

Fluctuations hors équilibre d'une interface entre deux fluides visqueux

Marine Thiébaud¹ & Thomas Bickel¹

CPMOH, Université de Bordeaux et CNRS (UMR 5798), 351 cours de la libération, 33405 Talence cedex
m.thiebaud@cpmoh.u-bordeaux1.fr

Résumé. On étudie les propriétés statistiques stationnaires d'une interface fluide soumis à un écoulement de Couette à l'aide de l'hydrodynamique, en prenant en compte le mouvement brownien des particules de fluide. On remarque alors que les fluctuations thermiques de l'interface sont contrôlées hors équilibre par un taux de cisaillement effectif qui diffère du taux de cisaillement appliqué. En accord avec les expériences, on aboutit à une rugosité de l'interface qui diminue sous l'effet de l'écoulement de Couette. On montre de plus un aspect universel des résultats puisque tous les paramètres des fluides se factorisent en un seul paramètre de contrôle. Enfin, on discute de ces résultats analytiques en les comparant avec des travaux expérimentaux et numériques.

Abstract. The steady states properties of an interface in a stationary Couette flow are addressed within the framework of fluctuating hydrodynamics. Our study reveals that thermal fluctuations are driven out of equilibrium by an effective shear rate that differs from the applied one. In agreement with experiments, we find that the mean square displacement of the interface is reduced by the flow. We also show that nonequilibrium fluctuations present a certain degree of universality in the sense that all features of the fluids can be factorized into a single control parameter. Finally, the results are discussed in the light of recent experimental and numerical studies.

1 Introduction

Le but du travail théorique analytique présenté dans la suite est de modéliser de manière rigoureuse l'influence d'un écoulement de cisaillement plan sur les propriétés statistiques d'une interface fluide, frontière entre deux fluides visqueux. Il s'agit d'un système modèle trompeur par la simplicité de sa description étant donné les divers effets (inertiels et visqueux par exemple) jouant des rôles opposés sur l'évolution de l'interface. En remplaçant dans la première phrase le mot « visqueux » par le mot « parfait », on reconnaît le problème de l'instabilité de Kelvin-Helmholtz (KH). La prise en compte de la viscosité complexifie la résolution et le problème diffère alors complètement de l'instabilité de KH. On a souhaité s'en détacher en se plaçant à faible nombre de Reynolds. Les effets inertiels sont négligés et on ne s'attache qu'aux effets visqueux en laissant de côté de plus les effets de confinement dus aux parois. Ainsi, on étudie l'effet du cisaillement sur les propriétés par conséquent hors équilibre des interfaces fluides dans le régime surarmorti des ondes interfaciales.

Ce sujet des propriétés hors équilibre des interfaces fluides a connu récemment un regain d'intérêt avec la découverte d'un mélange biphasique de colloïdes et de polymères [1]. L'interface entre ces deux fluides particuliers présente comme spécificité d'avoir une faible tension de surface. L'amplitude des fluctuations, caractérisée par la racine carrée de l'énergie thermique divisée par la tension de surface se situe à l'échelle du micron. L'étude expérimentale peut alors s'effectuer à l'aide de techniques de microscopies confocales fluorescentes qui permettent de visualiser directement en temps réel la configuration de l'interface. Ces deux ingrédients ont permis à Derks et à ses collaborateurs [2] de mesurer l'effet du cisaillement sur l'interface entre les deux fluides particuliers qui se trouve en régime surarmorti. Le constat fût double : diminution des fluctuations de l'interface et augmentation de la longueur de corrélation sous l'effet de l'écoulement de Couette. Le problème a aussi été abordé de manière numérique [3] : la diminution de la rugosité a bien été retrouvée mais la méthode employée aboutit aussi à une diminution de la longueur de corrélation au contraire des mesures expérimentales. La modélisation de ce problème pose donc nombre de questions et en particulier, quels effets prédominent sur les autres dans quels cas ?

Dans la suite de ce papier, nous commençons par décrire le système en précisant les différentes hypothèses. Dans le troisième paragraphe, nous donnons le premier résultat important qu'est l'équation de couplage entre le cisaillement et l'interface. Puis nous résolvons cette équation pour des faibles taux de cisaillement, ce qui nous mène à l'évolution de la rugosité de l'interface en fonction du cisaillement, autre résultat important de ce papier. Le cinquième paragraphe permet une discussion des résultats en tenant compte des résultats expérimentaux et numériques avant de conclure dans la dernière section.

2 Dérivation hydrodynamique

Une façon logique et rigoureuse de prédire le couplage entre le cisaillement et les fluctuations de l'interface est de faire appel à l'hydrodynamique. L'hydrodynamique est une bonne description des fluides presque jusqu'à l'échelle moléculaire ([4],[5]). Le problème étant fondamentalement hors équilibre, le bruit thermique subit par l'interface ne peut être connu directement et on envisage donc plus particulièrement l'hydrodynamique incluant le mouvement brownien des particules de fluides.

Les deux fluides sont placés l'un au-dessus de l'autre dans une géométrie plane comme on l'a schématisé sur la figure 1. L'épaisseur des fluides est notée L et celle du fluide supérieur (resp. inférieur) L_1 (resp. L_2). Dans la suite, on indice de façon systématique les quantités intrinsèques au fluide supérieur (resp. inférieur) par $i = 1$ (resp. $i = 2$). Chaque phase i est caractérisée par sa densité ρ_i et sa viscosité η_i . De même que dans la théorie des ondes capillaires, la limite entre ces deux phases immiscibles est supposée être une surface d'épaisseur nulle de déformations modérées autour d'un plan horizontal xOy : l'interface est décrite par sa hauteur $z = h(x, y, t)$ au-dessus du point (x, y) du plan horizontal xOy au temps t . On définit une tension de surface σ et une longueur de corrélation $l_c = \sqrt{\sigma/(\Delta\rho g)}$ où $\Delta\rho = \rho_1 - \rho_2$ et où g représente l'accélération gravitationnelle, deux quantités spécifiques à l'interface. La hauteur moyenne de l'interface est posée égale à $z = 0$. Le cisaillement est induit par le mouvement simultané et stationnaire des deux parois à la vitesse V_1 pour la paroi supérieure et $-V_2$ pour celle inférieure. Les quantités V_1 et V_2 sont choisies tel que le cisaillement soit nul en $z = 0$, position moyenne de l'interface. On définit alors les taux de cisaillement $\dot{\gamma}_i$ respectifs des deux fluides comme $\dot{\gamma}_i = V_i/L_i$. Le taux de cisaillement total $\dot{\gamma}$ s'appliquant sur l'interface est alors $\dot{\gamma} = (L_1\dot{\gamma}_1 + L_2\dot{\gamma}_2)/(L_1 + L_2)$.

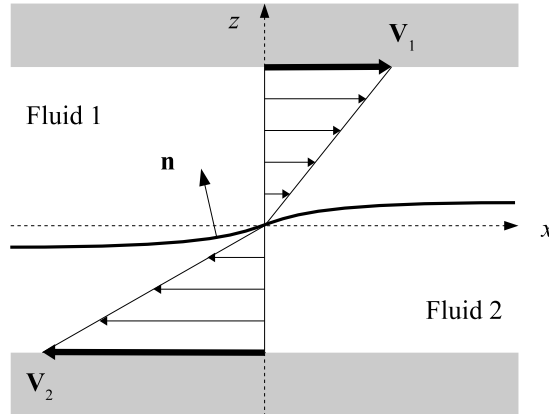


Fig. 1. Représentation schématique du système. Le vecteur unitaire \mathbf{n} est normal à l'interface et pointe vers le haut.

Les effets inertiels étant négligés, soit le régime étant surarmorti, les champs de vitesse et de pression vérifient l'équation de Stokes ainsi que la condition d'incompressibilité :

$$\eta_i \nabla^2 \mathbf{v}_i - \nabla p_i + \rho_i g + \nabla \cdot \bar{\mathbf{s}} = \mathbf{0} \quad (1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_i = 0 \quad (2)$$

où \bar{s} est le tenseur de contraintes dues aux mouvements browniens des particules de fluides. Bien que hors équilibre, la séparation des échelles de temps permet d'identifier \bar{s} avec son expression à l'équilibre. L'interface évolue sur des échelles de temps plus longues que les particules de fluides. Le temps caractéristique de l'interface $\tau_c = (\eta_1 + \eta_2)l_c/\sigma$ varie de $10^{-5} - 10^{-4}$ s pour des fluides moléculaires ($\sigma = 10^{-1}$ N.m $^{-1}$) à 1 – 10 s pour des fluides colloïdaux ($\sigma = 10^{-9}$ N.m $^{-1}$ [2]). Par ailleurs, le mouvement brownien des particules de fluide se déroule sur un temps caractéristique $\tau_b = \eta_i a^3/(k_B T)$ où a est le diamètre des particules de fluide et $k_B T$ l'énergie thermique. Pour des fluides moléculaires, $a \sim 1$ nm soit $\tau_b \sim 10^{-10}$ s tandis que pour des fluides colloïdaux où $a \sim 100$ nm, $\tau_b \sim 10^{-4}$ s. Pour les deux types de fluide, on constate $\tau_b \ll \tau_c$. Les taux de cisaillement considérés sont tels que $\dot{\gamma}\tau_c \sim 1$, le mouvement brownien est donc trop rapide pour être affecté par le cisaillement et il est donc spécifié par :

$$\langle s_{\mu,\nu}(\mathbf{r}, t) \rangle = 0 \quad (3)$$

$$\langle s_{\mu,\nu}(\mathbf{r}, t) s_{\mu',\nu'}(\mathbf{r}', t') \rangle = 2k_B T \eta_i (\delta_{\mu,\mu'} \delta_{\nu,\nu'} + \delta_{\mu,\nu'} \delta_{\mu',\nu}) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta(t - t') \quad (4)$$

Une fois l'hydrodynamique achevée, le couplage entre interface et écoulement a lieu précisément via les conditions limites. Au niveau de l'interface, la continuité des vitesses et des contraintes doit être vérifiée :

$$[\mathbf{v}]_h = \mathbf{0} \quad (5)$$

$$\left[\bar{T} \right]_h \cdot \mathbf{n} = \sigma \mathbf{n} (\nabla \cdot \mathbf{n}) \quad (6)$$

où on a employé la notation $[f]_{z_0} = f(z_0^+) - f(z_0^-)$. Dans l'équation 6, $\bar{T} = \bar{t} + \bar{s}$ représente le tenseur des contraintes incluant \bar{s} le tenseur des contraintes aléatoires vu précédemment et \bar{t} le tenseur des contraintes de pression et visqueuses. Les composantes de \bar{t} sont $t_{\mu,\nu} = -p \delta_{\mu,\nu} + \eta_i (\partial_\mu v_\nu + \partial_\nu v_\mu)$ où μ et ν représentent x , y ou z . Le vecteur normal \mathbf{n} , noté sur la figure 1, est le vecteur normal unitaire à l'interface pointant vers le haut. Il dépend de la configuration de l'interface.

$$\mathbf{n} = \frac{1}{\sqrt{1 + (\nabla h)^2}} \begin{pmatrix} -\partial_x h \\ -\partial_y h \\ 1 \end{pmatrix} \quad (7)$$

L'équation de fermeture entre les champs de vitesse et l'interface est simplement la relation cinétique

$$\partial_t h + v_x \partial_x h + v_y \partial_y h = v_z \quad (8)$$

où les vitesses sont prises en $z = h$. Cette équation, une fois les vitesses remplacées par leur expression en fonction de h , constitue l'équation du mouvement de l'interface.

3 L'équation vérifiée par l'interface

Il est difficile de suivre le programme décrit ci-dessus sans approximation. On s'inspire de la dérivation de la relation de dispersion des ondes capillaires en considérant l'amplitude des fluctuations comme petite. Cette méthode semble censée puisqu'elle donne de bons résultats à l'équilibre et le cisaillement, d'après les expériences et les simulations numériques, diminue la rugosité. Cependant, pour des raisons de symétrie, on peut prévoir que l'ordre linéaire ne fasse pas intervenir le taux de cisaillement, il est donc nécessaire d'effectuer le développement par rapport à la rugosité jusqu'à l'ordre 2 où le taux de cisaillement ainsi que des non-linéarités apparaissent. Le développement effectué est plus précisément un développement à petit gradient, soit en $\epsilon = \sqrt{k_B T}/(\sigma l_c)$. ϵ représente le rapport entre l'échelle de longueur perpendiculaire à l'interface soit la rugosité du même ordre que $\sqrt{k_B T}/\sigma$ et l'échelle de longueur parallèle à l'interface, soit la longueur de corrélation l_c . On pose ainsi $h = \epsilon u$ où u est une fonction d'ordre 1.

Le schéma de résolution décrit dans la section précédente peut alors être résolu en posant

$$\mathbf{v} = \mathbf{v}^{(0)} + \epsilon \mathbf{v}^{(1)} + \epsilon^2 \mathbf{v}^{(2)} + \dots \quad (9)$$

$$p = p^{(0)} + \epsilon p^{(1)} + \epsilon^2 p^{(2)} + \dots \quad (10)$$

Les équations de Stokes étant linéaires, chaque ordre successif obéit aux mêmes équations hydrodynamiques à l'exception de l'ordre 1 où apparaît en plus le tenseur des contraintes aléatoires \bar{s} . L'ordre 0 correspond à une configuration plane de l'interface, le champ de vitesse est $\mathbf{v}_i^{(0)} = \dot{\gamma}_i z \mathbf{e}_x$. La continuité des contraintes à l'interface impose $\eta_1 \dot{\gamma}_1 = \eta_2 \dot{\gamma}_2$. L'importance du développement limité se situe au niveau des conditions limites. Par exemple, à l'ordre 2, la vitesse en $z = h$ est

$$\mathbf{v}(\epsilon u) = \mathbf{v}^{(0)}(0) + \epsilon \left[\mathbf{v}^{(1)}(0) + u \partial_z \mathbf{v}^{(0)}(0) \right] + \epsilon^2 \left[\mathbf{v}^{(2)}(0) + u \partial_z \mathbf{v}^{(1)}(0) + \frac{u^2}{2} \partial_z^2 \mathbf{v}^{(0)}(0) \right] + o(\epsilon^3) \quad (11)$$

Un grand soin doit être apporté au même développement du tenseur des contraintes \bar{T} . On souligne de plus que l'étude des fluctuations nécessite de résoudre la problème tridimensionnel.

Le problème étant invariant par translation horizontale le long de la position moyenne de l'interface, la représentation de Fourier bidimensionnelle est indiquée. On pose $h(\mathbf{q}, t) = \int d^2 \mathbf{r} \exp(-i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) h(\mathbf{r}, t)$ où $\mathbf{r} = (x, y)$ et $\mathbf{q} = (q_x, q_y)$. On définit q la norme du vecteur d'onde \mathbf{q} . Après quelques calculs, on trouve qu'une fluctuation de mode \mathbf{q} suit l'évolution suivante :

$$\partial_t h(\mathbf{q}, t) = -\frac{1}{\tau_q} h(\mathbf{q}, t) - i \dot{\gamma}_{eff} \int \frac{d^2 \mathbf{k}}{(2\pi)^2} k_x h(\mathbf{k}, t) h(\mathbf{q} - \mathbf{k}, t) + \varphi(\mathbf{q}, t) \quad (12)$$

Le terme non-linéaire couple tous les modes de Fourier les uns avec les autres. Cette équation constitue le premier résultat important de ce papier. L'évolution temporelle d'une fluctuation de mode \mathbf{q} dépend de trois termes. Le premier est le terme de relaxation linéaire, trouvé identique à celui de l'équilibre ce qui était prévu $\tau_q = 2(\eta_1 + \eta_2)q/(\sigma(q^2 + l_c^{-2}))$. L'advection de la déformation représentée par le second terme est un effet non-linéaire. Il prend la forme d'un produit de convolution entre tous les modes de Fourier multiplié par un taux de cisaillement effectif

$$\dot{\gamma}_{eff} = \frac{\eta_1 \dot{\gamma}_1 + \eta_2 \dot{\gamma}_2}{\eta_1 + \eta_2}. \quad (13)$$

Ce taux de cisaillement effectif ressenti par l'interface diffère du taux de cisaillement appliqué. Il s'agit d'une quantité dynamique, les viscosités des deux fluides permettant de le définir. Le dernier terme de l'équation $\varphi(\mathbf{q}, t)$ modélise le bruit thermique à l'origine des fluctuations de l'interface. La procédure précédente permet de constater que ce terme a les mêmes propriétés qu'à l'équilibre. Sa valeur moyenne est nulle et ses corrélations sont données par :

$$\langle \varphi(\mathbf{q}, t) \varphi(\mathbf{q}', t') \rangle = \frac{k_B T}{(\eta_1 + \eta_2) q} \delta(t - t') (2\pi)^2 \delta(\mathbf{q} - \mathbf{q}') \quad (14)$$

4 Les fluctuations hors équilibre

La résolution de l'équation du mouvement 12 met en lumière le paramètre de contrôle sans dimension associé au cisaillement. Il s'agit du paramètre α :

$$\alpha = \sqrt{\frac{k_B T}{\sigma l_c^2} \dot{\gamma}_{eff} \tau_c} \quad (15)$$

Notons que l'équation 12 est valable jusqu'à l'ordre $\mathcal{O}(\epsilon^2)$. Avec un souci de cohérence, on ne peut obtenir une solution pour les propriétés statistiques de l'interface qu'à l'ordre $\mathcal{O}(\alpha^2)$. La résolution est ainsi restreinte à des taux de cisaillement modérés, ce qui ne signifie pas que $\dot{\gamma} \tau_c$ doit être petit mais que le paramètre α doit vérifier $0 \leq \alpha < 1$. On utilise la théorie de perturbation, ce qui nous permet d'obtenir la fonction de corrélation $S(\mathbf{q}, \dot{\gamma})$ définie de la manière suivante :

$$\lim_{t \rightarrow +\infty} \langle h(\mathbf{q}, t) h(\mathbf{q}', t) \rangle = S(\mathbf{q}, t) (2\pi)^2 \delta(\mathbf{q} + \mathbf{q}') \quad (16)$$

A l'équilibre, on rappelle que $S(\mathbf{q}, 0) = k_B T / (\sigma(q^2 + l_c^{-2}))$. Sous cisaillement, on constate la modification suivante du spectre :

$$S(\mathbf{q}, \dot{\gamma}) = S(\mathbf{q}, 0) [1 - \alpha^2 \mathcal{I}(ql_c) \cos^2 \theta_q + \mathcal{O}(\alpha^4)] \quad (17)$$

où θ_q est l'angle entre le vecteur d'onde \mathbf{q} et la direction du cisaillement soit \mathbf{e}_x . La fonction $\mathcal{I}(ql_c)$ dépend seulement de la norme q du vecteur d'onde \mathbf{q} .

$$\mathcal{I}(x) = \frac{1}{\pi^2} \int d^2 \mathbf{s} \cos \theta_s \frac{x^2 s}{|\mathbf{x} - \mathbf{s}| f(|\mathbf{x} - \mathbf{s}|)} \times \frac{[x f(x)]^{-1} - [s f(s)]^{-1}}{f(x) + f(x) + f(|\mathbf{x} - \mathbf{s}|)} \quad (18)$$

où $\mathbf{x} = x \mathbf{e}_x$, $s = |\mathbf{s}|$, θ_s est l'angle entre le vecteur \mathbf{s} et \mathbf{e}_x , et où $f(x) = (1 + x^2)/x$. L'intégration ne se fait pas analytiquement, on présente le résultat numérique sur la figure 2.

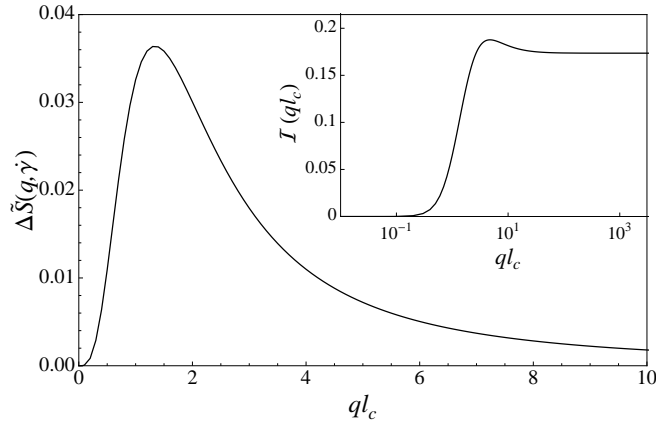


Fig. 2. Correction du spectre des fluctuations hors équilibre $\Delta\tilde{S}(\mathbf{q}, \dot{\gamma}) = \sigma / (k_B T l_c^2) \times \Delta S(\mathbf{q}, \dot{\gamma})$, dans la direction du cisaillement $\theta_q = 0$ et pour $\alpha = 1$. Dans l'encart est représenté $\mathcal{I}(ql_c)$.

L'équation 17 est le second résultat notable du papier. Le couplage est maximum dans la direction du cisaillement tandis qu'il est nul dans la direction de la vorticit . Les longueurs d'onde les plus affect es par le cisaillement sont celles de l'ordre de la longueur capillaire l_c . En revenant dans l'espace r el, on constate qu'effectivement les fluctuations sont r duites par le cisaillement :

$$\langle h^2 \rangle(\dot{\gamma}) = \int \frac{q dq d\theta_q}{(2\pi)^2} S(\mathbf{q}, \dot{\gamma}) = \langle h^2 \rangle(0) [1 - K\alpha^2 + \mathcal{O}(\alpha^4)] \quad (19)$$

La correction est quadratique par rapport au param tre de contr le α . K est une constante universelle dans le sens o  aucune des propri t s des deux fluides ou des constantes  lastiques de l'interface n'intervient dans son expression. Le mod le hydrodynamique donne $K \sim 0,087$. Le spectre nous a permis aussi d'obtenir les fonctions de corr lation spatiales qui sont d taill es dans un autre papier [6].

5 Discussion

On a montr  que l'amplitude des fluctuations de l' coulement est diminu  sous l'effet du cisaillement. Cette r duction fait intervenir un param tre universel que la th orie hydrodynamique sans param tra justable fixe   $K = 0.087$. Cette m me suppression des ondes capillaires a  t  mesur  par Derks et ses collaborateurs [2] gr ce   un m lange diphasique de collo ides et de polym res. Connaissant les diff rents param tres de la g om trie de l'exp rience et des deux phases, il est possible de comparer le mod le purement hydrodynamique avec les mesures exp riementales ce qui est effectu  sur la figure 3.

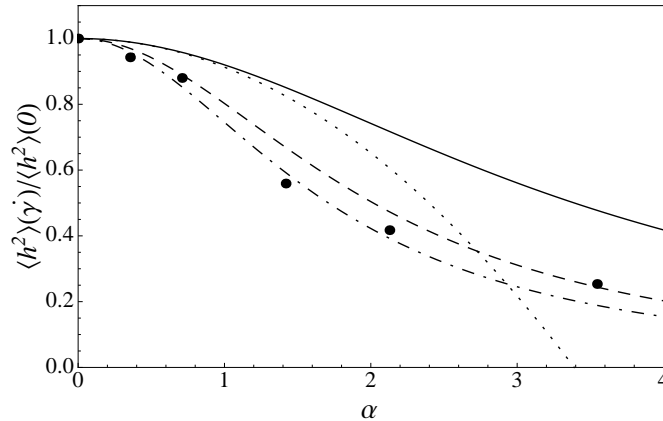


Fig. 3. Correction du spectre des fluctuations hors équilibre $\Delta\tilde{S}(\mathbf{q}, \dot{\gamma}) = \sigma / (k_B T l_c^2) \} \times \Delta S(\mathbf{q}, \dot{\gamma})$, dans la direction du cisaillement $\theta_q = 0$ et pour $\alpha = 1$. Dans l'encart est représenté $I(q l_c)$.

On constate un décalage d'un facteur 3-4 entre modèle hydrodynamique et expériences. On peut donc se demander si d'autres effets que les effets d'hydrodynamique classique entrent en jeu. En particulier, on peut penser à la séparation des différentes échelles de longueur. On a supposé de plus que les propriétés élastiques de l'interface comme sa tension σ n'étaient pas affectées par le cisaillement. On pourrait imaginer une tension au contraire, fonction du cisaillement. Pour modéliser cette variation, il faudrait cependant sortir de l'hydrodynamique classique.

En conclusion, on peut souligner le bon accord qualitatif d'un modèle hydrodynamique avec des points expérimentaux, modèle poussé jusqu'à l'ordre 2. On note aussi la dérivation rigoureuse d'une équation linéaire de type Kardar-Parisi-Zhang (KPZ) [7]. Ce type d'équation est courante en matière molle mais provient de raisonnements phénoménologiques.

Références

1. D. G. A. L. AARTS, M. SCHMIDT & H. N. W. LEKKERKERKER, Direct Visual Observation of Thermal Capillary Waves, *Science*, **304**, 847-850 (2004).
2. D. DERKS, D. G. A. L. AARTS, D. BONN, H. N. W. LEKKERKERKER & A. IMHOF, Suppression of Thermally Excited Capillary Waves by Shear FLOW, *Physical Review Letters*, **97**, 038301 (2006).
3. T. H. R. SMITH, O. VASILYEV, D. B. ABRAHAM, A. MACIOLEK & M. SCHMIDT, Interfaces in Driven Ising Models : Shear enhances Confinement, *Physical Review Letters*, **101**, 067203 (2008).
4. C. FRADIN, A. BRASLAU, D. LUZET, D. SMILGIES, M. ALBA, N. BOUDET, K. MECKE & J. DAILLANT, Reduction in the surface energy of liquid interfaces at short length scales, *Nature*, **403**, 871-874 (2000).
5. R. DELGADO-BUSCALIONI, E. CHACON & P. TARAZONA, Hydrodynamics of Nanoscopic Capillary Waves, *Physical Review Letters*, **101**, 106102 (2008).
6. M. THIÉBAUD & T. BICKEL, Nonequilibrium fluctuations of an interface under shear, *ArXiv*, 0909.0849 (2009).
7. M. KARDAR, G. PARISI & Y. C. ZHANG, Dynamic Scaling of Growing Interfaces, *Physical Review Letters*, **56**, 889-892 (1986).