

Etude expérimentale de l'instabilité d'un jet de solution diluée de polymère

Martial Gassa Feugaing¹, Olivier Crumeyrolle¹, Gérard Gréhan², & Innocent Mutabazi¹

¹ LOMC, UMR 6294, CNRS-Université du Havre

² CORIA, UMR 6614, CNRS-Université de Rouen

olivier.crumeyrolle@univ-lehavre.fr

Résumé. Nous étudions expérimentalement la dynamique de brisure des jets libres et forcés de solutions diluées de polymère flexible de forte masse molaire au travers d'un petit orifice. Pour cela nous employons des solutions aqueuses de faibles concentrations en polyoxyéthylène (POE, $c^* = 180$ ppm), débouchant au travers d'un orifice de $50 \mu\text{m}$ de diamètre. Nous observons que le jet présente dans la longueur de rupture finale la structure dite de « perles sur une ficelle ». Cette dynamique nous permet de mettre en évidence un effet élongationnel en régime fortement dilué.

Abstract. The capillary instability of viscoelastic liquid jet under the influence of free and externally controlled disturbances is investigated experimentally. The working liquids are low concentration aqueous solutions of polyethylene oxide (POE, $c^* = 180$ ppm), a neutral and flexible polymer of high molecular weight. Our experiments show that the so-called beads-on-a-string structure remains before the final break-up point. This structure is also observed when periodic forcing is enabled. This behaviour indicates that the extensional properties of viscoelastic fluids play an important role in such dilute solutions.

1 Introduction

L'atomisation des liquides viscoélastiques est essentielle dans de nombreuses applications domestiques, agricoles et industrielles [1,2,3,4]. Dans ces processus, la présence de polymère change la dynamique du jet et joue un rôle important pour le contrôle de la taille des gouttes et la suppression des gouttes satellites [5]. Dans le même temps l'apparition de filaments entre les gouttes peut conduire à la création de gouttes secondaires lors de la déstabilisation du filament [6] et par conséquent un temps de rupture plus long [7]. Li & Fontelos [8] ont fait une étude numérique basée sur le modèle de Oldroyd-B à une dimension. Leurs travaux montrent que la force élastique et non la force capillaire est la force motrice dans le processus de migration et d'oscillation des gouttes sur le filament. La théorie linéaire fournit des taux d'amplification où les perturbations optimales sont plus fortes en non-newtoniens qu'en newtoniens. Les perturbations variqueuses sont à l'origine de l'instabilité pour de faibles nombres de Weber, alors que les perturbations sinueuses dominent pour de grands nombres de Weber [9]. Les travaux les plus récents montrent qu'une ségrégation du polymère peut se produire entre les gouttes et le filament [10]. Toutefois le couplage entre les processus de migration et de drainage des gouttes sur le filament, de même que la présence dominante des effets non-linéaires dans l'étape ultime de rupture dus à la viscosité élongationnelle restent mal comprises.

Le but de ce travail est de mener une étude sur l'effet de l'élasticité et du forçage sur la rupture capillaire d'une solution de polymère en régime dilué. Nous nous intéressons aux propriétés statistiques des gouttes et à la longueur de la structure filamentaire.

2 Matériels et méthodes

Un schéma du dispositif expérimental est présenté en figure 1. La partie mécanique qui gère la production et l'alimentation du jet est constituée d'une pompe seringue et d'un injecteur. La pompe sert

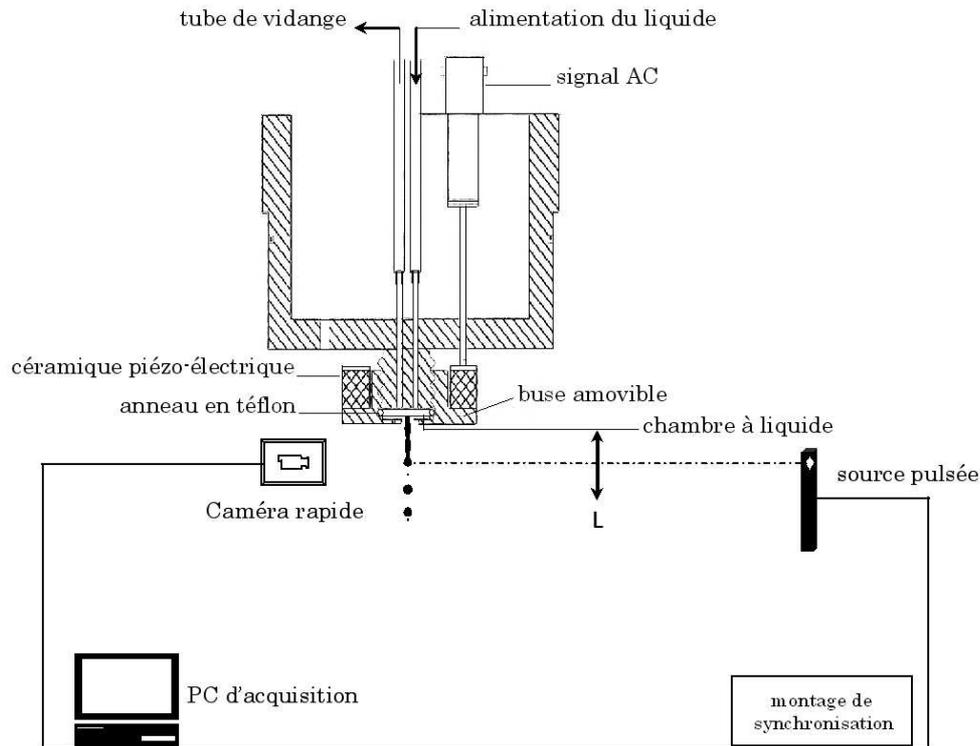


Figure 1. Schéma du dispositif expérimental

à générer l'écoulement de liquide et à maintenir un débit constant quelque soit la pression dans la seringue qui contient la solution étudiée. Les fluctuations de débit mesurées par pesée en début et en fin d'expérience n'excèdent pas 0,2%. Pour éviter l'obstruction de l'orifice, la solution débouche de la seringue au travers d'un filtre à membrane fluoropore de type Millipore, de diamètre de porosité $0,45 \mu\text{m}$. Elle parcourt ensuite un tube transparent de 1,5 m de longueur et 4 mm de diamètre intérieur avant de pénétrer dans l'injecteur. Le liquide en ressort par un tube de vidange. Lorsque la vanne de vidange est fermée, la chambre à liquide est mise sous pression et le liquide débouche dans de l'air au repos à travers un orifice de diamètre $D = 50 \mu\text{m}$ percé sur une plaque mince circulaire en acier inoxydable, maintenu en place par un anneau en Téflon. Une céramique piézo-électrique permet de forcer en amplitude et en fréquence la dynamique du jet.

Le dispositif d'imagerie, constitué par une source de lumière pulsée de durée 20 ns synchronisée à l'acquisition d'image par une caméra rapide (1280×48 pixels), permet d'atteindre dans cette configuration une vitesse d'acquisition de 16000 images par secondes (fps). L'objectif macro est muni d'une bague allongée de 10 mm afin d'optimiser le facteur d'agrandissement. L'analyse statistique est réalisée sur un échantillon de 12000 images enregistrées à une cadence de 1000 fps avec une résolution spatiale de $6,25 \mu\text{m}/\text{pixels}$. Afin d'éviter les effets acoustiques dus aux décharges électriques dans la gamme de hautes fréquences, la source lumineuse est placée à une distance de un mètre du jet. Pour disposer d'une intensité lumineuse suffisante, une lentille convergente L de 150 mm de diamètre et 500 mm de focale est intercalée entre les flashes et le jet et dans l'axe caméra-flashes. Dans cette configuration on obtient une tache lumineuse de $22 \pm 0,5$ mm de diamètre, focalisée sur la ligne de jet. L'éclairage est homogène et l'acquisition fournit des images qui sont transférées sur un PC pour être analysées.

L'ensemble du système de génération de jet et le dispositif d'imagerie sont isolés des perturbations extérieures par une enceinte en polycarbonate de dimension $160 \text{ cm} \times 90 \text{ cm} \times 60 \text{ cm}$ et disposés sur un banc expérimental en marbre. Les fluides viscoélastiques étudiés sont des solutions aqueuses de poly-

oxyéthylène (POE), un polymère flexible neutre de forte masse molaire nominale $8.10^6 \text{ g.mol}^{-1}$ (Aldrich Chemical). Nous utilisons des solutions de POE à 5 ppm, 10 ppm et 20 ppm (ppm : partie par millions) obtenues par dilution de poudre de polymère dans le solvant constitué de 95% d'eau déminéralisée (Volvic) et de 5% d'alcool isopropylique. L'alcool limite les problèmes liés à la tension de surface lors de la dispersion de la poudre de polymère, et évite le développement des bactéries. Les solutions sont conservées au froid ($+8^\circ\text{C}$) lorsqu'elles ne sont pas utilisées pour éviter la dégradation de l'échantillon. La tension de surface des solutions tests est constante et vaut $\sigma = 60,5 \text{ mN/m}$. La masse volumique $\rho = 1070 \text{ kg/m}^3$. La viscosité à taux de cisaillement nul des solutions de polymère mesurée à l'aide d'un viscosimètre MCR-501 ANTON PAAR est proche de la viscosité du solvant et vaut $\eta_0 = \eta_s \simeq 1 \text{ mPas}$.

2.1 Paramètres de contrôle

Nous caractérisons la dynamique de rupture observée à l'aide des paramètres sans dimension suivants :

- Le nombre de Weber $We = \rho D V_j^2 / 2\sigma$ où V_j est la vitesse d'injection du jet. Ce nombre compare les effets inertiels aux effets des forces de tension superficielle. Il est un paramètre pertinent pour décrire la transition entre un régime de gouttes à gouttes ($We < 1$) à un régime de jet ($We > 1$).
- Le nombre d'Ohnesorge $Oh = (2\eta_0 / \rho D \sigma)^2$ mesure le rapport des forces visqueuses aux forces capillaires.
- Pour les fluides viscoélastiques, le temps de relaxation, λ , du polymère entre en jeu dans le phénomène de rupture [11]. Cette influence est mesurée par le nombre élastique $E = \eta_0 \lambda / \rho D^2$. D'après Christanti et Walker [5], le temps de relaxation est de l'ordre de quelques millisecondes, donc on peut considérer que E est de l'ordre de 1.

Dans le cas du jet forcé, il faut également considérer la fréquence et l'amplitude de forçage. Nous avons travaillé avec cinq débits différents correspondant à des nombres de Weber compris entre 13 et 120, avec une précision de 5%. Le nombre d'Ohnesorge vaut $Oh = 0,025$. La fréquence de forçage varie de 1 kHz à 1 MHz et l'amplitude de 0 à 30 V (crête-à-crête).

2.2 Traitement d'images

Plusieurs schémas de rupture de jets ont été identifiés en scrutant différentes parties du jet. L'analyse des images est réalisée à l'aide d'un programme développé sous Matlab. Il contient des routines permettant par la suite de faire des mesures quantitatives et statistiques des propriétés de gouttes. Les mesures granulométriques sont obtenues en assimilant les gouttes à des ellipsoïdes de révolution allongés de petit axe a , de grand axe b et de volume $V = 4/3(\pi b a^2)$; le diamètre de goutte sphérique équivalente est alors déduit. A partir de la formule de Ramanujan [12], le calcul du périmètre permet d'estimer la circularité, sachant qu'elle vaut 1 dans le cas d'un cercle parfait.

3 Résultats

Sur les images de jet vertical que nous présentons, l'orifice est situé à l'extrémité gauche et la direction de l'écoulement est de la gauche vers la droite. Les images sont de dimensions : $6500 \mu\text{m} \times 155 \mu\text{m}$. Les photos de jets libres en figure 2 illustrent l'effet du polymère sur la dynamique de rupture du jet. Pour chaque image et chaque solution, $We = 30$. Le jet de solvant (Fig. 2a) nous sert de référence pour comparer les schémas de comportement observés en viscoélastique. La théorie linéaire rapporte que à partir du moment où l'amplitude de la perturbation dominante atteint la valeur du rayon du cylindre liquide initial, le jet se désintègre en gouttes.

La figure 2 montre que le mécanisme de rupture d'un jet en gouttes, la distribution de taille de gouttes et la longueur de rupture sont significativement modifiés par la viscoélasticité. En effet, l'ajout de seulement 5 ppm de POE au solvant (Fig. 2b) conduit à la formation d'un filament mince dans l'étape ultime de rupture. L'élasticité est stabilisatrice par rapport aux forces de tension de surface et d'inertie. La structure filamentaire perdure et s'allonge avec l'augmentation de la concentration (Figs 2c et 2d). Le

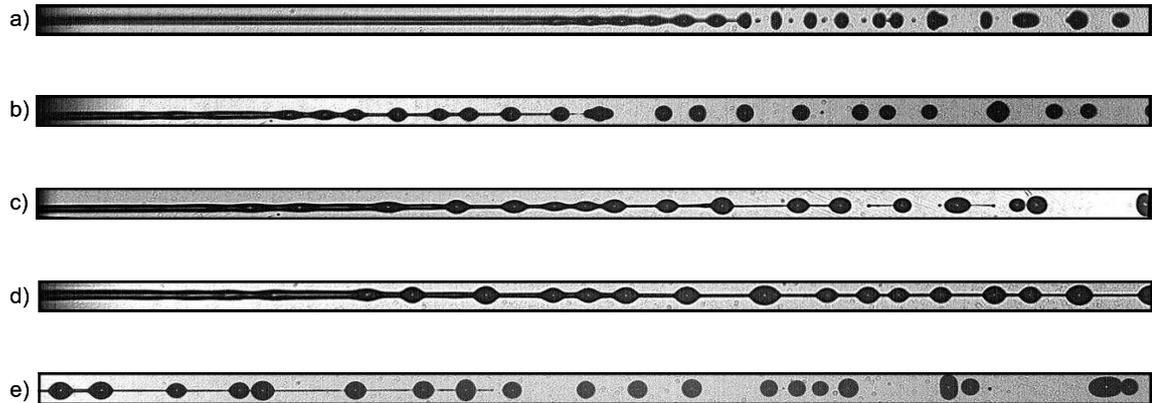


Figure 2. Images de jets libres à $We = 30$. Les fluides sont : (a) Solvant, (b) 5 ppm, (c) 10 ppm, (d) 20 ppm ; images prises à la sortie de l'orifice située à l'extrémité gauche et (e) 20 ppm ; 5 mm plus bas. L'écoulement et la gravité sont orientés de gauche à droite.

couplage entre la migration et le drainage des gouttes sur le filament, et la présence d'effets non linéaire dans la phase de rupture induite par la viscosité élongationnelle conduit à la formation de la structure dite de « perles sur ficelle ». Dans le cas de la solution à 20 ppm de POE par exemple (Fig. 2e), l'allongement du filament nécessite de descendre 5 mm plus bas le long de l'axe du jet pour observer la rupture.

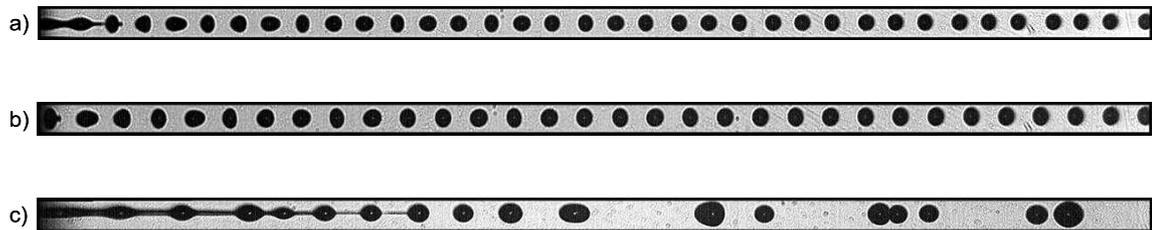


Figure 3. Images de jets forcés à l'amplitude de 15 V et à $We = 13$. Solvant monodisperse : (a) $f = 10,001$ kHz, (b) $f = 26,140$ kHz. (c) 5 ppm à $f = 10,004$ kHz. Images prises à la sortie de l'orifice située à l'extrémité gauche. L'écoulement et la gravité sont orientés de gauche à droite.

L'introduction de vibrations extérieures permet de contrôler la désintégration du jet newtonien. Ainsi pour des paramètres adéquats de débit et de forçage (fréquence et amplitude), l'on peut créer des gouttes monodisperses et agir sur la longueur de rupture du jet. Par exemple à $We = 13$ et pour une amplitude de 15 V, la réalisation d'un jet monodisperse avec présence de longueur de rupture est obtenue à la fréquence $f = 10,001$ kHz (Fig. 3a) ; et la production de gouttes monodisperses dès la sortie de l'orifice est observée à $f = 26,140$ kHz (Fig. 3b). A contrario, nous n'avons pas observé de jet de gouttes monodisperses avec les solutions de polymère dans la gamme de paramètres de forçage disponible. Le filament reste présent et la longueur de rupture n'est pas significativement modifiée. L'élasticité est suffisante pour s'opposer à l'effet du forçage. La perturbation axiale de vitesse créée par le mouvement de la céramique piézoélectrique génère une perturbation radiale que l'on distingue nettement sur le jet dès la sortie de l'orifice. Une illustration est donnée en image en figure 3c pour la solution à 5 ppm de POE, à $f = 10,004$ kHz.

La figure 4 regroupe les mesures de longueur de rupture moyenne réalisées sur les jets libres de solvant et de solution de POE à 5 ppm. Nos résultats sont en accord avec les mesures expérimentales de longueur de rupture de Mun *et al.* [7] en newtonien. Dans la gamme de nombre de Weber étudiée, la longueur de

rupture varie linéairement avec la vitesse d'injection du jet. Les longueurs de rupture de la solution de POE à 5 ppm sont inférieures à celles de la solution de solvant. [7] ont observé ce comportement pour leur solution de POE de poids moléculaire égal à $3.10^5 \text{ g.mol}^{-1}$ à 50 ppm, dans un solvant de 50/50 eau/glycérol. Le temps de rupture moyen estimé à partir des données expérimentales de la figure 4 vaut 6 ms pour le jet de solvant et 4 ms pour le jet à 5 ppm de POE.

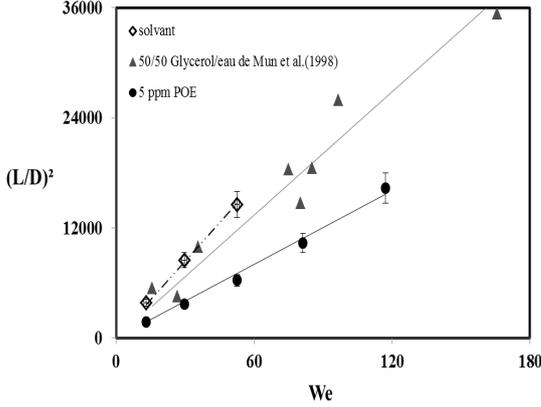


Figure 4. Longueur de rupture en fonction de We pour la solution de solvant et la solution de POE à 5 ppm. Comparaison avec les résultats de Mun *et al.* [7].

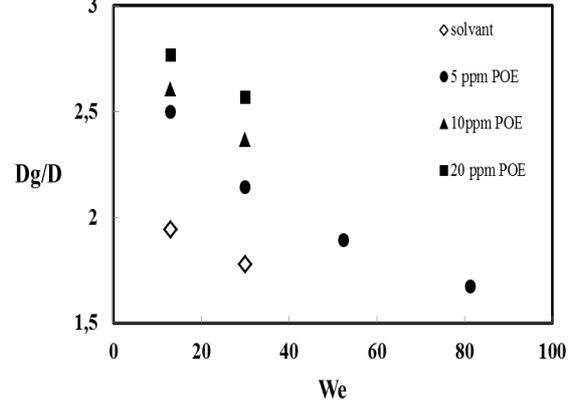


Figure 5. Diamètre équivalent moyen des gouttes, D_g , par rapport au diamètre de l'orifice, D , en fonction du nombre de Weber, pour la solution de solvant et les solutions de polymère.

De l'hypothèse simplifiée que l'accroissement des perturbations sur le jet est de la forme $A(t) = A_0 e^{\alpha t}$, où la perturbation dominante à une amplitude initiale égale à A_0 et un taux de croissance α , la valeur du taux de croissance des perturbations du mode le plus rapide peut être estimée des données de la figure 4, à partir de la relation [7]

$$\frac{L}{D} = \ln \left(\frac{R_j}{A_0} \right) We^{0,5} [1 + 30h],$$

où R_j représente le rayon initial du jet. Ainsi $\ln \left(\frac{R_j}{A_0} \right) = 15,5$ pour notre système. Mun *et al* ont trouvé une valeur de 13,1. Le taux des perturbations dépend fortement de la géométrie du capillaire, du diamètre du jet, des propriétés physiques du fluide et des propriétés du milieu environnant dans lequel débouche le jet.

La figure 5 montre l'effet de la viscoélasticité et de l'inertie sur la taille moyenne des gouttes. Dans le cas newtonien, le diamètre équivalent moyen des gouttes de solvant est approximativement le double du diamètre initial du jet. En outre le diamètre équivalent moyen diminue avec l'augmentation de la vitesse d'injection. Nos résultats sont en accord avec la théorie de Rayleigh et la théorie de Weber [13]. Le diamètre équivalent moyen des gouttes viscoélastiques est supérieur au diamètre newtonien. La taille des gouttes augmente avec l'augmentation de la concentration en polymère. Dans le cas de la solution à 20 ppm, on observe une forte diminution des gouttes satellites. Celles-ci sont majoritairement absorbées sur le filament, avant la rupture, par les gouttes primaires plus grosses.

4 Conclusion

Nous avons observé la dynamique et les mécanismes de rupture des jets de solutions diluées de polyoxyéthylène (5 ppm, 10 ppm et 20 ppm). Nos expériences montrent que la présence de polymère même en quantité minimale change substantiellement la dynamique de rupture du jet. En effet, même à une concentration de 5 ppm de polyoxyéthylène (POE), nous observons la formation d'un filament mince à

la rupture. Le forçage ne suffit pas à rompre le jet, ni à produire des gouttes monodisperses comme dans le cas newtonien (solution de solvant). Ces résultats suggèrent que les effets de relaxation élastique et les effets associés de la viscosité élongationnelle sont prépondérants même à faible concentration. Néanmoins leur implication dans le processus de désintégration du jet viscoélastique reste à élucider. La longueur de rupture moyenne de la solution à 5 ppm est inférieure à la longueur de rupture moyenne du solvant. A notre connaissance, ce comportement n'a jamais été reporté auparavant pour une solution de POE à grand poids moléculaire. La taille moyenne des gouttes croît avec l'augmentation de la concentration en polymère.

Références

1. V. BERGERON, D. BONN, J. Y. MARTIN, & L. VOVELLE, Controlling droplets deposition with polymer additive, *Nature*, **405**, (2000)
2. K. K. CHAO, C.A. CHILD, A. E. GRENS II & M .C. WILLIAMS, Antimisting Action of Polymeric Additives in jet Fuels, *AIChE Journal*, **30** (1), 111-120, (1984)
3. Y. SON & C. KIM, Spreading of inkjet droplet of non-Newtonian fluid on solid surface with controlled contact angle at low Weber and Reynolds numbers, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, **162**, 78-87 (2009)
4. R. P. MUN, B. W. YOUNG & D. V. BOGER , Atomisation of dilute polymer solutions in agricultural spray nozzles, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, **83**, 163-178 (1999)
5. Y. M. CHRISTANTI & L. WALKER, Effect of Fluid Relaxation Time on Jet Breakup due to a Forced Disturbance of Polymer Solutions, *Journal of Rheology*, **46** (3), 733-748 (2002)
6. C. CLASEN, J. EGGERS, M. A. FONTELOS , J. LI & G. H. MCKINLEY, The beads-on-string structure of viscoelastic threads, *Journal of Fluid Mechanics*, **556** (2006)
7. R. P. MUN, J. A. BYARS & D. V. BOGER, The effects of polymer concentration and molecular weight on the breakup of laminar capillary jets, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, **74**, 285-297 (1998)
8. J. LI & A. M. FONTELOS, Drop dynamics on the beads-on-string structure for viscoelastic jets : A numerical study, *Physics of Fluids*, **15**, 922-937 (2003)
9. L. ZHIAHAO & L. ZHENGBAI, Instability of a viscoelastic liquid jet with axisymmetric and asymmetric disturbances, *International Journal of Multiphase Flow*, **34**, 42-60 (2008)
10. R. SATTLER, C. WAGNER & J. EGGERS, Blistering Pattern and Formation of Nanofibers in Capillary Thinning of Polymer Solutions, *Physical Review Letters*, **100**, 164502 (2008)
11. A. ZELL, S.GIER, S. RAFAÏ & C.WAGNER, Is there a relation between the relaxation time measured in CaBER experiments and the first normal stress coefficient ?, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, **165**, 1265-1274 (2010)
12. S. RAMANUJAN, Modular Equations and Approximations to π , *The Quarterly Journal of Pure and Applied Mathematics*, **45**, 350-372 (1913-1914)
13. J. EGGERS & E. VILLERMAUX, Physics of liquid jets, *Reports on Progress in Physics*, **71**, 036601, (2008)