

Fluides non miscibles/fluides miscibles : des similitudes intéressantes

Philippe PETITJEANS et Pascal KUROWSKI

Laboratoire de Physique et Mécanique de Milieux Hétérogènes, École Supérieure de Physique et de Chimie Industrielles, 10, rue Vauquelin, 75231 Paris cedex 05, France.

E-mail : phil@pmmh.espci.fr

Résumé. Diverses configurations d'interfaces instables entre fluides miscibles sont décrites. Des comportements qualitativement similaires à ce que l'on obtient habituellement entre fluides non miscibles sont observés. En raison de la lenteur de la diffusion moléculaire, on peut penser que les gradients de densité non négligeables entre les deux espèces peuvent induire une tension de surface équivalente qui expliquerait ces similitudes.

Mots clés : interfaces / miscible / instabilité gravitationnelle / Rayleigh–Taylor / tension de surface

Immiscible fluids/miscible fluids: interesting similitudes

Abstract. *Different configurations of unstable interfaces between miscible fluids are described. Behavior qualitatively similar to that generally observed between immiscible fluids is reported. Owing to the slowness of molecular diffusion, the density gradient between the two species may induce an equivalent surface tension which could explain these similitudes.*

Keywords: *interfaces / miscible / gravitational instability / Rayleigh–Taylor / surface tension*

1. Introduction

L'objectif de cette note est la description d'une série d'observations faites à « l'interface » entre deux fluides miscibles, pour en souligner les ressemblances avec ce que l'on peut observer dans des situations identiques mais entre des fluides non miscibles.

Les interfaces entre fluides non miscibles ont une dynamique qui est de mieux en mieux connue, et qui dépend de façon directe de la tension de surface entre ces deux fluides. L'instabilité visqueuse lorsqu'un fluide est poussé par un fluide moins visqueux, l'instabilité de Rayleigh–Taylor lorsqu'un

Note présentée par Philippe NOZIÈRES.

fluide est placé au-dessus d'un fluide moins dense, l'instabilité de Kelvin-Helmoltz entre deux fluides qui se déplacent à des vitesses différentes, sont quelques exemples d'instabilités qui se développent à l'interface entre deux fluides non miscibles et qui produisent des structures qui sont maintenant bien connues. La longueur d'onde de ces instabilités est en général reliée à la longueur capillaire, ou plus généralement à la tension de surface qu'il existe entre les deux fluides concernés.

Que se passe-t-il lorsque les fluides sont miscibles ?

Nous avons été conduits à nous poser cette question sur les interfaces miscibles après avoir longuement observé certaines instabilités qui sont par ailleurs connues entre fluides non miscibles (voir par exemple Joseph et Renardy, 1993 ; Petitjeans et Maxworthy, 1996). Cette note, qui se veut volontairement descriptive, a pour objectif de sensibiliser les expérimentateurs et les chercheurs en général sur la possibilité de conduire une certaine analogie entre les fluides non miscibles et les fluides miscibles lorsque la seule cause du mélange irréversible de deux fluides miscibles est la lente diffusion moléculaire. Les premiers instants, dont on sait à quel point ils peuvent être importants pour le développement d'une instabilité, sont en effet peut-être dominés par une tension de surface équivalente due aux forts gradients de densité initiaux.

2. Observations

2.1. Instabilité gravitationnelle dans une cellule de Hele-Shaw

Une cellule de Hele-Shaw verticale d'épaisseur comprise entre 50–1 000 μm est utilisée pour étudier l'instabilité gravitationnelle d'un fluide plus dense placé au-dessus d'un fluide moins dense lorsque les deux fluides sont miscibles en toute proportion. Les deux fluides utilisés sont la glycérine de même concentration C . L'un des deux fluides est rendu plus dense par adjonction de colorant en poudre (amarante). Nous obtenons ainsi deux fluides de viscosités quasiment égales et de rapport relatif de densité $(\rho_1 - \rho_2)/(\rho_1 + \rho_2)$ allant de $2,5 \cdot 10^{-3}$ à $5 \cdot 10^{-2}$. Une vue typique de l'instabilité qui se développe est donnée sur la *figure 1* où l'on voit nettement la formation de doigts. La diffusion moléculaire ($\approx 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ dans le cas de la *figure 1*) n'a pas encore eu d'effet visible à l'œil, puisque l'interface semble toujours aussi nette (cette observation d'une interface « nette » va être quantifiée dans le futur par des mesures du profil de concentration). Les longueurs d'onde et taux de croissance de

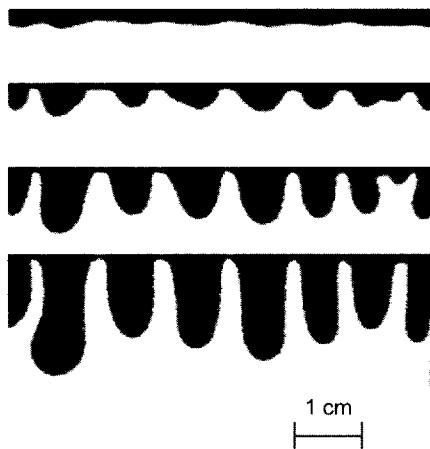


Fig. 1. – Instabilité « miscible » Rayleigh-Taylor dans une cellule de Hele-Shaw verticale d'épaisseur $e = 1 \text{ mm}$. Les fluides sont de la glycérine de concentration $C = 84 \%$. Le fluide supérieur est rendu plus lourd par adjonction de colorant en poudre telle que le rapport relatif de densité $(\rho_1 - \rho_2)/(\rho_1 + \rho_2) = 5 \cdot 10^{-4}$. Les quatre figures successives sont prises à des temps $T = 30, 45, 104,$ et 300 min après la mise en contact des deux fluides.

Fig. 1. – 'Miscible' Rayleigh-Taylor instability in a vertical Hele-Shaw cell of thickness $e = 1 \text{ mm}$. The fluids are glycerine of concentration $C = 84 \%$. The upper fluid is made heavier by the addition of dye in powder form. The relative density ratio is $(\rho_1 - \rho_2)/(\rho_1 + \rho_2) = 5 \cdot 10^{-4}$. The four pictures are taken at times $T = 30, 45, 104, 300 \text{ min}$ after contact of the two fluids.

cette instabilité ne sont bien entendu pas du même ordre que ceux que l'on obtient dans le cas de deux fluides non miscibles, mais la forme générale reste tout à fait similaire.

2.2. Instabilité d'un jet tombant dans un milieu miscible (cas 1D)

Nous nous intéressons aussi à l'analogie miscible de l'instabilité de Rayleigh d'un jet qui tombe, sous l'action de son propre poids, dans un milieu dans lequel il est miscible en toute proportion. La *figure 2* montre l'instabilité que l'on observe, où le jet, initialement « lisse », présente ensuite des « renflements » préliminaires à sa séparation en gouttes. Qualitativement, cette instabilité est similaire à l'instabilité de Rayleigh. Le mécanisme responsable de cette instabilité dans le cas non miscible est la tension de surface. Quel est-il dans le cas miscible ? Ce pourrait être le cisaillement à « l'interface » qui produirait une instabilité de type Kelvin–Helmholtz. Cependant, cette hypothèse ne semble pas correcte dans la mesure où les ordres de grandeur ne coïncident pas du tout. Un article sur cette étude est en cours de rédaction.

Fig. 2. – Filet de glycérine colorée s'écoulant dans de l'eau au repos. Des renflements commencent à apparaître qui donnent ensuite naissance à des gouttes distinctes.

Fig. 2. – Column of colored glycerine falling into water. Instability commences, producing drops.



2.3. Instabilité d'une nappe liquide tombant dans un milieu miscible (cas 2D)

Une expérience de chute d'une nappe liquide tombant dans un milieu miscible a été réalisée. On observe trois régimes différents en fonction du débit de chute du liquide. Lorsque le débit est suffisamment élevé, le liquide tombe en nappe comme l'on pouvait s'y attendre. Lorsque le débit de

chute diminue, on observe que la nappe se scinde en colonnes tombantes espacées d'une distance relativement régulière de façon tout à fait similaire à ce que l'on observe dans le cas non miscible (Limat *et al.*, 1992 ; Giorgiutti *et al.*, 1995). Si l'on diminue encore le débit, alors chaque colonne se comporte individuellement comme une colonne isolée et l'on observe sa déstabilisation en goutte de la même façon que nous l'avions observée dans le cas d'une colonne unique tombant dans un milieu miscible (voir paragraphe précédent). La *figure 3* représente une vue de l'instabilité. Là encore, le mécanisme responsable de la déstabilisation d'une nappe en filets n'est pas parfaitement clair. Cependant, la similitude de comportement avec les fluides non miscibles est surprenante. Si l'on essayait d'appliquer les résultats des théories dans le cas non miscible à notre expérience, on trouverait une tension effective de l'ordre de 0,07 dyn/cm, en bon accord avec ce qui avait été obtenu par des mesures directes par P. Petitjeans (1996) pour les mêmes fluides (eau et glycérine de concentration 85 %).

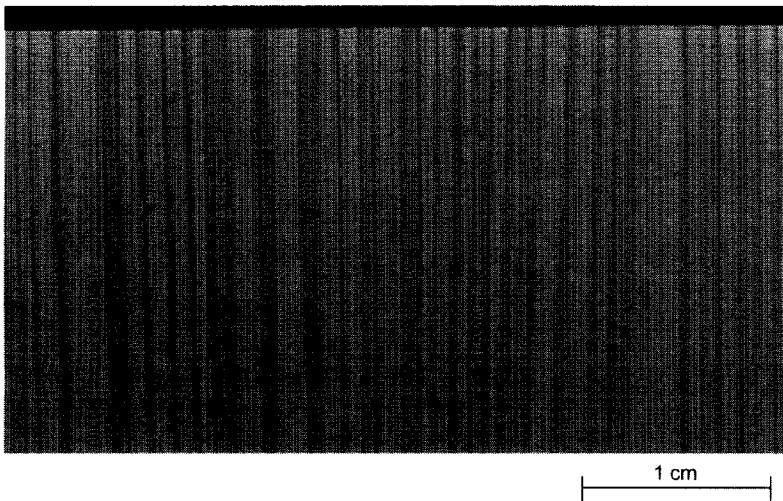


Fig. 3. – Nappe de glycérine de concentration 84 % s'écoulant à travers une fente d'épaisseur $e = 0,1$ mm dans de l'eau au repos. La nappe se scinde en filets espacés relativement régulièrement.

Fig. 3. – Sheet of glycerine of concentration 84 % falling into water through a thin slot of gap $e = 0.1$ mm. The sheet divides into regularly spaced columns.

2.4. Instabilité d'une couche liquide tombant dans un milieu miscible (cas 3D)

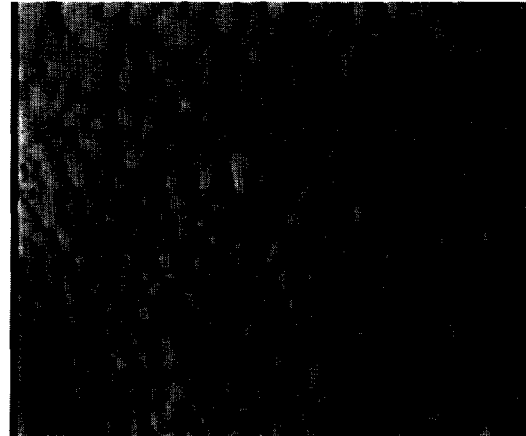
La dernière instabilité que nous décrivons dans cette note correspond à l'instabilité de Rayleigh–Taylor en couche mince (Fermigier *et al.*, 1992, pour le cas non miscible). Cette expérience consiste à étaler sur une surface transparente (plaque de plexiglas) un fluide très visqueux tel que le miel (pour que le temps d'observation soit suffisant). Lorsqu'une épaisseur de 2 ou 3 mm est atteinte de manière homogène sur toute la plaque (à l'exception des bords), nous retournons la plaque dans un milieu où le fluide étalé est miscible (de l'eau). Au début, nous observons que le fluide s'écoule verticalement à partir de quelques points de la plaque. Lorsque l'épaisseur de fluide qui reste sous la plaque est assez fine (de l'ordre du millimètre), on observe la formation de petites cellules plus ou moins régulières (*fig. 4*). Leur taille caractéristique est d'environ 0,5 mm. Là encore, la similitude avec le cas non miscible est troublante.

3. Discussion

Lorsque les fluides sont miscibles entre eux, la dynamique de « l'interface » est totalement modifiée. En particulier, on ne peut plus à proprement parler « d'interface ». Cependant, pour des temps

Fig. 4. – Une goutte de miel est étalée sur une plaque de plexiglas qui est ensuite retournée (miel au-dessous) dans un récipient d'eau. Après un régime transitoire, on observe de petites cellules de taille relativement constante.

Fig. 4. – A drop of honey is spread on a plexiglass plate which is then turned over into a water tank. After a transitory period, small cells of almost constant size are observed.



relativement courts (mais pouvant aller jusqu'à quelques minutes), les deux fluides miscibles présentent entre eux une « interface » qui est macroscopiquement encore bien définie. Cela s'explique par des coefficients de diffusion moléculaire qui sont en général très petits pour les fluides usuels (10^{-7} – 10^{-5} cm²/s). Tout cela revient à dire qu'en l'absence de tout autre phénomène de mélange, et pendant un certain temps, il continue d'exister à « l'interface » des gradients de concentration, et donc souvent de densité, très importants. Dans cette situation, nous pouvons raisonnablement nous poser la question de l'existence d'une pseudo-tension de surface ou tension de surface équivalente qui, aux temps courts et donc avant que la diffusion moléculaire ait agit sur une distance suffisamment grande, jouerait un rôle similaire à la tension de surface classique, définie entre fluides non miscibles. Des arguments phénoménologiques allant dans ce sens sont les suivants : les molécules qui se trouvent à l'interface entre deux fluides non miscibles ne subissent pas les mêmes interactions moléculaires de la part des deux fluides. Le travail nécessaire pour traverser l'interface (énergie libre) constitue par définition la tension de surface habituelle. Lorsque les deux fluides sont miscibles, mais pas encore bien mélangés et qu'il existe encore une « interface » même épaisse, il y a toujours un déséquilibre des forces moléculaires le long du gradient de densité des fluides. Ce déséquilibre, qui tend irrémédiablement et irréversiblement vers zéro avec l'homogénéisation du mélange au cours du temps, pourrait peut-être donner lieu à un équivalent miscible de la tension de surface habituelle. Certes, les ordres de grandeurs que l'on obtiendrait semblent surprenants : après un temps $T \approx 1$ s, « l'interface » s'élargit de $\delta \approx 3$ μ m, ce qui correspond à environ 1 000 fois la distance intermoléculaire. Néanmoins, s'il existe un gradient de densité non nul à la traversée de « l'interface » d'épaisseur δ , il est possible que cela soit suffisant pour créer une anisotropie sur les forces moléculaires qui agissent sur les molécules se trouvant à l'interface, et justifie l'existence d'une tension équivalente aux temps courts.

4. Conclusion

Les problèmes d'interfaces et d'instabilités entre fluides miscibles sont tout à fait fondamentaux et posent des questions non triviales sur les mécanismes physiques qui interviennent aux temps courts. Les diverses observations que nous avons effectuées jusqu'alors peuvent trouver une explication dans l'existence d'une tension de surface équivalente pour les fluides miscibles. Des études sont en cours pour déterminer plus quantitativement la pertinence d'une telle notion.

P. Petitjeans et P. Kurowski

Remerciements. Les auteurs tiennent à remercier le CNES pour son aide financière (aide à la recherche 96 CNES/0222).

Note remise le 4 août 1997, acceptée le 8 septembre 1997.

Références bibliographiques

- Giorgiutti F., Bleton A., Limat L., Wesfreid J. E., 1995.** Dynamics of a one-dimensional array of liquid columns, *Phys. Rev. Lett.*, 74, 538.
- Joseph D. D., Renardy Y. Y., 1993.** *Fundamentals of Two-Fluid Dynamics*, Part II: Lubricated transport, drops and miscible liquids, vol. 4, Interdisciplinary Applied Mathematics, Springer-Verlag, New York.
- Fermigier M., Limat L., Wesfreid J. E., Boudinet P., Quilliet C., 1992.** Two-dimensional patterns in the Rayleigh–Taylor instability of a thin layer, *J. Fluid Mech.*, 236, 349.
- Limat L., Jenffer P., Dagens B., Touron E., Fermigier M., Wesfreid J. E., 1992.** Rayleigh–Taylor instability of a thin layer: dynamics of pattern selection, *Physica D*, 61, 166.
- Petitjeans P., 1996.** Une tension de surface pour les fluides miscibles, *C. R. Acad. Sci. Paris*, 322, série II b, 673-679.
- Petitjeans P., Maxworthy T., 1996.** Miscible displacements in capillary tubes - Part 1: Experiments, *J. Fluid Mech.*, 326, 37-56.