

Instabiliteiten en turbulentie in stroming van polymeren

Prof. Dr. Ir. W. van Saarloos
Hoogleraar Universiteit Leiden

Inleiding: spontane patroonvorming

Hoe ontstaan de ribbels op het strand ten gevolge van de getijdenbeweging, de intrigerende vormen van sneeuwvlokken of andere kristallen tijdens groei, de spontane structuren in dunne lagen tijdens verdamping van een oplosmiddel, of de spiralen, strepen en stipelstructuren in sommige chemische reacties of op de huiden van dieren? Simpele vragen als deze komen in veel verschillende vakgebieden op, en veel van deze vragen zijn uiteraard niet nieuw. Maar er wordt vooral juist de laatste jaren sterke vooruitgang geboekt bij de beantwoording ervan. Dit komt doordat een drietal ontwikkelingen elkaar versterken: 1) de enorme toename in rekenkracht waardoor numerieke simulaties mogelijk zijn; 2) de ontwikkeling van nieuwe experimentele technieken en van massale dataopslag en verwerking waardoor de waargenomen fenomenen in detail en kwantitatief geanalyseerd kunnen worden; 3) de ontwikkelingen van moderne niet-lineaire technieken in de wiskunde en vakken als de theoretische natuurkunde.

In de natuurkunde is de bestudering van spontane patroonvorming in niet-evenwichtssystemen vooral de laatste twee decennia als een duidelijk te onderscheiden subgebied opgekomen. Met spontane patroonvorming wordt bedoeld dat er uit zichzelf geordende of ongeordende patronen ontstaan op mesoscopische of macroscopische schaal, zonder dat er door de omgeving of de experimentator een modulatie geïnduceerd wordt. Vaak spreekt men dan ook van *zelf-organisatie*. Lang niet altijd zijn de door zelf-organisatie gevormde structuren louter een curiositeit – soms hebben ze nuttige toepassingen, en in andere gevallen zijn ze juist een sta-in-de-weg bij een experiment of een industrieel proces. De spontane vorming van ribbels bij polymeer extrusie die we hieronder bespreken, is een voorbeeld van het laatste.

Lineaire and niet-lineaire instabiliteiten

Veel van de spontaan gevormde patronen die de laatste decennia experimenteel of theoretisch bestudeerd zijn, ontstaan ten gevolge van een *lineaire instabiliteit* in het systeem. Dit betekent dat als we de drijvende kracht (temperatuur, compositie, stroomsnelheid) op een homogeen systeem variëren, bij een bepaalde parameterwaarde een modulatiegolf met schikt gekozen golflengte niet meer uitdempt in de tijd maar begint te versterken. De eindigegolflengteinstabiliteit die dan plaatsvindt geeft aanleiding tot patroonvorming, en de typische schaal van de patronen die dan ontstaan is dan vrijwel altijd van de orde van grootte van de golflengte van de modulatiegolf die het meest instabiel is.

De reden dat een dergelijk scenario voor diverse interessante problemen in detail uitgewerkt is, is dat het zich leent voor een gedetailleerde wiskundige analyse. De benodigde stabiliteitsanalyse is namelijk een lineaire analyse: men start met het homogene systeem zonder modulaties, en bestudeert vervolgens de stabiliteit van willekeurig kleine verstoringen. Dit leidt tot lineaire vergelijkingen voor de

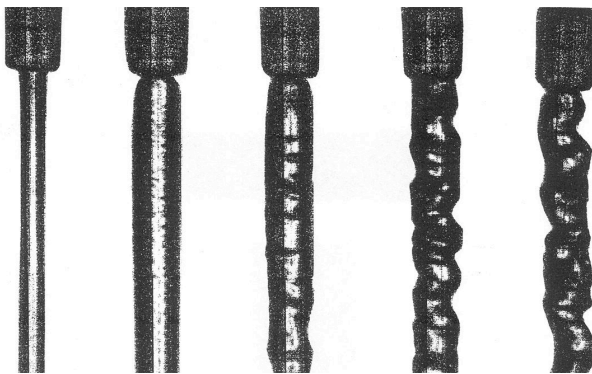
stabiliteitsmodes, waarbij de vergelijkingen voor verstoringen van verschillende golflengte bovendien ontkoppeld zijn. Eén van de belangrijke ontwikkelingen van de afgelopen twee decennia is bovendien dat vlak boven het punt waar zo'n instabiliteit optreedt, er zwak niet-lineaire analyse gedaan kan worden, die leidt tot vrij algemeen toepasbare *amplitude vergelijkingen* die de vorming, competitie en dynamica van de patronen in de buurt van het instabiliteitspunt beschrijft.

Een veel moeilijker te analyseren klasse van problemen zijn die waarbij er géén lineaire instabiliteit is, maar een niet-lineaire instabiliteit: een verstoring van de basistoestand met een modulatiegolf van kleine amplitude dempt uit, maar groeit als de amplitude groot genoeg is. Er zijn op dit moment in feite geen algemene toepasbare theoretische methodes om dit soort niet-lineaire instabiliteiten te beschrijven.

Visco-elastische instabiliteiten in polymeerstroming

De motivatie van ons werk aan polymeerstroming is in feite een welbekend verschijnsel uit de plasticindustrie, de zogenaamde smeltbreuk. Figuur 1 illustreert dit verschijnsel: als een polymeeroplossing of een polymeersmelt uit een pijp stroomt, dan ontstaan er op een gegeven moment spontaan kronkelingen als de stroming te hard gaat. In Figuur 1 begint dit op te treden bij de middelste foto. Naarmate de stroomsnelheid groter wordt, worden de kronkelingen sterker en sterker en op een gegeven moment kunnen ze zo sterk worden dat de uitgestroomde straal breekt. Daarom spreekt men van *smeltbreuk*.

Vanwege het industrieel belang van dit probleem is er veel werk aan geweest om dit verschijnsel te begrijpen. Het is duidelijk dat in sommige gevallen de oorsprong van dit

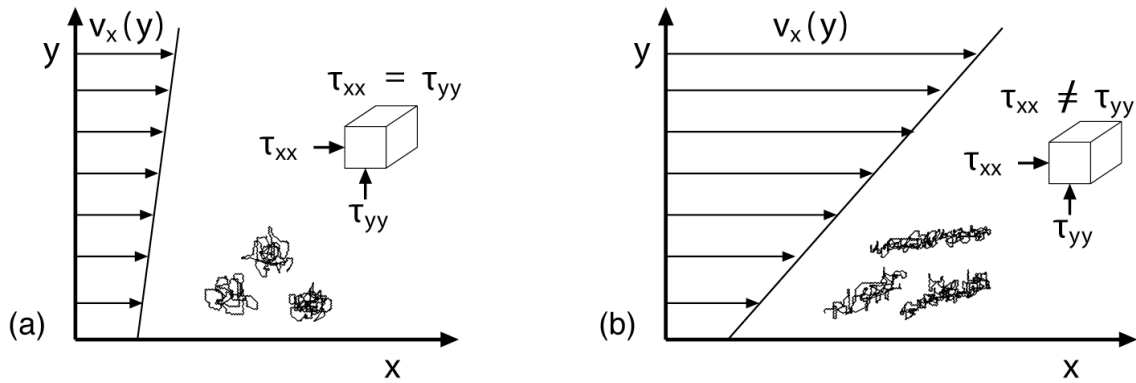


Figuur 1: Vijf opnames van polymeestroming uit een buis. De stroomsnelheid neemt toe van links naar rechts. Boven een bepaalde waarde, ongeveer die van de middelste foto, ontstaan spontaan kronkelingen.

soort fenomenen gezocht moet worden in heel specifieke omstandigheden, bijvoorbeeld de precieze vorm van de uitstroomopening, of *stick-slip* verschijnselen in de buis. Uit de empirische observatie dat dit gedrag voor heel verschillende materialen eigenlijk altijd plaatsvindt rond een welgedefinieerde waarde van het zogenaamde Weissenberg getal (een dimensieloos getal) hebben wij in onze groep geconcludeerd dat er in veel gevallen een meer algemene instabiliteit aan dit gedrag ten grondslag moet liggen, een *niet-lineaire* viscoelastische stromingsinstabiliteit.

Viscoelasticiteit

Gewone vloeistoffen als water en alcohol die in de vloeistofdynamica worden bestudeerd, vertonen normaliter instabiliteiten als het Reynolds getal hoog wordt. Het Reynolds getal is de verhouding van de inertiaalkrachten ten gevolge van de versnelling en de visceuze



Figuur 2: Illustratie van het feit dat als de afschuiving (“shear”) in een polymeerstroming sterk genoeg is, de polymeren worden opgerekt en gemiddeld genomen een oriëntatie krijgen. (a) Bij kleine afschuiving ($Wi \leq 1$) vormen de polymeren ruwweg een bolvormige kluwen en zijn de eigenschappen van de vloeistof in essentie isotroop. (b) Bij sterke afschuiving ($Wi \geq 1$) worden de polymeren uitgerekt en georiënteerd. De normaalcomponenten van de spanning op het vloeistofelementje zijn niet meer aan elkaar gelijk.

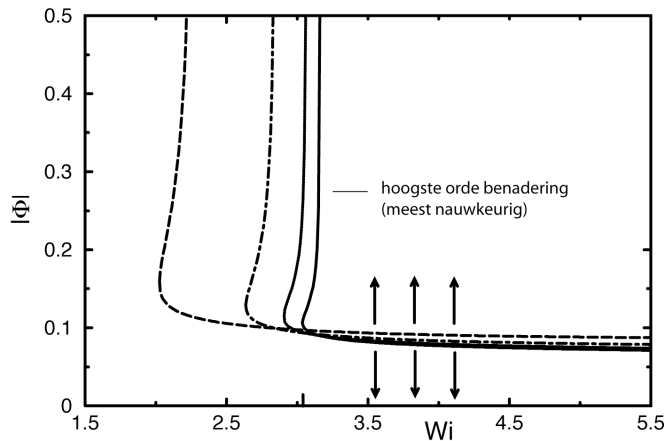
krachten. Het gebruikelijke geval voor polymeeroplossingen en polymeervloeistoffen is dat de viscositeit zo hoog is, dat de het Reynolds getal klein is – als er stromingsinstabiliteiten optreden moeten die dus een andere oorsprong hebben dan de gebruikelijke stromingsinstabiliteiten in vloeistoffen als water.

Het belangrijkste effect van stroming op een polymeer in een vloeistof is geïllustreerd in Figuur 2: als de snelheidsgradient (de “shear rate” of afschuiving) klein is, vormen de polymeren min of meer bolvormige kluwentjes. Naarmate de afschuiving (“shear rate”) toeneemt wordt het polymeer meer en meer uitgerekt, doordat stukjes van het polymeer aan de bovenkant sneller naar rechts worden meegetrokken dan stukken aan de onderkant. Het bovengenoemde Weissenberg getal is een maat voor dit effect – de situatie van Figuur 2a is ruwweg het regime $Wi \leq 1$, en die van Figuur 2b die van $Wi \geq 1$. Omdat de polymeren in het laatste regime uitgerekt en georiënteerd zijn, is de vloeistof elastisch en anisotroop. En omdat de aanpassing van de de polymeerkluwens aan de krachten in de vloeistof langzaam is, heeft de vloeistof bovendien een interne relaxatietijd. Dit is de essentie van een viscoelastische polymeervloeistof.

Lineaire en niet-lineaire instabiliteit

Het is al lang bekend dat zelfs als het Reynolds getal klein is, viscoelastische polymeervloeistoffen instabiliteiten kunnen vertonen voor $Wi \geq 1$ als de stroomlijnen gekromd zijn (bijvoorbeeld bij stroming rond een opening, in een gekromde buis, of bij stroming tussen twee draaiende cilindres). Dit is een gevolg van het feit dat door de oprekking en oriëntatie van de polymeren de anisotrope krachten een vloeistofelementje naar binnen trekken, in de richting waar de kromming en de afschuiving het sterkste is. Maar voor stroming in een rechte buis of tussen twee parallelle platen, was in de jaren 70 van de vorige eeuw al aangetoond dat de stroming *lineair stabiel* is, in overeenstemming met het feit dat dergelijke instabiliteiten alleen optreden als de stroomlijnen gekromd zijn.

Impliciet hebben veel onderzoekers daarom aangenomen dat dergelijke stromingspatronen niet alleen *linear* stabiel zouden zijn, maar zelfs ook *niet-linear* stabiel. De essentie van het recente werk in onze groep is in feite gebaseerd op het simpele idee dat dit niet waar *kan* zijn. Immers, als we een verstoring van de stroming aanbrengen van voldoende grote amplitude, dan zijn de stroomlijnen gekromd, en moet volgens de geaccepteerde inzichten die stroming wel instabiel zijn. Met andere woorden, dergelijke stroming moet *linear* stabiel maar *niet-linear* instabiel zijn.



Figuur 3: Resultaat van onze voorspelling voor de niet-lineaire instabiliteit in Couette stroming tussen twee vlakke platen die in tegenovergestelde richting bewegen. De amplitude $|\phi|$ is de relatieve verandering van de afschuiving op de wand. De verticale pijlen geven aan dat er voor $Wi \geq 3$ een kritische grens is, waarboven de stroming (niet-linear) instabiel is. De verschillende lijnen corresponderen met verschillende ordes in een benadering. Het feit dat de verschillen tussen de lijnen kleiner worden naar rechts toe is een teken dat de expansie convergeert.

Met een niet-lineaire expansiemethode (een uitbreiding van de eerder-genoemde amplitude expansies) hebben we een kwantitieve voorspelling gegeven van deze niet-lineaire instabiliteit. Een voorbeeld van onze resultaten staat weergegeven in Figuur 3. De lijnen in deze figuur geven de amplitude van de verstoring aan die niet groeit of vervalst volgens onze analyse. Zoals de pijlen aangeven zijn daarmee de waarden op de onderste tak de kritische waarden van de verstoring: als de amplitude groter is dan deze waarden (corresponderend met een verandering van de afschuiving aan de wand van ongeveer 8%) dan wordt de stroming instabiel.

Implicaties en slotopmerkingen

De hierboven geschetste ontwikkelingen zijn in veel opzichten maar een eerste stap, maar ze plaatsen de viscoelastische instabiliteiten nu al in een nieuw licht:

- Recente simulaties van een groep in de VS van een basisvergelijking voor viscoelastische stroming bevestigen onze voorspellingen van een niet-lineaire instabiliteit. De gevonden waarde van de kritische amplitude waarboven het systeem instabiel wordt, komt goed overeen met de door ons voorspelde waarde
- In de rheologie van polymeervloeistoffen worden numerieke methoden geplaagd door instabiliteiten bij hoge Weissenberg getallen (het zogenaamde “High Weissenberg Number Problem”). Onze resultaten suggereren dat er in sommige gevallen een fysische instabiliteit ten grondslag ligt aan de numerieke instabiliteiten, of ze op zijn minst verergert.

- Een niet-lineaire (of subcritische) instabiliteit impliceert hysteresegedrag in experimenten, en de mogelijkheid dat het erg afhangt van de stromingsgeometrie waar de instabiliteit in de praktijk zal optreden.
- Simpele experimenten zijn ruwweg consistent met onze voorspelling, maar meer gecontroleerde experimenten, waarin de laminaire stroming in een kanaal verstoord wordt, zijn nodig. Drie verschillende groepen die aan microfluidics werken, bereiden inmiddels dergelijke nauwkeurige testen van onze voorspellingen voor.
- Het scenario dat wij hebben voorgesteld is nauw verwant aan het scenario voor de overgang naar turbulentie bij Poiseuille stroming van een gewone vloeistof – veel collega's uit de vloeistofmechanica zijn dan ook vaak verbaasd dat het door ons voorgestelde scenario in de polymeergemeenschap oorspronkelijk zeer controversieel was. Deze sterke analogie suggereert ook verschillende nieuwe theoretische methodes om het zwak-turbulente gedrag dat Figuur 1 suggereert, te analyseren.
- In veel complexe vloeistoffen treedt *shear-banding* op, de vorming van dunne lagen waarin de afschuiving (*shear*) veel groter is dan daarbuiten. De bestaande modellen en analyses veronderstellen dat parallelle stroomprofielen niet instabiel zijn, in tegenstelling tot wat volgens onze analyse het geval is. Mogelijk is de gebruikelijke interpretatie van sommige experimenten fundamenteel onjuist.

Referenties

1. Een leuk historisch perspectief van het werk aan visco-elastische vloeistoffen is te vinden in R. I. Tanner en K. Walters, *Rheology: a historical perspective* (Elsevier, Amsterdam, 1998)
2. Op mijn webpagina <http://www.lorentz.leidenuniv.nl/~saarloos/Patternf/> staan introducties voor geïnteresseerde buitenstaanders van een aantal voorbeelden van niet-evenwichtspatroonvorming waaraan in mijn groep gewerkt is, inclusief het werk aan viscoelastische stroming.