprat. *Instabilités d'un film liquide en écoulement sur une fibre verticale*. PhD thesis, UPMC, 2009.
- [20] S. Mora, T. Phou, J.-M. Fromental, L. M. Pismen, and Y. Pomeau. *Phys. Rev. Lett.*, 105 :214301, 2010.
- [21] 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.
- [22] A. Lindner, D. Bonn, E. C. Poire, M. Ben Amar, and J. Meunier. Viscous fingering in non-newtonian fluids. *Journal of Fluid Mechanics*, 469 :237–256, October 2002.

- [23] A. Lindner, P. Coussot, and D. Bonn. Viscous fingering in a yield stress fluid. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :314–317, 2000.
- [24] E. Lemaire, P. Levitz, G. Daccord, and H. Vandamme. From viscous fingering to viscoelastic fracturing in colloidal fluids. *Physical Review Letters*, 67(15) :2009–2012, October 1991.
- [25] I. Ben Salem, I. Cantat, and Dollet B. Response of a two-dimensional liquid foam to air injection : swelling rate, fingering and fracture. *submitted to JFM*, 2012.
- [26] S. Mora and M. Manna. Saffman-taylor instability of viscoelastic fluids : From viscous fingering to elastic fractures. *Physical Review E*, 81(2) :026305, February 2010.
- [27] J. F. Berret. Isotropic-to-nematic transition in wormlike micelles under shear. *J. Phys II France*, 4 :1261, 1994.
- [28] H. Tabuteau, S. Mora, G. Porte, M. Abkarian, and C. Ligoure. Microscopic mechanisms of the brittleness of viscoelastic fluids. *Physical Review Letters*, 102(15) :155501, April 2009.
- [29] B. Ruzicka and E. Zaccarelli. A fresh look at the laponite phase diagram. *Soft Matter*, 7(4) :1268–1286, 2011.
- [30] M. Ben Amar. Instabilités développées et morphogénèse. Polycopié de cours du Master "Physique des liquides".
- [31] Y. Couder, N. Gérard, and M. Rabaud. Narrow fingers in the saffman-taylor instability. *Physical Review A*, 34(6) :5175–5178, December 1986.
- [32] M. Rabaud, Y. Couder, and N. Gérard. Dynamics and stability of anomalous saffman-taylor fingers. *Physical Review A*, 37(3) :935–947, February 1988.
- [33] P. Dimitrov and S. W. Zucker. A constant production hypothesis guides leaf venation patterning. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 103(24) :9363–9368, June 2006.
- [34] D. Gonzalez-Rodriguez, K. Guevorkian, S. Douezan, and F. Brochard-Wyart. Soft matter models of developing tissues and tumors. *Science*, 338(6109) :910–917, November 2012.

- [35] M. Ben Amar, M. M. Muller, and M. Trejo. Petal shapes of sympetalous flowers : the interplay between growth, geometry and elasticity. *New Journal of Physics*, 14 :085014, August 2012.
- [36] S. Bohn, L. Pauchard, and Y. Couder. Hierarchical crack pattern as formed by successive domain divisions. i. temporal and geometrical hierarchy. *Physical Review E*, 71(4) :046214, April 2005.
- [37] E. Sharon, B. Roman, and H. L. Swinney. Geometrically driven wrinkling observed in free plastic sheets and leaves. *Physical Review E*, 75(4) :046211, April 2007.
- [38] Y. Forterre, J. M. Skotheim, J. Dumais, and L. Mahadevan. How the venus flytrap snaps. *Nature*, 433(7024) :421–425, January 2005.
- [39] J. Dervaux and M. Ben Amar. Mechanical instabilities of gels, 2012.
- [40] H. S. Hele-Shaw. Investigation of the nature of surface resistance of water and of stream line motion under certain experimental conditions. *Trans. Inst. Nav. Archit.*, 40 :21–46, 1898.
- [41] W. T. Kelvin. Hydrokinetic solutions and observations. *Philosophical Magazine*, vol. 42 :362–377, 1871.
- [42] H. L. F. Helmholtz. über discontinuierliche flüssigkeits-bewegungen. *Monatsberichte der Königlich-Preussische Akademie der Wissenschaften zu Berlin*, 23 :215, 1868.
- [43] J. W. S. Rayleigh. Investigation of the character of the equilibrium of an incompressible heavy fluid of variable density. *Proceedings of the London Mathematical Society*, 14 :170–177, 1883.
- [44] G. I. Taylor. The instability of liquid surfaces when accelerated in a direction perpendicular to their planes. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, vol. 201, no 1065 :192–196, 1950.
- [45] S. Atis, S. Saha, H. Auradou, J. Martin, N. Rakotomalala, L. Talon, and D. Salin. Chemo-hydrodynamic coupling between forced advection in porous media and self-sustained chemical waves. *Chaos*, 22(3) :037108, September 2012.

- [46] Y. Couder. *Perspectives in Fluid Dynamics*, chapter Viscous fingering as an achetype for growth patterns, pages 53–104. Cambridge University Press, 2000.
- [47] R. L. Chuoke, P. Vanmeurs, and C. Vanderpoel. The instability of slow, immiscible, viscous liquid-liquid displacements in permeable media. *Transactions of the American Institute of Mining and Metallurgical Engineers*, 216 :188–194, 1959.
- [48] D. Bensimon, L. P. Kadanoff, S. Liang, B. I. Shraiman, and C. Tang. Viscous flow in two dimensions. *Rev. of Mod. Phys.*, 58 :977–999, 1986.
- [49] J. W. McLean and P. G. Saffman. The effect of surface-tension on the shape of fingers in a hele shaw cell. *Journal of Fluid Mechanics*, 102(JAN) :455–469, 1981.
- [50] R. Combescot, T. Dombre, V. Hakim, Y. Pomeau, and A. Pumir. Shape selection of saffman-taylor fingers. *Physical Review Letters*, 56(19) :2036–2039, May 1986.
- [51] D. C. Hong and J. S. Langer. Analytic theory of the selection mechanism in the saffman-taylor problem. *Physical Review Letters*, 56(19) :2032–2035, May 1986.
- [52] B. I. Shraiman. Velocity selection and the saffman-taylor problem. *Physical Review Letters*, 56(19) :2028–2031, May 1986.
- [53] J. A. Miranda and M. Widom. Radial fingering in a hele-shaw cell : a weakly nonlinear analysis. *Physica D*, 120 :315–328, 1998.
- [54] Evguéni Lifchitz Lev Landau. *Théorie de l'élasticité*. 2e édition, 1990.
- [55] Patrick Oswald. *Rhéophysique, Ou comment coule la matière*. Michel Saint-Jean, 2005.
- [56] Z. H. Wagner. *Flugtech. Motorluftschiffart*, 20 :812, 1929.
- [57] B. Davidovitch, R. D. Schroll, D. Vella, M. Adda-Bedia, and E. A. Cerda. Prototypical model for tensional wrinkling in thin sheets. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 108(45) :18227–18232, November 2011.



- [58] T. Mora and A. Boudaoud. Buckling of swelling gels. *European Physical Journal E*, 20(2) :119–124, June 2006.
- [59] M. A. Biot. *Mechanics of Incremental Deformations*. John Wiley and Sons, New York, 1965.
- [60] A. Ghatak and A. L. Das. Kink instability of a highly deformable elastic cylinder. *Physical Review Letters*, 99(7) :076101, August 2007.
- [61] E. Hohlfeld and L. Mahadevan. Unfolding the sulcus. *Physical Review Letters*, 106(10) :105702, March 2011.
- [62] V. Shenoy and A. Sharma. Stability of a thin solid film with interactions. *Cond. Mat.*, - :-, 2000.
- [63] A. Ghatak and M. K. Chaudhury. Adhesion-induced instability patterns in thin confined elastic film. *Langmuir*, 19(7) :2621–2631, April 2003.
- [64] M. Adda-Bedia and L. Mahadevan. Crack-front instability in a confined elastic film. *Proc. of the Royal Soc. of London, Series A, Math. and Phys. Sci.*, 462 :1–19, 2006.
- [65] A. A. Griffith. *Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. A*, 221 :163, 1921.
- [66] P.B. Gent, A. N. ; Lindley. Internal rupture of bonded rubber cylinders in tension. *Proceedings of The Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 249, no. 1257 :195–205, 1959.
- [67] Arnaud Chiche. *Décollement d'un adhésif mou : fracture et cavitation*. PhD thesis, Université Paris 7, 2003.
- [68] J. Nase, A. Lindner, and C. Creton. Pattern formation during deformation of a confined viscoelastic layer : From a viscous liquid to a soft elastic solid. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :074503, 2008.
- [69] K. R. Crosby, A. J. Shull. Adhesive failure analysis of pressure-sensitive adhesives. *J Polym Sci Part B : Polym Phys*, 37 :3455, 1999.
- [70] J. Plateau. *Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires*. Gauthier-Villars, 1873.
- [71] Pierre-Gilles de Gennes Françoise Brochard-Wyart David Quéré. *Gouttes, bulles, perles et ondes*. Belin, 2005.

- [72] R. W. Ogden. *Nonlinear Elastic Deformations*. Dover, 1998.
- [73] R. S. Rivlin. Large elastic deformations of isotropic materials .4. further developments of the general theory. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series A-mathematical and Physical Sciences*, 241(835) :379–397, 1948.
- [74] A. N. Gent. Elastic instabilities in rubber. *International Journal of Nonlinear Mechanics*, 40(2-3) :165–175, March 2005.
- [75] G. Astarita and G. Marrucci. *Principles of non-Newtonian fluid mechanics*. 1974.
- [76] Aravinthan D.T. Samuel L. Mahadevan, William S. Ryu. Fluid "rope trick" investigated. *Nature*, 392 :140–141, 2000.
- [77] A. Lindner, D. Bonn, and J. Meunier. Viscous fingering in a shear-thinning fluid. *Physics of Fluids*, 12(2) :256–261, February 2000.
- [78] D. Bonn, H. Kellay, M. Benamar, and J. Meunier. Viscous finger widening with surfactants and polymers. *Physical Review Letters*, 75(11) :2132–2135, September 1995.
- [79] S. S. Park and D. J. Durian. Viscous and elastic fingering instabilities in foam. *Physical Review Letters*, 72(21) :3347–3350, May 1994.
- [80] S. Arif, J.-C. Tsai, and S. Hilgenfeldt. Speed of crack propagation in dry aqueous foam. *Europhysics Letters*, 92 :38001, 2010.
- [81] H. Tabuteau, S. Mora, M. Ciccotti, C. Y. Hui, and C. Ligoure. Propagation of a brittle fracture in a viscoelastic fluid. *Soft Matter*, 7(19) :9474–9483, 2011.
- [82] J. Nase, C. Creton, O. Ramos, L. Sonnenberg, T. Yamaguchi, and A. Lindner. Measurement of the receding contact angle at the interface between a viscoelastic material and a rigid surface. *Soft Matt.*, 6 :26852691, 2010.
- [83] J. Nase, D. Dreks, and A. Lindner. Dynamic evolution of fingering patterns in a lifted hele-shaw cell. *Phys. of Fluids*, 23 :123101, 2011.

- [84] A. Roos R. E. Webber, K. R. Shull and C. Creton. The effects of geometric confinement on the adhesive debonding of soft elastic solids. *Phys. Rev. E*, 68 :021805, 2003.
- [85] R. Nossal. A novel dynamic light-scattering method to determine the modulus of gels. *Rubber Chem. Technol.*, 61 :255, 1988.
- [86] A. Livne, G. Cohen, and J. Fineberg. Universality and hysteretic dynamics in rapid fracture. *Physical Review Letters*, 94(22) :224301, June 2005.
- [87] <http://wiki.scienceamusante.net/lepolyacrylamide>.
- [88] J. P. Gong. Friction and lubrication of hydrogels - its richness and complexity. *Soft Matter*, 2(7) :544–552, 2006.
- [89] T. Annable, R. Buscall, R. Ettelaie, and D. Whittlestone. The rheology of solutions of associating polymers - comparison of experimental behavior with transient network theory. *Journal of Rheology*, 37(4) :695–726, July 1993.
- [90] L. Ramos and C. Ligoure. Structure of a new type of transient network : Entangled wormlike micelles bridged by telechelic polymers. *Macromolecules*, 40(4) :1248–1251, February 2007.
- [91] A. Kii, J. Xu, J. P. Gong, Y. Osasa, and X. M. Zhang. Heterogeneous polymerization of hydrogels on hydrophobic substrate. *Journal of Physical Chemistry B*, 105(20) :4565–4571, May 2001.
- [92] Rhodorsil oils 47-technical information. Technical report, Bluestar Silicones.
- [93] Y. Couder, N. Gérard, and M. Rabaud. Narrow fingers in the saffman-taylor instability. *Phys. Rev. A, Rapid Com.*, 34 :5175–5178, 1986.
- [94] P. Tabeling and A. Libchaber. Film draining and the saffman-taylor problem. *Phys. Rev. A, Rapid Com.*, 33 :794–796, 1986.
- [95] C. Chevalier, M. Ben Amar, D. Bonn, and A. Lindner. Inertial effects on saffman-taylor viscous fingering. *Journal of Fluid Mechanics*, 552 :83–97, April 2006.

- [96] F. P. Bretherton. The motion of long bubbles in tubes. *Journal of Fluid Mechanics*, 10(2) :166–188, 1961.
- [97] D. Bonn, H. Kellay, H. Tanaka, G. Wegdam, and J. Meunier. Laponite : What is the difference between a gel and a glass? *Langmuir*, 15(22) :7534–7536, October 1999.
- [98] Thomas Gibaud, Catherine Barentin, Nicolas Taberlet, and Sebastien Manneville. Shear-induced fragmentation of laponite suspensions. *Soft Matter*, 5 :3026–3037, 2009.
- [99] F. Mahaut, X. Chateau, P. Coussot, and G. Ovarlez. Yield stress and elastic modulus of suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids. *Journal of Rheology*, 52(1) :287–313, January 2008.