

Une nouvelle morphologie : fractures paraboliques induites par séchage

L. Pauchard*, C. Allain*, M. Adda-Bedia**, Y. Couder**

* *FAST, bt. 502 Campus Universitaire d'Orsay*, ** *LPS-ENS Paris*
pauchard@fast.u-psud.fr

Abstract

Au cours du séchage, certains milieux comme les boues, les vernis, les peintures, subissent d'importantes contraintes de rétraction induites par la perte du solvant, contraintes qui peuvent conduire à l'apparition de fractures. La diversité des figures formées est aussi bien fonction de paramètres liés à la géométrie du système qu'aux caractéristiques physico-chimiques du matériau. Habituellement lors du séchage d'un milieu ayant un gradient d'épaisseur les fractures croissent de manière directionnelle en formant un réseau de fractures parallèles et périodiques - avec une période qui dépend de l'épaisseur locale du gel. Nous utilisons ici une suspension colloïdale de particules de nanolatex qui, en séchant, conduit à la formation d'un gel dans lequel nous observons des fractures se propageant avec une dynamique rapide, en décrivant des arcs de paraboles. Pour comprendre l'existence de cette nouvelle forme de croissance nous présentons une caractérisation de la dynamique de formation de ces fractures.

1 Introduction

Nous étudions les fractures formées lors du séchage d'une suspension colloïdale aqueuse fortement concentrée en nanolatex (particules de latex rigide de 20 nanomètres de diamètre). Une petite quantité de suspension est déposée puis étalée sur une lame de microscope en verre à l'aide d'une pipette de façon à former un film présentant un ménisque d'angle très faible. Dans les conditions expérimentales utilisées (absence de flux d'air) l'évaporation est limitée par la diffusion de l'eau dans l'air. La ligne de raccordement substrat-suspension colloïdale-air, appelée ligne triple, est fortement ancrée sur la lame de verre, aussi la base du film reste constante au cours du séchage. Les conditions aux limites étant imposées, la perte du solvant entraîne l'accumulation des particules et des ions présents dans la suspension colloïdale. Lorsque la fraction volumique des particules atteint une certaine valeur seuil fixée par les conditions physico-chimiques la suspension initialement stable gélifie. Ceci se produira d'autant plus rapidement que l'épaisseur du film est faible, aussi un front de séchage délimitant la suspension liquide du gel se propage parallèlement à la ligne triple conduisant à l'augmentation de l'étendue de la zone gélifiée.

Le gel formé est une matrice poreuse, solide, remplie de solvant, dont les pores ont une taille en ordre de grandeur égale à la dimension des particules. Au cours de l'évaporation apparaissent des contraintes de rétraction importantes, contraintes d'autant plus grandes que la taille des pores est faible. De plus l'adhésion du gel sur la lame de verre empêche celui-ci de se contracter librement. Il en résulte des contraintes qui augmentent de plus en plus au cours du temps, jusqu'à atteindre une valeur suffisante pour engendrer des fractures qui se forment au départ sur des centres de nucléation (défauts). Ultérieurement ces fractures se propagent au fur et à mesure du séchage.

Dans la géométrie considérée ici il existe un faible gradient d'épaisseur qui conduit à la formation progressive de fractures de différentes morphologies. Des études antérieures

ont montré qu'en dessous d'une épaisseur critique le film gélifié ne se fracture pas [1]. Au-dessus de cette épaisseur critique (qui est inférieure à $10\mu\text{m}$ ici) les premières fractures forment des segments isolés soit linéaires, soit en étoile à trois branches formées, dans les deux cas, autour d'un centre de nucléation [2]. Loin de la ligne triple, i.e. pour des épaisseurs de l'ordre de $50\mu\text{m}$, nous observons un réseau de fractures parallèles dont la périodicité dépend de l'épaisseur locale de la couche [3]. Ces fractures se propagent perpendiculairement au front de séchage au fur et à mesure que ce dernier progresse. En effet, à un instant donné une bande étroite de gel se forme perpendiculairement au front de séchage qui l'a créée. Dans cette région, la contrainte transverse est plus importante que la contrainte longitudinale $\sigma_{yy} > \sigma_{xx}$ (y étant l'axe parallèle à la ligne du front de séchage) conduisant à l'ouverture des fractures selon la direction du gradient d'épaisseur. Cet argument ne reflète cependant pas ce que nous observons sur la photo de la figure 1 montrant un réseau de fractures en arches plus ou moins courbées. Nous nous sommes intéressés aux propriétés des fractures dans cette région et en particulier leur changement de direction.

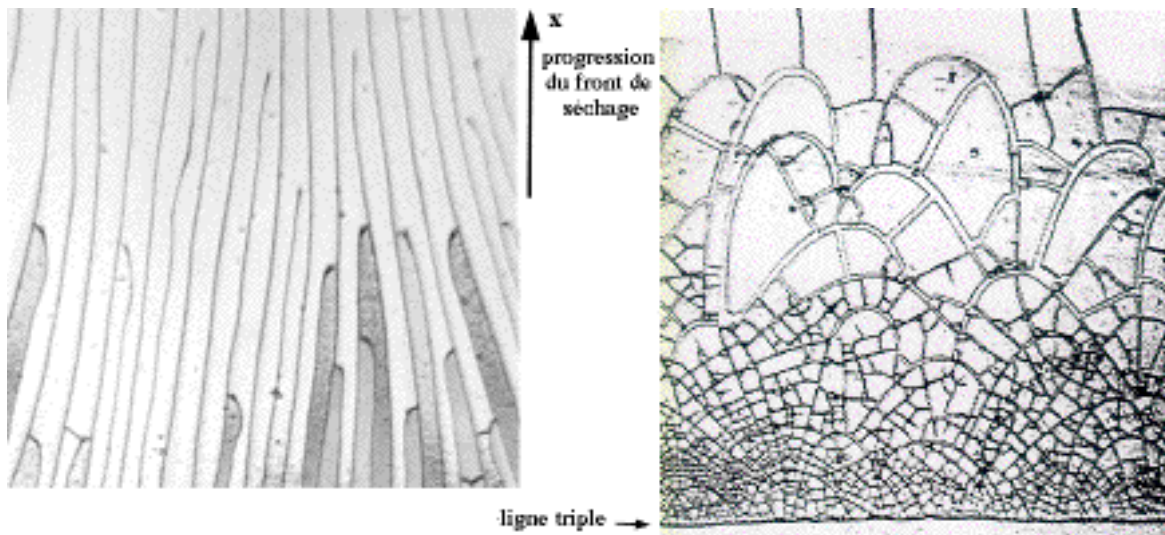


Figure 1: Images video de zones gélifiées, envahies progressivement par des fractures. L'épaisseur des couches croît légèrement suivant l'axe x qui correspond à la direction moyenne de progression des fronts de séchage. A gauche (gel colloïdal de particules de Latex de $0.1\mu\text{m}$ de diamètre) : figure habituellement observée en croissance directionnelle. A droite (gel colloïdal de particules de Nanolatex de 20nm de diamètre) : les fractures présentent des formes d'arches. Dans les deux cas la distance caractéristique entre les fractures augmente avec l'épaisseur locale de la couche. Pour garder ce compromis entre distance interfractures et épaisseur locale du gel, le système se réarrange au cours du temps : les fractures se raccordent à angle droit dans la figure de gauche ; des fractures secondaires se forment à l'intérieur des fractures en arc dans la figure de droite.

2 Caractérisation des formes de fractures observées

L'observation de l'envahissement de la région gélifiée par les fractures montre que l'initiation d'une d'entre elles s'effectue à partir d'une fracture antérieurement formée. La direction initiale de propagation de la nouvelle fracture est alors perpendiculaire à

la tangente à la fracture préexistente au point de nucléation (figure 2-a). La figure 2-b présente une statistique sur les angles α compris entre la direction initiale de propagation et l'axe x pour différentes fractures. Les mesures de cet angle nous montrent que la majorité des fractures démarre avec un angle α inférieur à 15 degrés : les fractures nucléent pour la plus grande partie proche des sommets des arches antérieurement formées. Elles se propagent alors dans la région gélifiée en s'approchant du front de séchage puis s'incurvent et s'éloignent ensuite de ce dernier. Finalement elles s'arrêtent en se raccordant perpendiculairement à une fracture déjà formée de manière à relaxer les contraintes tangentielles de cette dernière. Le rayon de courbure d'une fracture donnée dépend fortement de l'angle α .

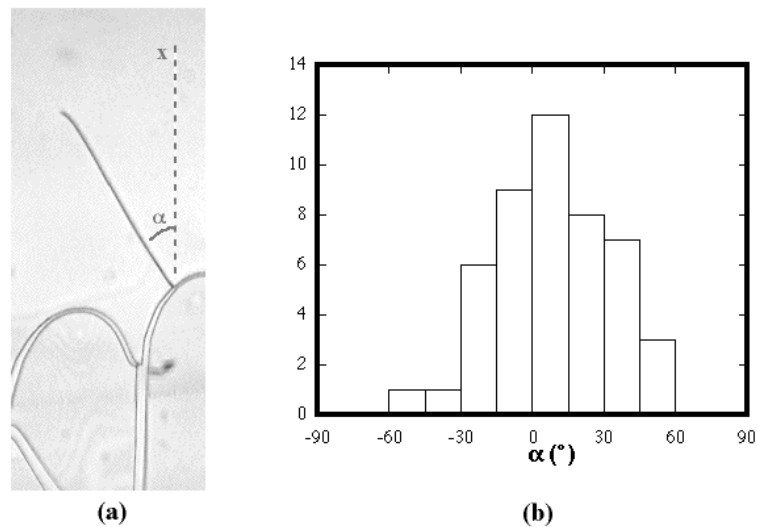


Figure 2: (a) Photo montrant l'initiation d'une fracture à partir d'une fracture pré-existante. La nouvelle fracture se propage avec une direction initiale faisant un angle α avec la direction moyenne de progression du front de séchage (axe x). (b) Statistique sur les angles de démarrage des fractures par rapport à l'axe x (Les angles sont comptés positivement dans le sens trigonométrique).

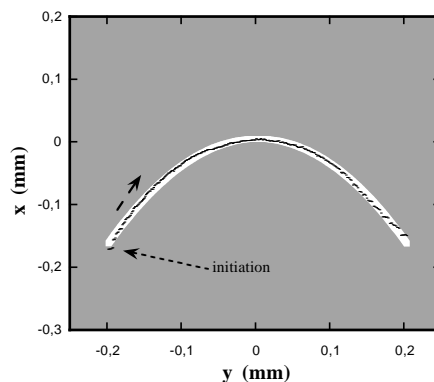


Figure 3: Forme d'une fracture se propageant initialement selon la flèche en pointillés. Les points expérimentaux sont très bien décrits par une parabole (polynôme de degré 2 - courbe blanche).

La forme d'une fracture a été mesurée sur la figure 3. Les points expérimentaux s'ajustent bien avec un arc de parabole (polynôme de degré 2). La formation d'une telle fracture crée un îlot adhérent au substrat et indépendant du reste du gel. Cet îlot se fracture à son tour pour relaxer les contraintes résiduelles ce qui conduit à la formation de fractures secondaires à l'intérieur des fractures paraboliques (voir figure 1). D'autre part nous avons mesuré les rayons de courbures de différentes fractures. La valeur du rayon de courbure s'est avérée indépendante de la position de la fracture dans le gel, i.e. de l'épaisseur locale du gel.

3 Dynamique de formation des fractures

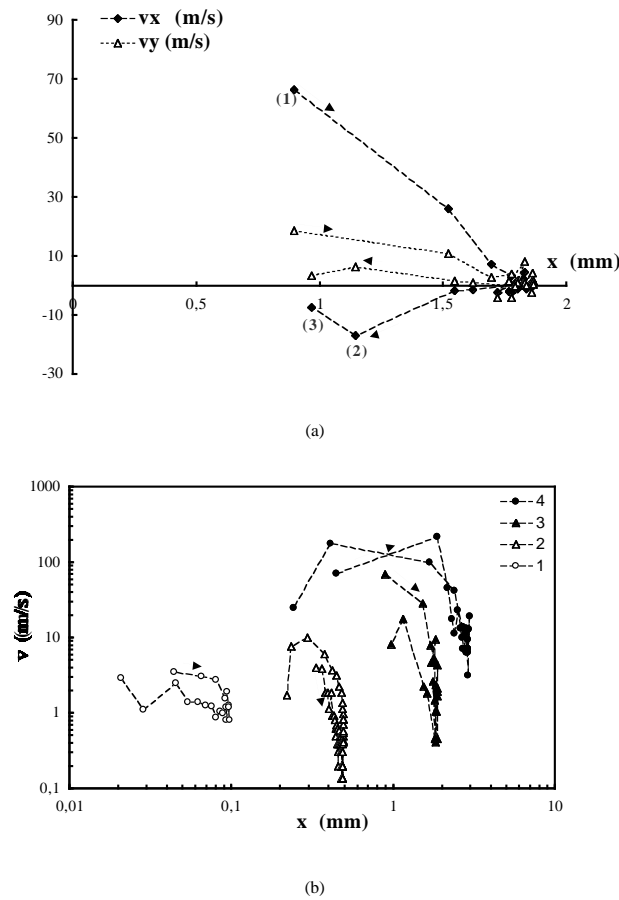


Figure 4: Vitesses de fractures en arc de parabole mesurées à l'aide d'une caméra rapide. (a) : Vitesse de propagation d'une fracture en coordonnées cartésiennes (v_x , v_y) en fonction de la distance à la ligne triple. L'initiation de la fracture correspond au point (1) son évolution dans le temps est représentée par les flèches et son arrêt s'effectue au point (3). Le ralentissement observé en (2) correspond au raccordement à $\pi/2$ avec une fracture précédemment formée. (b) Norme de la vitesse mesurée pour différentes fractures en fonction de la distance à la ligne triple en échelle log-log. La fracture n est apparue après la fracture $n-1$, au cours de la progression du front de séchage suivant x . Angle α (en degrés) entre la direction initiale prise par la fracture et l'axe x est : fracture 1 : $\alpha=27$; fracture 2 : $\alpha=8$; fracture 3 : $\alpha=15$; fracture 4 : $\alpha=38$.

Analysons maintenant plus précisément la dynamique de formation d'une fracture en arc de parabole. Les composantes de la vitesse d'une fracture en coordonnées cartésiennes sont représentées sur la figure 4. La vitesse v_x diminue considérablement lorsque la fracture s'approche du front de séchage, atteint une valeur très faible au voisinage du point de courbure maximale (apex de la parabole) puis augmente lors du retour vers la région la plus sèche. Les valeurs mesurées soulignent le caractère rapide de la propagation des fractures par rapport à la vitesse de progression du front de séchage qui est évaluée à 10^{-2} mm/s dans les conditions expérimentales considérées (hygrométrie du milieu environnant = 50%) ; on peut noter que la vitesse des ondes de Rayleigh dans le gel est estimée à 100 m/s. De plus l'anisotropie du champ de vitesse dans lequel se propage la fracture et reflète l'anisotropie du champ de contrainte liée à la formation même du gel. Compte tenu de la géométrie considérée ici, le facteur d'intensité des contraintes K_I , régissant l'ouverture de la fracture, dépend fortement de la distance au front de séchage. En effet, à un instant donné sa valeur est plus faible dans une zone du gel proche du front de séchage que loin de celui-ci où la consolidation du gel a eu le temps de débiter. La mesure de K_I au cours du temps pour un gel colloïdal a montré une augmentation rapide [4]. La décroissance de K_I avec x provoque un ralentissement de la fracture au cours de sa propagation vers le front de séchage.

4 Discussion

Intéressons nous à l'ensemble des fractures envahissant le gel au cours du temps. Au cours de la progression du front de séchage des générations successives de fractures se forment. Il est ainsi possible de définir un front de fracture comme une ligne reliant les sommets des arcs de parabole : les observations ont montré que cette ligne peut être définie avec une assez bonne approximation (cf. incertitudes sur les points expérimentaux de la figure 5). Ce front de fracture progresse de façon discontinue au cours du temps, c'est-à-dire au cours de l'avancée du front de séchage, comme le montre la figure 5. Cette discontinuité est décrite par les droites verticales en pointillés sur le graphe qui s'interprètent de la façon suivante : une génération de fractures en arches envahit le gel sur une grande distance pendant que le front de séchage progresse sur une petite distance.

Il s'écoule ensuite une durée pendant laquelle les contraintes de rétraction augmentent dans la région gélifiée entre le front de fracture et le front de séchage (cette région s'étend par progression du front de séchage). Lorsque les contraintes sont suffisamment importantes une nouvelle génération de fractures se forme et ainsi de suite tel un phénomène cyclique. Compte tenu de l'existence d'un faible gradient d'épaisseur dans la couche, le séchage d'une bande de gel est d'autant plus long qu'elle se trouve loin de la ligne triple. Après la formation d'une génération de fractures, la suivante prendra place lorsque la contrainte de rétraction dans la nouvelle bande de gel atteindra une valeur critique. Par conséquent, la durée nécessaire à l'obtention de cette contrainte critique est d'autant plus grande que l'on s'éloigne de la ligne triple. Ainsi la largeur de la nouvelle bande de gel fracturée sera plus grande. Cet argument se traduit sur le graphe de la figure 5 par le fait que la distance entre deux fronts de fractures consécutifs croît au cours du temps. Le processus ainsi décrit met en évidence un retard à la nucléation de fractures : le seuil de nucléation est grand devant le seuil de propagation ce qui suggère le caractère sous-critique du processus.

A partir d'un certain nombre de générations de fractures une figure différente apparaît. Les fractures initiées sur des fractures en arcs se dirigent vers le front de séchage

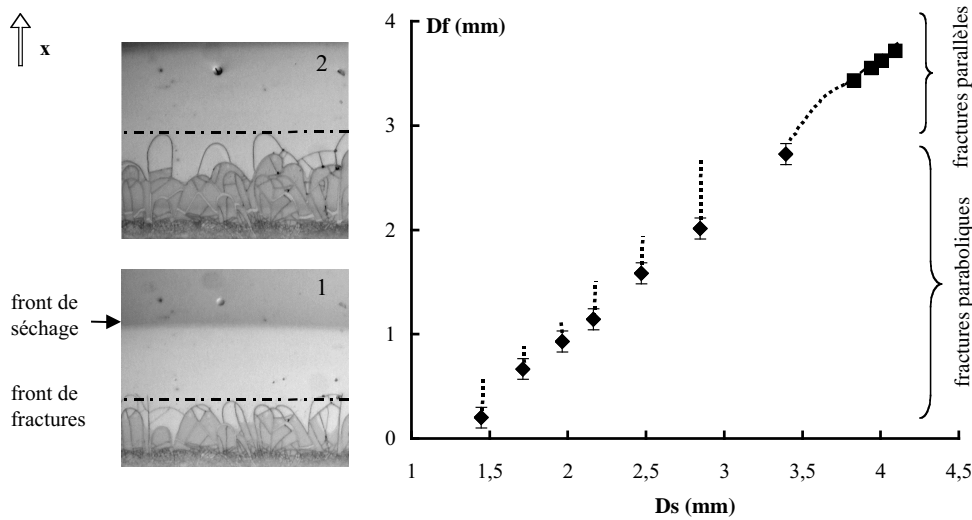


Figure 5: Les photos 1 et 2 ont été prises lors de l’envahissement du gel par les fractures. Entre l’image 1 et l’image 2 le front de séchage et le front de fractures se sont déplacés : une génération de fractures a été formée. Le graphe décrit l’évolution du front de fractures D_f en fonction de celle du front de séchage D_s , les distances D_f et D_s ayant pour origine la ligne triple. Les lignes en pointillés verticales correspondent à la propagation du front de fractures, propagation rapide comparé à la progression du front de séchage.

puis ralentissent sans se courber en s’arrêtent proche de ce dernier (courbe en pointillés de la figure 5). Il se forme alors un réseau de fractures parallèles, régulièrement espacées, se propage de façon quasistatique, perpendiculairement au front de séchage. Nous retrouvons alors la figure de fractures habituellement observée en croissance directionnelle. La transition fractures paraboliques - fractures parallèles restent inconnues pour le moment. L’hypothèse d’un changement du gradient d’épaisseur pourrait expliquer une dynamique de propagation des fractures différente et ainsi des figures radicalement différentes.

References

- [1] A. Atkinson, R.M. Guppy, *Journal of Materials Science*, **Vol. 26**, 3869 (1991),
- [2] A. Groisman et E. Kaplan, *Europhys. Lett.* **25**, pp. 415-420 (1994),
- [3] C. Allain et L. Limat, *Phys. Rev. Lett.* **74**, PP. 2981-2984 (1995),
- [4] J. Zarzycki, *Journal of Non-Crystalline Solids* **100**, pp. 359-363 (1988).