



HAL
open science

Mécanismes d'imprégnation en milieux fibreux : Modélisation et application à la mise en oeuvre des matériaux composites à fibres longues

Mohamed Amine Ben Abdelwahed

► **To cite this version:**

Mohamed Amine Ben Abdelwahed. Mécanismes d'imprégnation en milieux fibreux : Modélisation et application à la mise en oeuvre des matériaux composites à fibres longues. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Université du Havre, 2011. Français. NNT: . tel-00715952

HAL Id: tel-00715952

<https://theses.hal.science/tel-00715952>

Submitted on 9 Jul 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Thèse

Présentée à l'

Université du Havre

Pour l'obtention du titre de

Docteur en Mécanique

Spécialité : **Matériaux**

Présentée par

Mohamed Amine BEN ABDELWAHED

Ingénieur ENSISA

**MECANISMES D'IMPREGNATION EN MILIEUX FIBREUX :
MODELISATION ET APPLICATION A LA MISE EN ŒUVRE DES
MATERIAUX COMPOSITES A FIBRES LONGUES**

Soutenance prévue le 28 Novembre 2011 devant le jury composé de :

Eric ARQUIS	Professeur, I2M IPB, ENSCBP Bordeaux	Président
José BICO	Maître de Conférences HDR, PMMH, ESPCI Paris	Rapporteur
Christophe BINETRUY	Professeur, GeM, Ecole Centrale de Nantes	Rapporteur
Patrice LAURE	Directeur de Recherche, CEMEF, Paritech Sophia Antipolis	Examineur
Annie COLIN	Professeur, LOF, Rhodia Bordeaux	Examineur
Laurent BIZET	Maître de Conférences, LOMC, Université du Havre	Co-encadrant
Joël BREARD	Professeur, LOMC, Université du Havre	Directeur

Remerciements

Ce travail a été réalisé à l'Université du Havre au sein du Laboratoire Ondes et Milieux Complexes (LOMC), FRE 3102, CNRS et a été financé par la Région Haute Normandie que je tiens à remercier.

Je tiens à exprimer ma gratitude à mon directeur de thèse Joël BREARD, Professeur à l'Université du Havre pour la confiance qu'il m'a accordée durant ces années de thèse. Qu'il reçoive le témoignage de ma reconnaissance pour ses grandes qualités humaines, ses encouragements, ses conseils et ses idées.

Je remercie également Laurent BIZET, Maître de Conférences à l'Université du Havre, pour avoir co-encadré mes travaux, sa disponibilité et ses conseils lors de la rédaction du manuscrit m'ont été d'une grande utilité.

Mes remerciements vont également à Messieurs José BICO, Maître de Conférences HDR à l'Ecole Supérieure de Physique et de Chimie Industrielles de Paris, et Christophe BINETRUY, Professeur à l'Ecole Centrale de Nantes, qui ont accepté de lire et d'examiner mon travail en qualité de rapporteurs. Connaissant leurs travaux, c'est un honneur pour moi que d'être évalué par eux. Je leur en suis extrêmement reconnaissant.

J'adresse mes remerciements à Monsieur Patrice LAURE, Directeur de Recherche CNRS et Professeur à l'Université de Nice Sophia Antipolis, Madame Annie COLIN, Professeur à l'Université de Bordeaux I et Monsieur Eric ARQUIS, Professeur à l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie, de Biologie et de Physique de Bordeaux, pour l'intérêt manifesté vis-à-vis de ce travail en acceptant de participer au jury de thèse.

Je suis profondément reconnaissant envers Yanneck WIELHORSKI, Post-doctorant dans l'équipe Composite, qui, de part son enthousiasme, sa patience, son implication et sa contribution m'ont fait avancer durant ma dernière année de thèse. Un grand merci à Yanneck.

Je remercie les membres de l'équipe Composite Abdelghani SAOUAB, Chung-Hae PARK, Tariq OUAHBI, Sébastien GUERET, Benoît DUCHEMIN, Christopher RE et Sébastien GUEROULT, pour leur soutien.

Je souhaite remercier tous les membres du Laboratoire Ondes et Milieux Complexes (LOMC), et plus particulièrement son directeur Innocent MUTABAZI pour son accueil et son soutien, Carole LE GUEN et Emilie BONTE au secrétariat pour tout le travail administratif, Grégoire VARIN BREANT pour l'assistance informatique, Claude HOUSSIN pour la réalisation des montages expérimentaux et Valérie LE BRIS pour ses encouragements. Mes remerciements vont également à tout le reste des membres du LOMC permanents et doctorants pour les échanges scientifiques et les moments agréables partagés durant les pauses.

Mes pensées vont à tous mes amis et particulièrement à Mehdi, Hédi, Sana et Habiba.

Il reste évidemment ceux qui comptent plus que tout au monde et qui donnent tant de bonheur et de sens à ma vie. Mes parents Ali et Fatma, pour leur sacrifice et leur soutien permanent de tout ce que j'entreprends et sans qui je ne serai là où j'en suis aujourd'hui, ma fiancée Sabrina pour son support et ses sacrifices, mon frère et mon confident Mehdi qui me manque tout le temps, ma sœur Rym et mon beau-frère Walid pour leur soutien, ma petite nièce Salma, ma petite sœur Houda en lui souhaitant la réussite dans ses études, ainsi que toute ma famille : Mahdia, Nejib, Hédi, Ahmed, Si Habib, Youssef, Anis, Omar, Meryem., sans oublier ma belle-famille : Hassan, Anne, Sofiène, Senda et Walid.

Ce mémoire leur est dédié...

Introduction générale

Un matériau composite est un assemblage d'au moins deux matériaux non miscibles ayant une forte capacité d'adhésion. Les deux constituants de base d'un matériau composite sont : le renfort assurant la tenue mécanique de la structure et la matrice qui permet sa cohésion. Le principal avantage des matériaux composites est l'allègement qu'ils procurent aux poids des structures utilisées en industrie aéronautique par exemple. Généralement, le développement des matériaux composites se fait par deux voies principales : les procédés par voie humide dans lesquels le mélange entre le renfort et la matrice est réalisé avant la phase de mise en forme et les procédés par voie sèche dans lesquels le mélange se fait par injection ou infusion au cours de la phase de réalisation et de mise en forme. La première famille de procédés confère aux pré-imprégnés d'excellentes performances mécaniques. D'un autre côté, les procédés d'élaboration par voie sèche procurent de gros avantages économiques. L'objectif principal dans l'industrie des matériaux composites, comme dans toute autre industrie, consiste à allier la qualité du produit aux avantages économiques. Dans cette perspective, la famille des procédés LCM (Liquid Composite Molding) consistant à injecter une résine thermodurcissable ou thermoplastique dans un renfort fibreux, semble être prometteuse. Les procédés LCM les plus répandus sont le RTM (Resin Transfer Molding), le RFI (Liquid Resin Infusion) et le RFI (Resin Film Infusion). Il est apparu que la problématique majeure que peuvent présenter ces procédés est la formation de défauts de type « bulle » lors de l'imprégnation du renfort pouvant par conséquent, affecter les propriétés mécaniques du composite fini.

L'une des causes principales de la formation de bulles s'explique par l'arrangement de l'espace poral en deux types de pores : les macropores correspondant aux espaces entre mèches et les micropores correspondant aux espaces entre fibres. En effet, dans une structure à double échelle de pores telles que les préformes composites, il existe une compétition entre le phénomène d'imprégnation capillaire spontanée (décrite par la loi de Washburn) et le processus d'injection par différence de pression ou par débit imposé dans un moule (décrit par la loi de Darcy). Les deux mécanismes conjoints créent des écoulements lents avec un front partiellement saturé. Ce front est susceptible d'engendrer des bulles. Cette compétition entre les deux régimes d'imprégnation provient d'une compétition entre les circuits d'écoulement plus ou moins privilégiés résultant de l'arrangement des fibres dans le renfort.

La mise en œuvre des matériaux composites doit permettre de présenter un minimum de défauts tout en préservant l'intégrité du renfort et donc de contrôler les commandes d'injection en débit-pression. Pour les procédés Liquid Composite Molding (LCM), le processus d'injection

des résines dans les préformes fibreuses est généralement décrit par le modèle classique de Darcy en négligeant les effets dus aux régimes transitoires. Il s'avère que ce schéma n'est pas suffisant pour décrire tous les mécanismes d'imprégnation notamment lors du remplissage. Au cours des deux dernières décennies, plusieurs études se sont intéressées aux phénomènes transitoires et plus particulièrement aux effets capillaires en essayant de les intégrer dans la loi de Darcy. Cette démarche a partiellement abouti et plusieurs auteurs ont proposé des diagrammes donnant le taux de vides en fonction du nombre capillaire permettant de comparer les effets visqueux aux effets capillaires. Néanmoins en pratique, les phénomènes capillaires restent encore mal compris à l'heure actuelle du fait d'un manque d'observations de l'écoulement aux échelles de la fibre (microscopique) et de la mèche (mésoscopique).

Ce manuscrit de thèse présente un travail utilisant différents dispositifs expérimentaux avec l'objectif d'apporter de nouveaux éléments qualitatifs et quantitatifs sur les mécanismes d'imprégnation dans les milieux fibreux et leurs applications dans le domaine de mise en œuvre des matériaux composites à fibres longues.

Afin de répondre aux différents objectifs de la thèse, une réflexion approfondie sur les expérimentations a été développée. Nous avons adopté une classification multi-échelles pour nos dispositifs expérimentaux : de l'échelle de la fibre (échelle microscopique) à l'échelle des structures fibreuses (échelle macroscopique) en passant par l'échelle des mèches (échelle mésoscopique). Cette approche doit permettre d'établir des lois d'écoulement par transition d'échelles à partir des observations expérimentales : de la loi de Laplace (micro) à la loi de Darcy (macro).

L'introduction de ce manuscrit est donc consacrée à la revue de quelques notions sur les phénomènes aux interfaces. En effet, l'analyse à l'échelle microscopique et le contrôle de la stabilité thermodynamique des interfaces permettent une approche plus systématique des problèmes appliqués.

Le premier chapitre s'intéresse à l'introduction et à la discussion des outils et des méthodes permettant la caractérisation des surfaces des liquides et des solides utilisés tout au long de l'étude expérimentale.

Dans le second chapitre, nous nous intéressons aux aspects dynamiques et aux régimes spontanés et forcés décrivant les mécanismes d'étalement ou d'imprégnation capillaire d'un milieu poreux modèle.

L'imprégnation capillaire dans un pli en fibres de verre unidirectionnelles est abordée, par la suite, dans le troisième chapitre. Dans un premier temps, les micropores et les macropores sont modélisés par des canaux équivalents grâce à des considérations géométriques et à des approches basées sur des analyses par granulométrie linéaire. Ensuite, l'imprégnation capillaire dans le pli est analysée séparément dans les macrocanaux et dans les microcanaux.

L'interconnexion entre les micropores et les macropores est l'une des causes principales de la formation de bulles lors des injections LCM. Le quatrième chapitre est alors consacré à l'étude de formation et de transport de bulles dans un réseau modélisant deux pores convergents.

Dans le cinquième chapitre, les lois d'écoulement dans un réseau modèle composé de deux pores caractéristiques (microscopique et macroscopique) sont discutées en fonction du régime d'écoulement dans chaque canal et en fonction des paramètres géométriques les reliant.

Notations

Lettres grecques

α_L	polarisabilité du liquide
α_S	polarisabilité du solide
γ_L	tension de surface du liquide
γ_{SV}	tension à l'interface solide/vapeur
γ_{SL}	tension à l'interface solide/liquide
γ_{LV}	tension à l'interface liquide/vapeur
γ^d	composante dispersive de la tension de surface
γ^P	composante polaire de la tension de surface
γ_c	tension de surface critique
Γ	longueur de coupure macro/micro.
η	viscosité dynamique du liquide
θ_a	angle de contact à l'avancée
θ_c	angle de contact critique
θ_d	angle de contact dynamique
θ_e	angle de contact à l'équilibre
θ_e^*	angle de contact apparent à l'équilibre
θ_m	angle de contact microscopique
θ_r	angle de contact au retrait
ε	porosité
κ^{-1}	longueur capillaire
λ	distance entre les centres de deux bulles successives
Π_d	énergie de disjonction
ρ	masse volumique du liquide
τ	temps caractéristique

Symboles Latins

A	aire d'une surface
A_{SLV}	constante de Hamaker
b	rayon d'une fibre unitaire
C	constante
d	distance

e	épaisseur d'un film liquide
E_S	énergie de surface
E_S^{London}	énergie d'interaction dipôle induit-dipôle induit
E_S^{Debye}	énergie d'interaction dipôle-dipôle induit
E_S^{Keesom}	énergie d'interaction dipôle-dipôle
E_S^d	composante dispersive de l'énergie de surface
E_S^p	composante polaire (non dispersive) de l'énergie de surface
$E^{Dupré}$	énergie d'adhésion
F_c	force capillaire
F_η	force visqueuse
F_g	force gravitationnelle
g	accélération de la pesanteur
h	hauteur du liquide
h_J	hauteur de Jurin
H	épaisseur du pli
I	énergie d'étalement
k_B	constante de Boltzmann
K	fréquence de déplacement des molécules
l	élément de longueur d'une surface
L	longueur de la bulle
m	masse
m_W	masse de Wilhelmy
n_S	nombre d'atomes à la surface
N_S	résultante de la force linéique de tension de surface
p	périmètre de contact
P_c	pression capillaire
P_{ext}	pression extérieure
P_g	pression hydrostatique
P_i	pression imposée
P^*	pression de transition
$P_{M,m}$	pression de jonction micro/macrovide
P_{int}	pression intérieure
P_L	pression de Laplace
P_η	pression de frictions visqueuses

P_V	pression de vapeur environnante
Q	débit volumique
R	rayon d'une surface sphérique
R_1	rayon de courbure principal 1 d'une surface
R_2	rayon de courbure principal 2 d'une surface
r_b	rayon de la bulle
R_c	rayon capillaire
R_g	rayon d'une goutte de liquide
S	section
t	temps
t_g	temps de croissance d'une bulle
T	température
U_l	vitesse moyenne du liquide
U_b	vitesse moyenne de la bulle
V	volume élémentaire
V_b	volume de la bulle
V_i	potentiel d'interaction
V_l	volume du liquide entre deux bulles
V_M	taux volumique de macrovide
V_m	taux volumique de microvide
W	travail mécanique
w_b	largeur de la bulle dans un conduit rectangulaire
w_c	largeur du canal rectangulaire
W^{vdw}	énergie d'interaction de Van der Waals
x	position horizontale du liquide

Nombres adimensionnels

Bo	nombre de Bond
Ca	nombre capillaire
Ca_1^{TD}	nombre capillaire spécifique
Ca^*	nombre capillaire relatif à la vitesse de la bulle
Fr	nombre de Froude
Ma	nombre de Marangoni

Re	nombre de Reynolds
We	nombre de Weber

Indices

b	bulle
c	capillaire
d	dynamique
e	équilibre
g	gravitationnel
l	liquide
$micro, m$	microscopique
$macro, M$	macroscopique
η	visqueux

Table des matières

Remerciements	3
Introduction générale	7
Notations	13
Table des matières	19
Introduction : phénomènes aux interfaces	25
1) Introduction	27
2) Energie et tension de surface	27
a) Energie de surface	28
b) Tension de surface	28
3) Loi de Laplace	29
4) Pression capillaire	31
5) Principes fondamentaux du mouillage, de mouillabilité et d'adhésion	31
a) Paramètre d'étalement θ et énergie d'adhésion $E_{Dnp\acute{r}e}$	32
b) Longueur capillaire : goutte soumise à la gravité	34
c) Stabilité d'un film de liquide sur un substrat solide	35
6) Surfaces texturées	36
Chapitre I : statique de la mouillabilité et de l'imprégnation	41
I.1 Introduction	43
I.2 Dispositifs expérimentaux	43
I.2.1 Montage tensiomètre Krüss K100 SF (étude en pesée)	43
I.2.2 Goniomètre GBX modèle Digidrop++ (URCOM) (étude visuelle)	45
I.3 Choix des liquides	45
I.4 Choix des solides	47
I.5 Caractérisation expérimentale des liquides	48
I.5.1 Mesure de la tension de surface γ_L	48
I.5.1.1 Méthode de la goutte pendante	48
I.5.1.2 Méthode de Du Noüy (méthode de l'anneau)	49
I.5.1.3 Méthode de Wilhelmy (méthode de la lame)	49
I.5.2 Protocole expérimental	51

I.5.3	Résultats	52
I.5.4	Paramètres influençant sur la tension de surface	54
I.6	Equilibre d'une goutte sur un substrat solide lisse (verre)	61
I.6.1	Protocole expérimental	61
I.6.2	Résultats	61
I.6.2.1	Liquides modèles	61
I.6.2.2	Résines	65
I.6.3	Equilibre de Jurin	67
I.6.4	Résultats	69
I.6.4.1	Equilibre d'un ménisque autour d'un tube cylindrique	69
I.6.4.2	Equilibre d'un ménisque à l'intérieur d'un tube capillaire cylindrique	71
I.7	Equilibre d'un ménisque liquide autour d'une fibre	73
I.8	Détermination du diamètre moyen d'une fibre en quasi-statique	75
I.9	Conclusion	78
Chapitre II : dynamique de la mouillabilité et de l'imprégnation		81
II.1	Introduction	83
II.2	Régime spontané	84
II.2.1	Dynamique d'étalement d'une goutte liquide sur un substrat solide	84
II.2.2	Relaxation de ménisque autour d'une fibre quasi-stationnaire	88
II.2.3	Imprégnation capillaire	89
II.2.3.1	Loi de Washburn	89
II.3	Régime forcé	96
II.3.1	Approche hydrodynamique	96
II.3.2	Approche moléculaire	97
II.3.3	Approche combinée	98
II.3.4	Angle de contact dynamique sur une fibre	99
II.3.5	Chute d'un liquide dans un tube vertical : pression imposée	105
II.4	Conclusion	106
Chapitre III : imprégnation dans un milieu fibreux		109
III.1	Introduction	111
III.2	Description de l'espace poral dans les milieux fibreux	111

III.2.1	<i>Problématique</i>	111
III.2.2	<i>Descripteurs</i>	112
III.3	<i>Modélisation de la progression capillaire</i>	116
III.3.1	<i>Caractéristiques du pli en fibres de verre UD</i>	116
III.3.2	<i>Modélisation de la porosité microscopique</i>	117
III.3.3	<i>Modélisation de la porosité macroscopique</i>	120
III.3.4	<i>Progression capillaire dans les deux canaux</i>	120
III.3.5	<i>Influence des angles dynamiques</i>	124
III.4	<i>Etude expérimentale de l'ascension capillaire</i>	125
III.4.1	<i>Dans un pli de verre UD (macro)</i>	125
III.4.2	<i>Dans une mèche de verre UD (micro)</i>	127
III.5	<i>Conclusion</i>	132
Chapitre IV : formation et transport de bulles dans deux pores convergents		135
IV.1	<i>Introduction</i>	137
IV.2	<i>Bibliographie</i>	139
IV.2.1	<i>Généralités</i>	139
IV.2.2	<i>Régimes des bulles dans un T</i>	142
IV.2.3	<i>Transport des bulles dans un tube capillaire</i>	143
IV.3	<i>Dispositif expérimental</i>	144
IV.3.1	<i>Liquides utilisés</i>	144
IV.3.2	<i>Protocole expérimental</i>	144
IV.3.3	<i>Caractérisation de l'écoulement</i>	146
IV.3.4	<i>Formation des bulles</i>	147
IV.4	<i>Résultats</i>	149
IV.4.1	<i>Longueur d'une bulle</i>	149
IV.4.2	<i>Distance entre deux bulles successives</i>	154
IV.4.3	<i>Diagrammes et régimes des bulles</i>	157
IV.4.4	<i>Transport des bulles</i>	161
IV.5	<i>Comparaison aux modèles de transport de bulles dans les procédés LCM</i>	166
IV.6	<i>Complément : bulle dans un double T</i>	168
IV.7	<i>Conclusion</i>	170

Chapitre V : modélisation de l'écoulement dans un réseau à double échelle de pores	173
V.1 Introduction	175
V.2 Remontée capillaire dans un UD de verre	175
V.3 Modélisation de la compétition entre deux pores	177
V.3.1 Remplissage « spontané »	178
V.3.1.1 Connectivité aux nœuds	178
V.3.1.2 Connectivité parallèle : principe d'alimentation	181
V.3.1.3 Modèle combiné « connectivité-décalage-recouvrement »	183
V.3.1.4 Interprétation du modèle combiné	187
V.3.2 Remplissage à pression imposée P_i	194
V.3.2.1 Connectivité en un nœud	195
V.3.2.2 Connectivité parallèle	197
V.3.2.3 Modèle combiné en régime forcé	199
V.3.2.4 Résultats des modèles analytiques	203
V.4 Comparaison aux diagrammes de vide LCM	208
V.5 Conclusion	209
Conclusion générale et perspectives	211
Références bibliographiques	219
Annexes	231
Annexe 1 : calcul des incertitudes	233
Annexe 2 : corrections optiques	237

Introduction : phénomènes aux interfaces

1) Introduction

La science des interfaces s'intéresse aux phénomènes de mouillabilité, d'adhésion et de frottement entre un solide et un fluide ou entre deux fluides immiscibles. Ces phénomènes dépendent des échanges d'ions, d'électrons, d'atomes et des molécules à travers les couches atomiques constituées par les interfaces.

La progression spontanée d'un liquide dans un milieu poreux dépend généralement de ces interactions entre le solide et le liquide, des lois d'écoulements du liquide et de la géométrie des canaux caractéristiques du milieu.

Cette partie est consacrée à l'introduction de quelques notions fondamentales liées à la science des interfaces et utiles pour l'étude des mécanismes d'imprégnation qui seront abordés dans la suite de ce manuscrit.

2) Energie et tension de surface

Il existe plusieurs natures d'interactions qui peuvent donner naissance à l'énergie de surface. Les plus importantes sont :

Les forces de liaisons fortes telles que les liaisons ioniques, covalentes et métalliques.

Les forces d'attractions entre atomes à longue ou à courte portée telles que les interactions électrostatiques (forces de Van der Waals) faisant intervenir des effets physiques comme la dispersion, l'orientation et l'induction ainsi que les interactions acide/base qui contiennent des liaisons hydrogènes.

Pour les interactions de Van de Waals de nature dispersive appelées encore les interactions dipôle induit-dipôle induit (interactions de London), l'effet de dispersion est engendré par l'induction d'un champ dipolaire instantané d'une molécule sur une autre voisine. L'interaction dipôle-dipôle induit, de nature non dispersive (polaire), est un autre type d'interactions de Van der Waals (effet d'induction de Debye) où le champ électrique permanent induit un moment dipolaire sur une molécule voisine. Le troisième type est la force d'orientation ou interaction dipôle-dipôle (force de Keesom) qui est de nature polaire (non dispersive) et qui est induite par l'influence du champ électrique d'une molécule sur l'orientation des autres dipôles.

Les interactions acide/base ou donneur/accepteur d'électrons, résultent de l'attraction entre deux surfaces de caractère acido-basique différent.

a) Energie de surface

Un solide ou un liquide peut être considéré comme un agglomérat d'atomes contenus dans des cubes de côté a . L'énergie nécessaire à la fracture d'un matériau est une énergie de surface E_S correspondant à la formation de deux surfaces entre le corps et le milieu environnant :

$$E_S = 2n_s V_i \quad \text{Eq. 1}$$

où V_i est le potentiel d'interaction attractive entre atomes et n_s est le nombre d'atomes à la surface.

L'énergie de surface d'un solide ou d'un liquide ramenée à la surface unité est définie par le travail dW nécessaire pour créer de manière réversible et isotherme un élément d'aire dA du milieu dans le vide :

$$E_s = \frac{dW}{dA} \quad \text{Eq. 2}$$

L'ordre de grandeur de l'énergie superficielle E_s s'obtient en divisant l'énergie d'interaction de Van der Waals typique par la surface moléculaire et s'exprime en J/m^2 .

L'énergie de surface peut s'exprimer comme une somme de différents types d'interactions :

$$E_s = E_s^{London} + E_s^{Keesom} + E_s^{Debye} + E_s^{A/B} + E_s^{ionique} + E_s^{covalent} + E_s^{métallique} + \dots \quad \text{Eq. 3}$$

où $E_s^{A/B}$ est l'énergie de surface due aux interactions acide/base.

Les composantes de l'énergie de surface peuvent être groupées en une composante dispersive $E_s^d = E_s^{London}$ et une composante non dispersive ou polaire E_s^p qui est la somme du reste des énergies (Keesom, Debye, acide/base, ionique, covalent, métallique, etc.) :

$$E_s = E_s^d + E_s^p \quad \text{Eq. 4}$$

Généralement, pour les interactions de Van der Waals les forces de dispersion (de London) dominant les forces d'orientation (de Keesom) et les forces d'induction (de Debye).

b) Tension de surface

La tension de surface notée γ est une manière mécanique de décrire une surface. Elle est définie par la force df nécessaire pour créer de manière réversible et isotherme un élément de longueur dl :

$$\gamma = \frac{df}{dl} \quad \text{Eq. 5}$$

γ s'exprime en N/m .

Pour une surface uniformément tendue, df est perpendiculaire à dl et γ est constante ; le travail dW nécessaire pour créer un élément d'aire dA est donné par :

$$dW = df \cdot dl = \gamma dA \quad \text{Eq. 6}$$

Dans ce cas, Eq. 2 et Eq. 11 donnent la relation :

$$\gamma = E_s \quad \text{Eq. 7}$$

Si on considère un liquide au repos dont la surface est en contact avec l'air, les molécules au sein du liquide subissent des attractions égales dans toutes les directions alors que celles se trouvant à l'interface subissent des attractions non compensées du fait qu'elles sont loin du fond (l'énergie d'interaction de Van der Waals est inversement proportionnelle à la distance). Par conséquent, ces molécules à l'interface tendent à migrer vers le fond du liquide et provoquent alors une contraction de la surface ce qui explique que le système tend à minimiser son énergie et donc à diminuer sa surface.

La notion d'énergie de surface (ou tension de surface) est très importante à comprendre dans la mesure où une surface courbée est une surface sous pression tendant à retarder la nucléation de gouttes.

3) Loi de Laplace

La courbure locale d'une interface dépend de la différence de pression entre les deux milieux présents. Ce constat fut découvert en premier par Leidenfrost (Leidenfrost 1750), puis Laplace (Laplace 1806) a établi une loi reliant cette courbure à la différence de pression.

Considérons un élément de surface dS dont R_1 et R_2 sont les rayons de courbures et $d\theta_1$ et $d\theta_2$ les déviations angulaires élémentaires associées. Chaque côté de cette surface élémentaire subit des forces linéiques de tension de surface exercées par le reste de l'interface (Fig. 1).

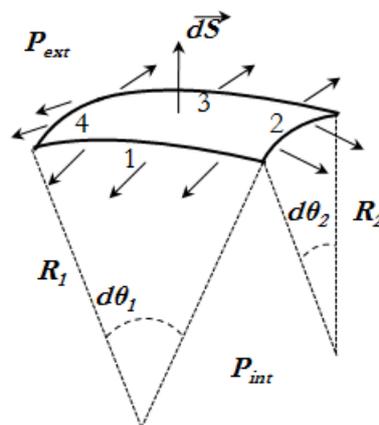


Fig. 1 : Surface élémentaire courbée

Les résultantes tangentielles des forces linéiques de la tension de surface qui s'exercent sur chaque côté de la surface élémentaire dS s'annulent deux à deux.

La résultante de la force linéique de tension de surface N_{S1} suivant la normale dS subie par le côté 1 par exemple, est donnée (pour une faible déviation angulaire $d\theta_2$) par :

$$N_{S1} = -R_1 d\theta_1 \gamma \sin \frac{d\theta_2}{2} = -\frac{1}{2} R_1 \gamma d\theta_1 d\theta_2 \quad \text{Eq. 8}$$

De la même manière, nous pouvons écrire la résultante normale N_{S2} qui s'applique sur le côté 2 :

$$N_{S2} = -\frac{1}{2} R_2 \gamma d\theta_2 d\theta_1 \quad \text{Eq. 9}$$

Les résultantes normales des forces de tension de surface sont égales de part et d'autre de la surface élémentaire :

$$N_{S1} = N_{S3} \text{ et } N_{S2} = N_{S4} \quad \text{Eq. 10}$$

La résultante normale F_{int} de la force de pression intérieure qui s'exerce sur dS s'écrit :

$$F_{int} = P_{int} R_1 d\theta_1 R_2 d\theta_2 \quad \text{Eq. 11}$$

La résultante normale F_{ext} de la force de pression extérieure qui s'exerce sur dS s'écrit :

$$F_{ext} = -P_{ext} R_1 d\theta_1 R_2 d\theta_2 \quad \text{Eq. 12}$$

A l'équilibre, les résultantes normales des forces de tension de surface s'annulent avec les pressions exercées sur l'élément de surface :

$$N_{S1} + N_{S2} + N_{S3} + N_{S4} + F_{int} + F_{ext} = 0 \quad \text{Eq. 13}$$

En remplaçant chaque force par son expression, la condition d'équilibre de dS donne :

$$-R_1 \gamma d\theta_1 d\theta_2 - R_2 \gamma d\theta_2 d\theta_1 + (P_{int} - P_{ext}) R_1 d\theta_1 R_2 d\theta_2 = 0 \quad \text{Eq. 14}$$

Il en résulte la loi de Laplace généralisée:

$$P_{int} - P_{ext} = \gamma \frac{R_1 + R_2}{R_1 R_2} = \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad \text{Eq. 15}$$

Pour une surface sphérique (goutte sphérique par exemple), les deux rayons de courbure principaux de la surface R_1 et R_2 sont égaux. L'Eq. 15 conduit à:

$$\Delta P_L = \frac{2\gamma}{R} \quad \text{Eq. 16}$$

avec R , le rayon de la sphère ($R = R_1 = R_2$).

Du point de vue énergétique, la surpression de Laplace est infinie ($\Delta P_L \rightarrow \infty$) lorsqu'une goutte commence à se former ($R \rightarrow 0$). On en déduit que la goutte ne peut pas croître. Ceci laisse entendre que la goutte naît par la présence d'une troisième phase (poussière solide par exemple).

La pression à la surface liée à sa courbure et couplée au phénomène de mouillage permet d'expliquer l'origine des phénomènes capillaires.

4) Pression capillaire

Une conséquence directe de la tension de surface et de la pression de Laplace est la notion de capillarité. En effet la tension superficielle peut être définie comme une force par unité de longueur l et s'exprime donc en N/m :

$$\gamma = \frac{F_c}{l} \quad \text{Eq. 17}$$

La force F_c appelée force capillaire est la force qui incite une interface donnée à s'étaler.

La pression capillaire est définie comme la différence de pression générée à travers une interface courbe entre deux fluides immiscibles.

5) Principes fondamentaux du mouillage, de mouillabilité et d'adhésion

Le mouillage est « l'étude de l'étalement d'un liquide déposé sur un substrat solide (ou liquide) » (de Gennes, Brochard-Wyart et Quéré 2005). Le mouillage intervient dans de nombreux problèmes pratiques. Ce phénomène est une conséquence directe des tensions de surface. En effet, si la phase condensée est un liquide environné de gaz ou d'un autre liquide, son interface avec le milieu ambiant est déformable. Afin de minimiser son énergie pour un volume donné, le liquide prend une forme qui permet de minimiser sa surface. Cette forme est la sphère. Il est donc intéressant de comprendre les conditions dans lesquelles une goutte de liquide sphérique peut s'étaler sur un substrat lisse ou rugueux.

La mouillabilité est la tendance relative d'un fluide à s'étendre ou à adhérer à une surface solide en présence d'un autre fluide immiscible. La mouillabilité contrôle généralement la distribution des fluides immiscibles dans les systèmes multiphasés de même que leur déplacement. Cette distribution et ce déplacement sont gouvernés par un paramètre d'étalement noté I qui permet de classer la nature de la mouillabilité (totale, partielle ou nulle).

L'adhésion est un phénomène qui décrit l'ensemble des effets physico-chimiques qui se produisent au contact de deux matériaux afin de créer une résistance mécanique à la séparation. L'énergie nécessaire pour réaliser cette séparation est appelée énergie d'adhésion. Ce phénomène peut être direct (adhésion entre un solide et un liquide) ou intermédiaire (adhésion entre deux solides par un milieu liquide intermédiaire).

a) Paramètre d'étalement I et énergie d'adhésion $E_{Dupré}$

L'exemple simple d'une goutte de liquide (L) déposée à l'aide d'une seringue sur un substrat solide lisse et horizontal (S) dans un milieu environnant (V) (Fig. 2), est développé ci-dessous pour introduire le paramètre d'étalement I .

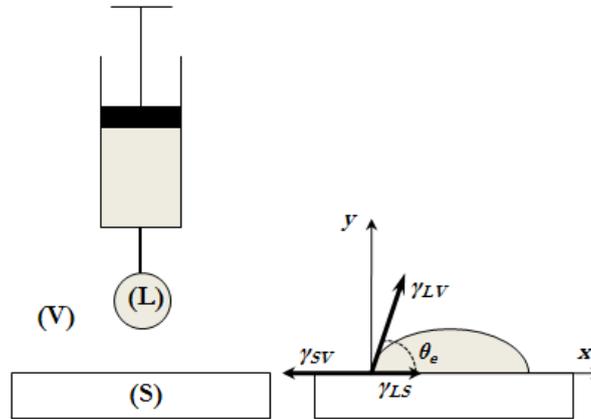


Fig. 2 : Dépôt d'une goutte liquide sur un substrat solide lisse et plane dans un milieu (V)

À l'équilibre de la goutte, la projection des forces capillaires agissant sur la ligne de contact ou « ligne triple » (contact des trois phases S, L et V) suivant la composante x donne l'équation de Young (Young 1805) :

$$\gamma_{SV} = \gamma_{SL} + \gamma_{LV} \cos \theta_e \quad \text{Eq. 18}$$

avec γ_{SV} , γ_{SL} et γ_{LV} , désignant respectivement les tensions superficielles des interfaces S/V, S/L et L/V et θ_e , l'angle formé entre la phase L et la phase S à l'équilibre.

Lorsqu'un liquide et un solide sont en contact, leurs deux surfaces distinctes sont remplacées par une seule phase V. L'adhésion des deux phases S et L résulte d'un gain d'énergie par unité de surface. Le bilan de ce gain ou paramètre d'adhésion appelé énergie par unité de surface de Dupré $E_{Dupré}$ s'écrit :

$$E_{Dupré} = \gamma_{SV} + \gamma_{LV} - \gamma_{SL} \quad \text{Eq. 19}$$

La relation de Young (Eq. 18) et celle de Dupré (Eq. 19) conduisent alors à :

$$E_{Dupré} = \gamma_{LV}(1 + \cos \theta_e) \quad \text{Eq. 20}$$

Afin de déterminer si un liquide posé sur un substrat solide a tendance à s'étaler en film (eau sur un substrat lisse de verre par exemple) ou à garder une forme de goutte sphérique, un bilan des trois tensions superficielles doit être calculé. Ce bilan appelé paramètre d'étalement du liquide I fut proposé par Marangoni (Marangoni 1871) par la relation :

$$I = \gamma_{SV} - (\gamma_{LV} + \gamma_{SL}) \quad \text{Eq. 21}$$

Ce critère mesure la différence des énergies superficielles du solide sec (γ_{SV}) et du solide mouillé ($\gamma_{LV} + \gamma_{SL}$). En reportant l'équation de Young (Eq. 18) dans l'Eq. 21, le paramètre d'étalement I s'écrit en fonction de l'angle de contact à l'équilibre :

$$I = \gamma_{LV}(\cos \theta_e - 1) \quad \text{Eq. 22}$$

Le signe de I décidera alors du type de la mouillabilité (Fig. 3).

Pour un bilan de signe strictement négatif ($I < 0$), le liquide forme une calotte sphérique à l'équilibre. La mouillabilité est alors « partielle » (formation d'un angle θ_e entre le liquide et le substrat solide). Dans cette configuration (Fig. 3.b), deux cas peuvent se présenter : pour un angle d'équilibre $0 < \theta_e \leq \pi/2$, le liquide est dit « mouillant » (Fig. 3-b.i) ; si $\theta_e > \pi/2$, le liquide est dit « non mouillant » (Fig. 3-b.ii). Pour θ_e tendant vers π , le liquide forme une goutte sphérique sur le substrat. La mouillabilité est alors « nulle ».

Pour un bilan de signe positif ($I \geq 0$), le liquide s'étale complètement sur la surface du solide formant ainsi un film (Fig. 3.a). L'angle à l'équilibre formé par la surface du liquide et celle du solide est nul ($\theta_e = 0$). La mouillabilité est alors « totale » ou « parfaite ». Le liquide est dit « parfaitement ou totalement mouillant ».

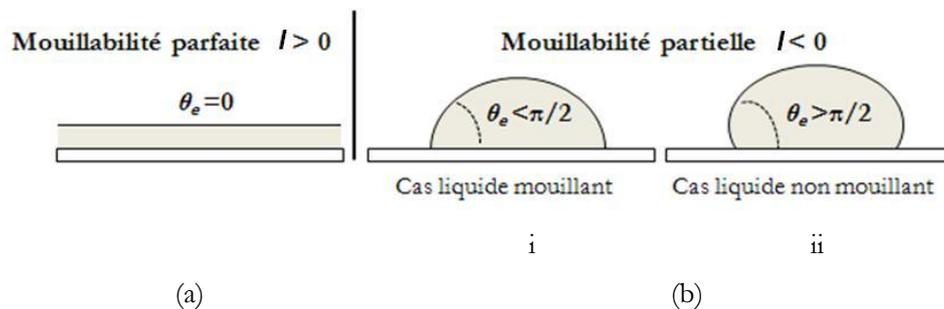


Fig. 3 : Les différents cas de mouillabilité

Afin de caractériser le type de mouillabilité d'un solide par un liquide, il faudrait donc connaître la tension de surface du liquide et l'angle de contact formé par les deux phases à l'équilibre.

Dans le cas pratique, seule la tension de surface du liquide γ_{LV} et l'angle de contact θ_e à l'équilibre des phases (S) et (L) sont mesurables. Il est cependant possible d'estimer la tension γ_{SV} à partir de modèles théoriques. Le modèle d'Owens et Wendt (Owens et Wendt 1969) définit par exemple la tension de surface d'un solide γ_{SV} comme la somme de deux composantes :

$$\gamma_{SV} = \gamma_{SV}^d + \gamma_{SV}^p \quad \text{Eq. 23}$$

où γ_{SV}^d est une composante dispersive provenant des contributions des interactions de London-Van der Waals et γ_{SV}^p est une composante polaire (non-dispersive) due essentiellement aux contributions des interactions de Keesom, de Debye ainsi que des interactions acide/base. La relation d'Owens et Wendt entre les composantes dispersive et polaire de la tension de surface du solide, la tension de surface du liquide et l'angle de contact à l'équilibre entre les deux phases s'écrit :

$$\gamma_{LV}(1 + \cos \theta_e) = 2\sqrt{\gamma_{SV}^d \gamma_{LV}^d} + 2\sqrt{\gamma_{SV}^p \gamma_{LV}^p} \quad \text{Eq. 24}$$

Pour déterminer les deux composantes γ_{SV}^d et γ_{SV}^p , il suffit de faire deux essais de mesure de tension de surface du même solide par deux liquides différents ayant des composantes polaires nulles.

Ce modèle est cependant plus approprié pour les solides à énergie de surface élevée (solides totalement mouillés par les liquides). Pour des surfaces solides à faible énergie de surface (solides partiellement mouillés), le modèle de Wu (Wu 1973) est à privilégier :

$$\gamma_{LV}(1 + \cos \theta_e) = 4 \left(\frac{\gamma_{SV}^d \gamma_{LV}^d}{\gamma_{SV}^d + \gamma_{LV}^d} + \frac{\gamma_{SV}^p \gamma_{LV}^p}{\gamma_{SV}^p + \gamma_{LV}^p} \right) \quad \text{Eq. 25}$$

Ces deux modèles sont généralement utilisés pour décrire les propriétés d'adhésion entre un liquide et un solide. Cependant ces approximations ne permettent pas de prendre en compte le comportement des liquides polaires en milieu aqueux caractérisé par des interactions de type acide/base (miscibilité). Le terme polaire à considérer est alors décrit par le modèle acide/base de Lewis (une composante acide γ_{SV}^+ accepteur d'électron et une composante basique γ_{SV}^- donneur d'électron). La tension de surface du solide est alors donnée par le modèle de Good et van Oss (Good et van Oss 1992) :

$$\gamma_{SV} = \gamma_{SV}^d + 2\sqrt{\gamma_{SV}^+ \gamma_{SV}^-} \quad \text{Eq. 26}$$

La relation entre la tension de surface du solide et celle du liquide s'écrit :

$$\gamma_{LV}(1 + \cos \theta_e) = 2\sqrt{\gamma_{SV}^d \gamma_{LV}^d} + \sqrt{\gamma_{SV}^+ \gamma_{LV}^-} + \sqrt{\gamma_{SV}^- \gamma_{LV}^+} \quad \text{Eq. 27}$$

b) Longueur capillaire : goutte soumise à la gravité

Une goutte de liquide posée sur une surface (solide ou liquide) tend à s'étaler sous la forme d'une flaque d'épaisseur e . Cette épaisseur résulte d'un compromis entre la gravité (amincir la flaque) et les forces de tension de surface s'opposant à l'étalement.

L'équilibre entre ces forces est donné par :

$$-I = P_g \quad \text{Eq. 28}$$

avec P_g , l'énergie potentielle de gravité par unité de surface qui tend à étaler la goutte et I , le paramètre d'étalement négatif.

$$P_g = \frac{1}{2} \rho g e^2 \quad \text{Eq. 29}$$

où ρ est la masse volumique du liquide et g est l'accélération de la pesanteur.

On en déduit l'épaisseur de la flaque :

$$e = \sqrt{-\frac{2I}{\rho g}} \quad \text{Eq. 30}$$

En écrivant I en fonction de l'épaisseur e et en injectant l'Eq. 22, on obtient l'épaisseur de la flaque :

$$e = 2\kappa^{-1} \sin \frac{\theta_e}{2} \quad \text{Eq. 31}$$

avec κ^{-1} , la longueur capillaire donnée par la relation :

$$\kappa^{-1} = \sqrt{\frac{\gamma_{LV}}{\rho g}} \quad \text{Eq. 32}$$

c) Stabilité d'un film de liquide sur un substrat solide

Du point de vue thermodynamique, le liquide est stable pour une mouillabilité parfaite (film étalé sur la surface solide). Par contre pour une mouillabilité partielle (calotte sphérique), le liquide est énergétiquement instable. Un critère permet de définir la nature de la mouillabilité (parfaite ou partielle).

Pour le cas $I \geq 0$, la condition de stabilité du film liquide d'épaisseur e s'écrit :

$$P_L = P_V - \Pi_d(e) \quad \text{Eq. 33}$$

avec P_L , la pression du liquide, P_V , la pression du milieu (V) et $\Pi_d(e)$, la pression de disjonction qui traduit l'interaction entre le milieu solide (S) et la vapeur (V) à travers la phase liquide (L).

Cette pression est définie par la relation :

$$\Pi_d(e) = -\frac{d}{de} (W(e)^{vdw}) \quad \text{Eq. 34}$$

où $W(e)^{vdw}$ est l'énergie de liaison de Van der Waals entre le milieu (S) et (V) et s'écrit :

$$W(e)^{vdw} = \frac{-A_{SLV}}{12\pi e^2} \quad \text{Eq. 35}$$

$A_{SLV} \approx \varphi \alpha_S \alpha_L$ est la constante de Hamaker qui dépend (à une constante φ près) de la polarisabilité du solide α_S et de celle du liquide α_L (la polarisabilité de la vapeur est négligeable).

Les équations Eq. 34 et Eq. 35 donnent l'expression de la pression de disjonction :

$$\Pi_d(e) = \frac{-A_{SLV}}{6\pi e^3} \quad \text{Eq. 36}$$

Si cette pression est positive ($A_{SLV} < 0$), la pression du liquide P_L est inférieure à la pression vapeur P_V (condition de stabilité (Eq. 33)). Les surfaces se repoussent spontanément dans le liquide formant ainsi un film étalé sur la surface solide. Le liquide mouille parfaitement le solide.

Si $\Pi_d(e) < 0$ ($A_{SLV} > 0$), la pression du liquide P_L est supérieure à P_V . Les surfaces s'attirent alors et le film rétréci sous l'effet de ces forces attractives. La mouillabilité est donc partielle.

Une approche simplifiée établie par de Gennes (P. de Gennes 1985) permet d'exprimer le paramètre I en fonction des interactions de Van der Waals :

$$I = \gamma_{SV} - (\gamma_{LV} + \gamma_{SL}) = W_{SL}^{vdW} - W_{LL}^{vdW} \sim \varphi \alpha_L (\alpha_S - \alpha_L) \quad \text{Eq. 37}$$

Un liquide mouille parfaitement un solide ($I > 0$), s'il est moins polarisable que le solide ($\alpha_S > \alpha_L$). Par conséquent, il existe une tension de surface critique γ_c de solide telle que, tout liquide ayant une tension de surface inférieure à γ_c peut s'étaler complètement sur le substrat solide. Ce critère est appelé critère de Zisman (Zisman 1964).

Il est donc clair que les substrats solides à surface lisse ayant une grande tension de surface critique γ_c comme le verre, le silicium ou le platine, sont mouillés par tous les liquides (à l'exception du mercure). Dans ce cas, le solide est dit « hydrophile ».

Autrement, le solide (à faible γ_c comme les plastiques par exemple) est non mouillé par le liquide (tant que γ_c est plus faible que la tension de surface du liquide). Le solide est alors « hydrophobe ».

Un traitement chimique ou physique de la surface peut alors modifier γ_c et transformer ainsi une surface hydrophile en une surface hydrophobe et vice versa.

6) Surfaces texturées

La rugosité est un autre paramètre qui peut modifier la nature hydrophile ou hydrophobe de la surface du solide et donc influencer sur le type de mouillabilité (mouillant ou non mouillant).

En pratique, la notion d'angle de contact est plus complexe que l'expression de Young. Les hétérogénéités présentes sur les surfaces tendent à accrocher la ligne de contact. L'angle de contact est alors plutôt défini comme une fourchette entre un angle d'avancée et de recul. Ces hétérogénéités peuvent être de nature géométrique, mais aussi chimique.

La surface d'un solide possède des défauts géométriques (rugosité de surface). Dès lors, sa mouillabilité dépend de sa rugosité.

Une surface peu « vallonnée » par exemple est plus facile à mouiller qu'une surface ayant un relief marqué. Dans le deuxième cas, le liquide reste sur les sommets rugueux (effet du « tapis de fakir ») formant ainsi des poches d'air dans les aspérités. Le contact à l'équilibre entre la phase liquide et le solide est alors décrit par un angle θ_e^* appelé angle de contact apparent ou moyen qui dépend de la rugosité moyenne r de la surface et de l'angle de contact à l'équilibre θ_e obtenue sur une surface identique mais lisse. Une relation entre ces trois caractéristiques a été proposée par Wenzel (Wenzel 1936). A l'équilibre d'une goutte, le modèle de Wenzel s'écrit :

$$\cos \theta_e^* = r \cos \theta_e \quad \text{Eq. 38}$$

Cette loi est donnée pour une rugosité $r \geq 1$. dans le cas où $r = 1$ (surface parfaitement lisse), la relation de Young (Eq. 18) est retrouvée et $\theta_e^* = \theta_e$. Le modèle de Wenzel constitue une bonne approche pour une surface rugueuse, homogène et hydrophile ($\theta_e^* < \pi/2$), mais il ne permet pas de prendre en compte la fraction de vide qui pourrait se trouver piégée pour une surface plus rugueuse. Un raisonnement sur des surfaces lisses mais hétérogènes du point de vue chimique a été proposé par Cassie et Baxter (Cassie et Baxter 1944) en considérant une surface composée de deux matériaux différents. Notons θ_1 et θ_2 , les angles de contact de chacun des deux matériaux et φ_1 et φ_2 , les fractions de surface composant la surface totale telles que $\varphi_1 + \varphi_2 = 1$. La relation de Cassie et Baxter s'écrit :

$$\cos \theta_e^* = \varphi_1 \cos \theta_1 + \varphi_2 \cos \theta_2 \quad \text{Eq. 39}$$

Si la surface totale est composée de n matériaux différents, la loi de Cassie-Baxter généralisée s'écrit :

$$\cos \theta_e^* = \sum_i^n \varphi_i \cos \theta_i \quad 1 \leq i \leq n \quad \text{Eq. 40}$$

Ce modèle montre l'impact des fractions surfaciques sur les propriétés de mouillabilité.

Il en résulte que, pour une surface solide texturée, deux paramètres géométriques définissent la nature de sa mouillabilité : sa rugosité moyenne r et la fraction surfacique du solide en contact avec le liquide φ_s . La prise en compte de ces deux paramètres reste difficile à réaliser pour des surfaces quelconques. Il est donc nécessaire d'étudier des surfaces à rugosité contrôlée.

Dettre et Johnson (Dettre et Johnson 1964) ont proposé un modèle de surface sinusoïdale. Ce modèle permet d'estimer une valeur seuil de rugosité r^* au-dessus de laquelle des poches d'air se forment. Cette rugosité critique est donnée par :

$$r^* = 1 + \frac{\tan^2 \theta_e}{4} \quad \text{Eq. 41}$$

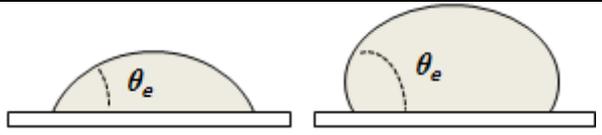
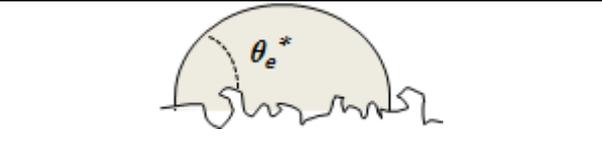
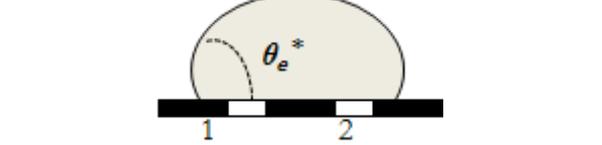
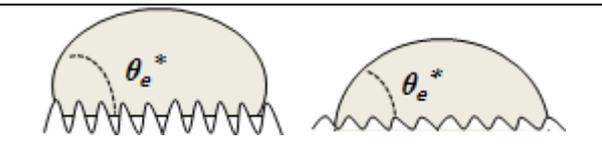
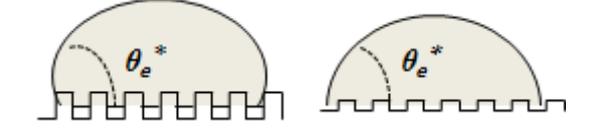
Un autre modèle s'intéressant à des surfaces à rugosité contrôlée a été développé par Bico. (Bico, Thiele et Quéré 2002). La surface considérée est une surface de picots (créneaux) de rugosité r .

La condition pour que le liquide remplisse les aspérités s'écrit :

$$\cos\theta_e > \frac{1 - \varphi_S}{r - \varphi_S} = \cos\theta_c^* \quad \text{Eq. 42}$$

avec θ_c^* , l'angle de contact critique tel que pour $\theta_e < \theta_c^*$ et $0 < \theta_c^* < \pi/2$, le liquide mouille la surface solide.

Le Tab. 1 illustre les modèles d'équilibre de gouttes sur différentes surfaces solides cités ci-dessus.

Modèle de Young (1805)	
Modèle de Wenzel (1936)	
Modèle de Cassie-Baxter (1944)	
Modèle de Dettre-Johnson (1964)	
Modèle de Bico et al (2002)	

Tab. 1 : Quelques modèles d'équilibre d'une goutte sur une surface

La caractérisation de la mouillabilité d'un solide donné par un liquide passe donc par une étude des propriétés physico-chimiques des phases présentes lors du contact. Généralement, cette caractérisation est effectuée à l'équilibre statique. En régime transitoire (avant équilibre), des effets d'hystérésis dus aux angles de contact dynamiques (avancée et retrait du liquide) ont lieu. Ces effets dépendent des paramètres géométriques (forme, texture...) et chimiques (traitement de surface, enrobage...) ainsi que des paramètres caractéristiques du liquide (tension de surface,

viscosité...). Une conséquence directe de la variation des angles de contact est la formation des poches d'air entre la surface du solide et celle du liquide.

Nous allons donc nous intéresser dans le chapitre suivant à la statique de la mouillabilité. Pour cela nous commençons par introduire les dispositifs expérimentaux permettant la caractérisation des propriétés physico-chimiques de quelques liquides modèles. L'équilibre statique de ces liquides sur des surfaces solides modèles est ensuite validé. L'étude sera réalisée dans un environnement d'air ambiant. Nous simplifions la notation des tensions de surface introduites préalablement à γ_L , la tension de surface liquide/vapeur et γ_S , la tension de surface solide/vapeur.

Chapitre I : statique de la mouillabilité et de l'imprégnation

I.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à la détermination des tensions de surface et des angles de contact à l'équilibre qui caractérisent la mouillabilité et l'adhésion entre les liquides et les solides. A l'échelle microscopique où les effets de gravité sont négligeables, les forces capillaires qui dépendent des tensions de surface des phases présentes sont prépondérantes. Il est donc important de valider ici certaines propriétés intervenant dans l'imprégnation d'une structure fibreuse poreuse. Du point de vue expérimental, deux approches peuvent être confrontées :

- l'étude en visuel : plus fiable, elle permet de bien décrire les phénomènes observés et de les quantifier sans nécessiter de corrections. Cependant, dans le cas de géométries complexes (cas d'une préforme fibreuse par exemple), l'observation devient délicate.
- la pesée : nécessaire pour caractériser les mécanismes d'imprégnation. Cette deuxième méthode nécessite généralement d'avantage de corrections et de calculs car la quantification des grandeurs se fait par déductions.

Dans cette partie, une comparaison des deux méthodes est abordée afin de faciliter l'étude suivante en dynamique.

I.2 Dispositifs expérimentaux

Le tensiomètre et le goniomètre sont les deux appareillages expérimentaux souvent utilisés pour déterminer les différentes grandeurs physico-chimiques intervenant lors de la mouillabilité ou de l'imprégnation d'un solide par un liquide. Ces deux appareillages sont employés pour leurs précisions de mesure à l'échelle microscopique. Ci-dessous, les deux montages expérimentaux des mesures des tensions de surface de quelques liquides et des angles statique et dynamique qu'ils forment au contact d'une surface solide sont décrits.

I.2.1 Montage tensiomètre Krüss K100 SF (étude en pesée)

Le montage expérimental (Fig. I.1) est composé d'un tensiomètre Krüss K100 SF (1) équipé d'une microbalance de précision (1.1) (sensibilité de mesure 10^{-7} g) et pouvant supporter une masse maximale de 6 grammes (porte échantillon compris) grâce à un crochet (1.2). Le porte réservoir de liquide (1.4) repose sur un plateau mobile (1.5) à vitesse réglable. Le contrôle de la température à l'intérieur de l'enceinte du tensiomètre est assuré par un thermocouple (1.3). Un boîtier (1.6) permet de commander manuellement le système. La variation de la température à

l'intérieur de l'enceinte est obtenue par un régulateur (2) permettant d'imposer une température variant entre 5°C et 80°C. L'acquisition visuelle est donnée par une caméra numérique monochrome Dalsa Génie M1024-1/3 (3) (25 images par seconde, résolution 1024*768 pixels), fixée grâce à un levier de positionnement réglable (0.3). Pour une meilleure stabilité géométrique et afin de minimiser les fréquences des vibrations extérieures, le tensiomètre (1) est posé sur un support en marbre (0.1) reposant sur un bac à sable. Un couvercle d'isolation extérieure en plexiglass (0.2) est installé sur une mousse antichoc en vue de diminuer les effets des bruits environnants et de réduire leurs fréquences. Le couvercle (0.2) permet aussi de maintenir le système à température constante. Ainsi, pour faciliter les acquisitions visuelles et donc minimiser les effets des réfractions et de réflexions optiques dues aux portes vitrées du tensiomètre (1), ces dernières peuvent demeurer ouvertes pour certaines expérimentations. Le réglage et la définition des paramètres de mesure, ainsi que les résultats des essais sont donnés par le logiciel Krüss Laboratory Desktop installé sur ordinateur. Le poste est aussi équipé du logiciel Streammer Imaging pour l'acquisition par la caméra. Le logiciel ImageGrap permet par la suite d'extraire les images pour les traiter avec Aphelion 3.2. Les composantes du dispositif expérimental reposent sur une table-support (0). Le schéma du montage expérimental est présenté sur la Fig. I.2.

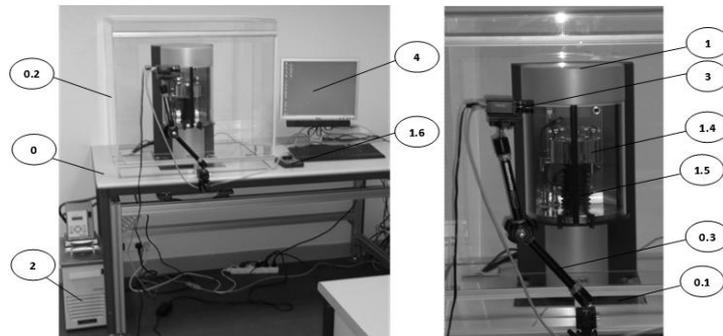


Fig. I.1 : Dispositif expérimental.

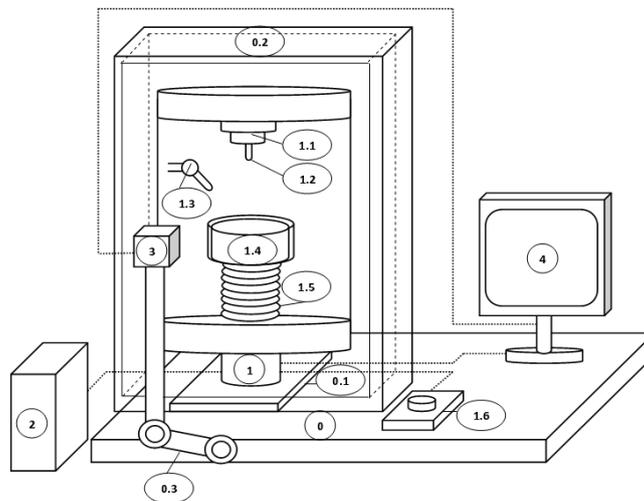


Fig. I.2 : Schéma du dispositif expérimental

I.2.2 Goniomètre GBX modèle Digidrop++ (URCOM) (étude visuelle)

Le dispositif expérimental (Fig. I.3) est composé d'un goniomètre GBX modèle Digidrop++ équipé d'un pousse-seringue micrométrique (1.1). Une seringue insérée dans (1.1) permet de déposer une goutte sur un substrat solide (1.2) reposant sur un plateau coulissant (1.3). L'acquisition est réalisée grâce une caméra CCD (1.4) permettant d'avoir 25 images/s pour une résolution de $8,7 \mu\text{m}/\text{pixel}$. Le traitement des images est effectué sur un poste équipé du logiciel Windrop++ qui renvoie les résultats de l'acquisition dans un fichier Excel. La température des essais est contrôlée par un thermomètre placé dans la pièce.

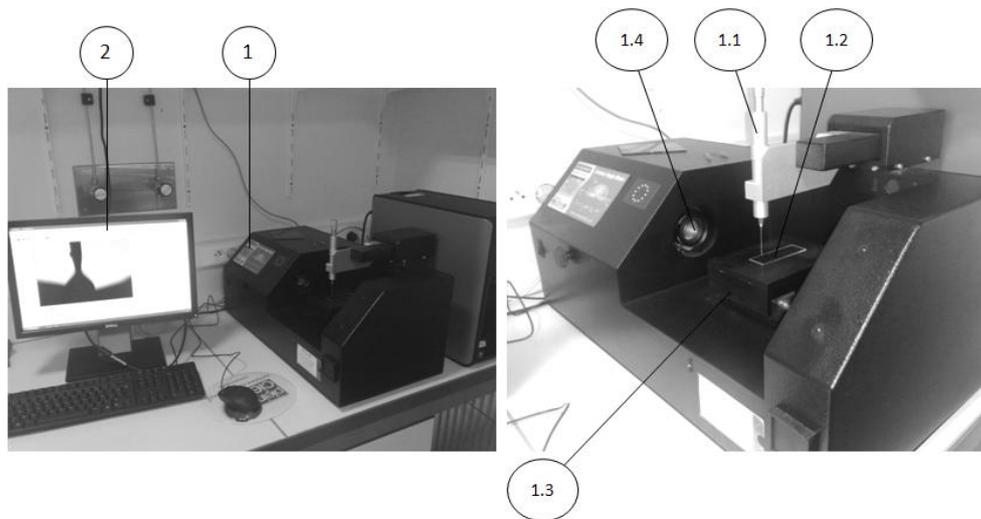


Fig. I.3 : Schéma du dispositif expérimental

I.3 Choix des liquides

Pour l'étude de la mouillabilité, on utilise souvent des liquides dits « modèles ». Ces liquides sont non-volatils (pour éviter les effets liés à l'évaporation), de type Van der Waals (interactions dispersives), de viscosité variable (permettant le contrôle de la dynamique de mouillabilité) et caractérisés par leur faible tension de surface.

L'heptane, relativement volatil, fait partie des alcanes qui constituent une famille de liquides modèles composés d'une chaîne carbonée (n carbones) et de deux groupements méthyles de formule générale C_nH_{2n+2} . Ces liquides sont caractérisés par des faibles tensions de surface et des très faibles viscosités par rapport aux huiles silicones.

Les huiles silicones ou les polydiméthylsiloxanes (PDMS) par exemple font partie des liquides modèles usuellement utilisés pour les expérimentations et les applications industrielles. Cette famille de liquides est formée d'un groupement siloxane (Si-O) et de deux groupements méthyles (CH₃) qui donnent des propriétés dispersives au liquide, lui assurent une bonne stabilité thermique et lui confère une transparence optique. La formule chimique générale des huiles silicones s'écrit :



où n est le degré de polymérisation.

Les huiles silicones sont des liquides newtoniens (La viscosité décroît linéairement en augmentant le taux de cisaillement) dont les viscosités baissent lentement avec la température. La variation de ces viscosités est par contre fortement proportionnelle à une augmentation de leurs masses moléculaires contrairement à leurs tensions de surface qui restent stables quelle que soit la viscosité. L'utilisation des huiles silicones nous permettra donc d'étudier l'influence des effets visqueux sur les phénomènes de mouillabilité.

Le glycérol (appelé aussi glycérine ou trialcool) est un liquide newtonien visqueux de formule C₃H₈O₃. Il est caractérisé par une tension de surface relativement élevée. Le glycérol est miscible dans l'eau.

L'éthylène glycol appelé aussi glycol ou éthane-1,2 est un composé chimique de formule C₂H₆O₂. A température ambiante, ce liquide est visqueux et incolore. L'éthylène glycol est un des liquides utilisés pour déterminer l'énergie de surface d'un solide puisque la composante dispersive et la composante polaire de sa tension de surface sont connues.

Le formamide est un amide qui provient de l'acide formique de formule chimique CH₃NO. A l'état liquide, le formamide a des propriétés chimiques qui sont assez proches de celles du glycérol. Tout comme l'éthylène glycol, ce liquide est usuellement employé dans la caractérisation de l'énergie de surface d'un solide.

Les résines thermodurcissables et les résines thermoplastiques : une résine est un produit polymère (naturel, artificiel ou synthétique) qui joue le rôle de matrice dans un matériau composite.

Les résines thermodurcissables, sous forme liquide à température ambiante, subissent une transformation irréversible en passant à l'état solide après polymérisation grâce à l'apport d'un

catalyseur. Les plus usuelles sont les polyesters caractérisées par leur aptitude à imprégner facilement les fibres (essentiellement les fibres de verre) et les époxydes caractérisées par des propriétés mécaniques supérieures qui sont couramment utilisées pour les injections dans les renforts en fibres de verre et les renforts en fibres de carbone.

I.4 Choix des solides

Lames de microscope Gold Seal en verre pur (chaux sodée) facile à découper avec un revêtement en silane. Ces lames, souvent utilisées comme surfaces modèles, ont un très bon état de surface et donc une énergie de surface assez élevée ce qui leur confère une bonne adhésion au contact des liquides modèles.

Tubes capillaires cylindriques en verre borosilicatés et transparents. Ces tubes, possédant un bon état de surface, modélisent de façon très simple une porosité.

Le renfort fibreux est composé d'arrangement de fibres pouvant avoir des natures différentes. Trois types de fibres sont abordés ici :

- Fibres de verre E : ces fibres ont des diamètres variant généralement entre 10 et 30 μm . Le verre E est utilisé pour ses propriétés diélectriques et ses qualités mécaniques voisines de celles de quelques métaux pour une plus faible masse volumique. Il se compose principalement de 5 oxydes : SiO_2 , Al_2O_3 , B_2O_3 , CaO et MgO . Les fractions massiques des différents composants du verre E donnés par la norme ASTM D578-00 (Annual Book of ASTM Standards 2000) sont présentées dans le Tab.I. 1.

Composé	SiO_2	Al_2O_3	B_2O_3	CaO	MgO	$\text{Na}_2\text{O},$ K_2O	Fe_3O_3	TiO_2	Fluoride
% massique	52-56	12-16	5-10	16-25	0-5	0-2	0,05-0,4	0-0,8	0-1

Tab.I. 1 : Les différents composants du verre E donnés par la norme ASTM D578-00

- Fibres de carbone plus fines que les fibres de verre (diamètres variant entre 5 et 15 μm) sont caractérisées par une faible densité, des propriétés mécaniques performantes et de bonnes conductivités électriques et thermiques.

- Fibres de lin teillées : ces fibres naturelles sont biodégradables et ont des diamètres variant entre 5 et 76 μm et des longueurs allant de 4 à 77 mm (Batra 1998). La fibre de lin apparaît comme un cylindre polygonal imparfait généralement de 6 côtés.

I.5 Caractérisation expérimentale des liquides

Les liquides utilisés tout au long de l'étude, sont caractérisés ici puis comparés aux données des fabricants et/ou de la littérature.

I.5.1 Mesure de la tension de surface γ_L

Il existe plusieurs méthodes permettant de mesurer la tension de surface γ_L d'un liquide. Ces méthodes sont généralement classées en deux catégories, les méthodes de goutte (goutte pendante, goutte à goutte) et les méthodes de force (Wilhelmy, de Du Noüy).

I.5.1.1 Méthode de la goutte pendante

Un exemple de la première catégorie est la méthode de la goutte pendante (Fig. I.4a) qui consiste à déterminer le diamètre d'une goutte de liquide injectée par une seringue (ou un tube capillaire) à l'équilibre. On peut aussi ajuster son profil, ce qui est bien plus précis. La forme de la goutte résulte d'un équilibre entre la force capillaire qui tend à la maintenir sur l'extrémité de l'aiguille et la force gravitationnelle due à son poids. La tension de surface est alors obtenue par la relation :

$$\gamma_L = \frac{\Delta\rho g d_m^2}{K} \quad \text{Eq.I. 1}$$

où $\Delta\rho$ est la différence de masse volumique entre la goutte liquide et la phase environnante, g , l'accélération de la pesanteur, d_m , le diamètre maximal de la goutte et K , un facteur de forme qui dépend de d_m/d_s , d_s est le diamètre mesuré à une distance d_m à partir du bas de la goutte. Ce facteur correctif est donné de façon empirique par Adamson (Adamson 1990). Cette méthode peut néanmoins s'avérer moins précise du point de vue expérimental dans le cas de petites gouttes (incertitude sur la détection visuelle, approximation des diamètres caractéristiques de la goutte). En effet, la gravité ne joue pas pour ces petites gouttes qui vont avoir la même forme sphérique indépendamment de leur tension de surface.

1.5.1.2 Méthode de Du Noüy (méthode de l'anneau)

Les mesures expérimentales des tensions de surface des liquides se font également par la méthode de la force de Du Noüy (méthode de l'anneau) et celle de la force de Wilhelmy (lame de platine). Les sondes sont caractérisées par une géométrie parfaitement définie (circonférence de l'anneau ou longueur de la lame) et d'une tension de surface très élevée (alliage platine-iridium pour l'anneau et du platine pour la lame).

La méthode de Du Noüy (Fig. I.4b) ou de l'anneau consiste à mesurer la force nécessaire pour arracher un corps solide totalement immergé dans un liquide. Le liquide est amené vers l'anneau jusqu'à la détection du contact entre les deux surfaces. Il est ensuite retiré lentement jusqu'à une force maximale qui correspond à un angle de contact nul entre l'anneau et le liquide.

La tension de surface du liquide est obtenue alors à partir de la relation :

$$\gamma_L = \frac{F_{max} - F_V}{L} \quad \text{Eq.I. 2}$$

avec F_{max} , la force maximale à l'arrachage, F_V , la force de poids du volume du liquide soulevé et L , le périmètre mouillé de l'anneau. Cette méthode permet d'avoir une bonne reproductibilité des mesures (plusieurs cycles d'immersion et émergence de l'anneau pour un même essai).

L'inconvénient de cette méthode est sa sensibilité aux vibrations extérieures qui peuvent causer un arrachage prématuré et donc perturber la mesure de la force maximale. Il est à noter que la masse volumique du liquide doit être connue pour utiliser cette méthode.

1.5.1.3 Méthode de Wilhelmy (méthode de la lame)

La méthode de la platine de Wilhelmy (Fig. I.4c) permet de mesurer le poids du ménisque d'un liquide formé avec la surface d'une lame. Le principe de Wilhelmy permet de déterminer la force exercée d'un liquide sur une surface géométriquement bien définie. D'autre part, ce modèle permet de caractériser les dimensions géométriques d'une surface solide grâce à un liquide qui la mouille parfaitement. Le principe de Wilhelmy intervient aussi dans la dynamique de la mouillabilité à laquelle nous nous intéresserons dans le chapitre II.

L'ensemble des forces agissant au contact entre un liquide et un solide de géométrie connue est décrit ici. Afin d'éviter l'influence de la viscosité, les vitesses d'immersion du solide dans les liquides devront être faibles. Le bilan des forces s'exerçant sur le solide s'écrit alors :

$$\sum f = f_P + f_A + f_S \quad \text{Eq.I. 3}$$

f_P est la force due au poids du solide, f_A , la force due à la poussée d'Archimède et f_S , les forces de tension de surface. La force d'Archimède s'écrit pour la partie immergée :

$$f_{A1} = -\rho_L g A d \quad \text{Eq.I. 4}$$

avec ρ_L , la masse volumique du liquide, A , la section droite de l'échantillon solide, g , l'accélération de pesanteur et d , la longueur immergée dans le liquide.

Pour la partie en contact avec la vapeur, la force d'Archimède est donnée par :

$$f_{A2} = -\rho_V g A (d_2 - d) = -\rho_V g A d_1 \quad \text{avec } d_2 - d = d_1 \quad \text{Eq.I. 5}$$

où ρ_V est la masse volumique de la phase vapeur et d_1 , la longueur totale du liquide.

En posant $\rho = \rho_L - \rho_V$, la force totale d'Archimède est donnée par l'expression :

$$f_A = f_{A1} - f_{A2} = -\rho_L g A d - \rho_V g A d_1 \quad \text{Eq.I. 6}$$

La force due au poids du solide s'écrit :

$$f_P = -\rho_S g A d_1 \quad \text{Eq.I. 7}$$

Les forces de tension de surface sont données par la relation :

$$f_S = p \gamma_L \cos \theta \quad \text{Eq.I. 8}$$

avec p , le périmètre de contact liquide/solide, γ_L , la tension de surface du liquide et θ l'angle de contact entre le liquide et le solide. L'Eq.I. 3 s'écrit alors :

$$\sum f = -\rho_S g A d_1 - \rho_L g A d - \rho_V g A d_1 + p \gamma_L \cos \theta \quad \text{Eq.I. 9}$$

L'équilibre statique permet d'écrire la relation de Wilhelmy :

$$\rho_S g A d_1 + \rho_L g A d + \rho_V g A d_1 = p \gamma_L \cos \theta = F \quad \text{Eq.I. 10}$$

Pour la mesure de la tension de surface d'un liquide, sa progression sur l'interface de la lame permet de déterminer, grâce à la microbalance, une force due à son poids. A l'équilibre du ménisque ($\theta = \theta_e$), le principe de Wilhelmy est donné par :

$$F = m g = p \gamma_L \cos \theta_e \quad \text{Eq.I. 11}$$

où m est la masse du ménisque du liquide à l'équilibre.

L'utilisation d'une lame de platine ($\theta_e \approx 0$) donne l'expression de la tension de surface du liquide γ_L :

$$\gamma_L = \frac{m g}{p} \quad \text{Eq.I. 12}$$

Cette méthode de mesure est rapide et précise (moins sensible aux bruits extérieurs en comparaison à l'anneau). La connaissance de la masse volumique du liquide n'est pas nécessaire. Par contre la surface de la lame (en platine rugueux) doit être soigneusement nettoyée. En effet,

les liquides très visqueux (masses moléculaires élevées) risquent de rester collés sur la surface solide (forte adhésion). Il est donc très important de nettoyer soigneusement les sondes et de veiller à étalonner l'appareillage avant les mesures.

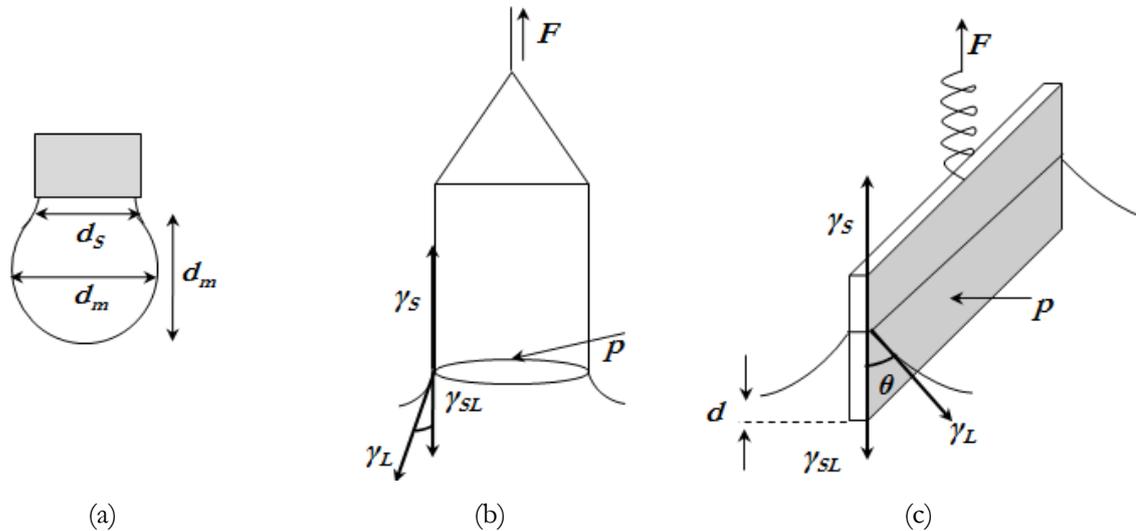


Fig. I.4 : Quelques méthodes de mesure de la tension de surface d'un liquide : (a) Principe de la goutte pendante ; (b) Principe de Du Noüy et (c) Principe de Wilhelmy

I.5.2 Protocole expérimental

Avant et après chaque essai de mesure, la lame et l'anneau sont rincés à l'eau pour éliminer les substances hydrosolubles puis plongés pendant quelques secondes dans l'acide sulfochromique, lavés à l'eau distillée et enfin chauffés rapidement au-dessus d'une flamme de méthanol. Les substances contaminantes (huiles silicones) sont éliminées au moyen du Decon (solvant organique). Une vérification rapide de l'état des sondes, consiste à réaliser une mesure de tension de surface de l'eau à une température connue (à 20°C, par exemple la tension de surface de l'eau donnée dans la littérature est $\gamma_L = 72,8 \text{ mN/m}$).

Si la valeur mesurée pour l'eau est différente de celle proposée dans la littérature, les mesures suivantes devront alors être multipliées par un facteur correctif donné par :

$$i = \frac{\gamma_L}{\gamma_{\text{mesurée}}} \quad \text{Eq.I. 13}$$

Les récipients des liquides sont rincés à l'eau courante, lavés à l'eau distillée et finalement séchés. Le tensiomètre K100 SF est équipé d'un niveau à bulle et sa mise à niveau est effectuée en ajustant ses vis de réglage. L'étalonnage de la microbalance est effectué soit avec une masse connue m entre 0,1 et 1g (morceau de papier ou trombone) accrochée sur la lame ou l'anneau.

Le facteur d'étalonnage (par lequel toutes les mesures doivent être multipliées) est donné par :

$$C = \frac{\gamma_{calculée}}{\gamma_{mesurée}} \quad \text{avec} \quad \gamma_{calculée} = \frac{mg}{p} \quad \text{Eq.I. 14}$$

où $\gamma_{mesurée}$ est la valeur relevée sur le tensiomètre après avoir déposé le corps de masse m sur la sonde.

Pour l'étude expérimentale, les mesures ont été effectuées avec une vitesse de détection de 6 mm/min et une sensibilité de détection de 0,001 g pour la lame et l'anneau. La profondeur d'immersion pour la lame est de 2 mm, tandis que celle de l'anneau est de 3mm. Le calcul des incertitudes de mesures est détaillé sur l'Annexe 1.

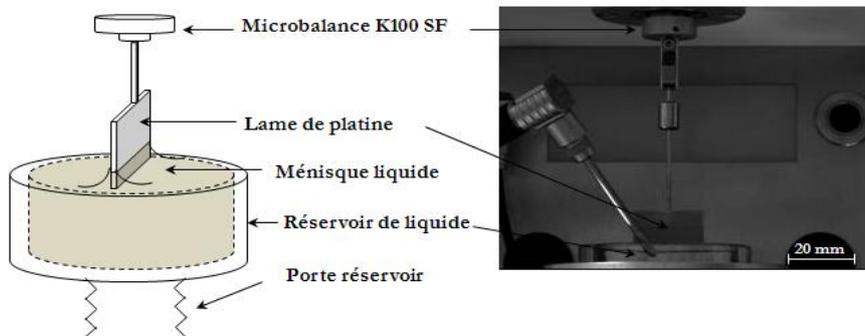


Fig. I.5 : Schéma d'expérimentation de la mesure des tensions de surface par la méthode de la lame de platine

I.5.3 Résultats

Les résultats de mesure des tensions de surface de quelques liquides utilisés sont donnés sur la Fig. I.6 pour les huiles silicones et le n-heptane et sur la Fig. I.7 pour l'eau distillée, le glycérol 98%, un mélange glycérol/eau, l'éthylène glycol et le formamide.

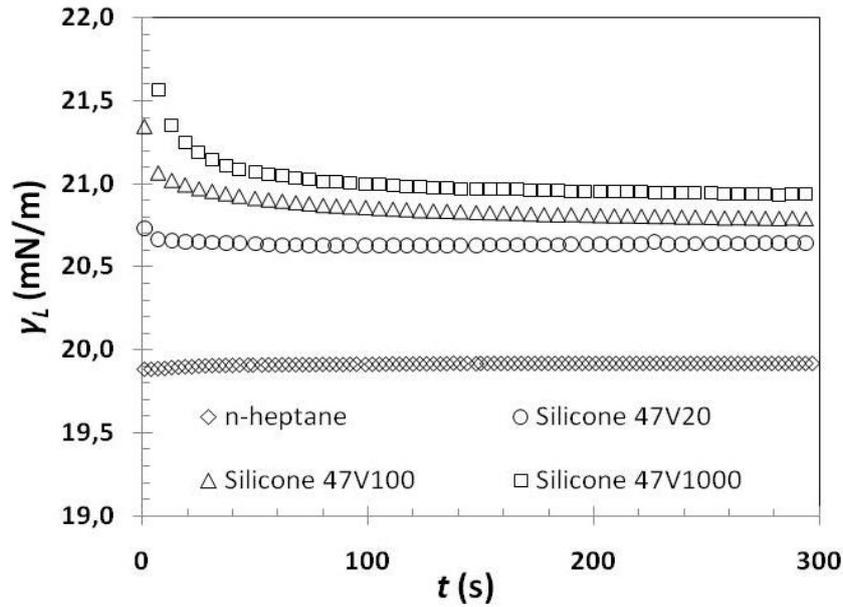


Fig. I.6: Résultats de mesures des tensions de surfaces à 25°C : des huiles silicones 47V20, 47V100 et 47V1000 et du n-heptane par la méthode de la lame de platine

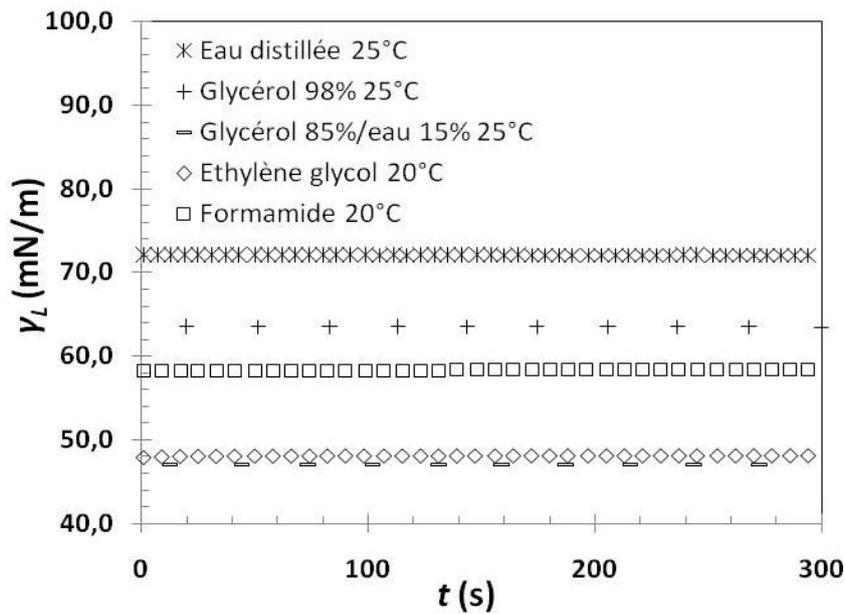


Fig. I.7 : Résultats de mesures des tensions de surfaces : de l'eau distillée, glycérol 98% et du mélange glycérol 85%/eau 15% à 25°C et de l'éthylène glycol et du formamide à 20°C par la méthode de la lame de platine

L'erreur de mesure est de $\pm 0,1$ mN/m. Les tensions de surfaces mesurées par la méthode de la lame de platine et par la méthode de l'anneau sont comparées aux valeurs issues de la littérature ou fournies par les fabricants dans la Tab.I. 2.

Liquides	Mesures expérimentales $\gamma_L \pm 0,1$ [mN/m]		γ_L Donnée par le fabricant ou la littérature
	Méthode de Wilhelmy	Méthode de Du Noüy	
Eau (25°C)	72,30	72,05	72,00
n-heptane (25°C)	19,91	20,09	19,90
Huile silicone 47V20 (25°C)	20,64	20,55	20,60
Huile silicone 47V100 (25°C)	20,75	20,97	20,90
Huile silicone 47V1000 (25°C)	20,92	–	21,10
Glycérol 98% (25°C)	63,64	62,88	64,00
Glycérol 85% / eau 15%(25°C)	49,84	50,81	–
Ethylène glycol (20°C)	48,73	-	48,30
Formamide (20°C)	58,49	-	58,20

Tab.I. 2 : Tensions de surface de quelques liquides utilisés

Pour les mesures des tensions de surface des liquides, les deux méthodes donnent des valeurs proches entre elles et des valeurs données par les fabricants ou/et la littérature.

I.5.4 Paramètres influençant sur la tension de surface

Plusieurs effets peuvent influencer la tension de surface : la température, la masse volumique, la masse molaire moléculaire, la polydispersité, les mélanges, les additifs tensioactifs, les transitions vitreuses et les changements de phases. L'étude réalisée s'intéresse à l'influence des trois premiers paramètres.

La tension de surface d'un liquide est liée aux forces d'interaction de Van der Waals. Une augmentation de la température revient à diminuer l'importance relative de la cohésion des molécules par rapport à l'entropie et conduit donc à une diminution de la tension de surface.

Un exemple des résultats de mesure de la tension de surface de l'huile silicone 47V20 pour différentes températures est donné sur la Fig. I.8.

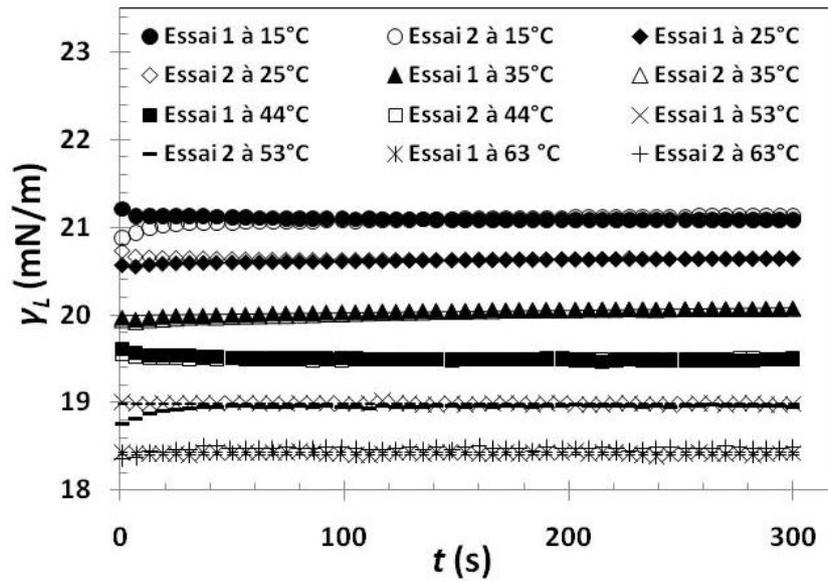


Fig. I.8 : Résultats des mesures de la tension de surface de l'huile silicone 47V20 pour différentes températures

Les variations des tensions de surface en fonction de la température ont été mesurées pour l'eau (Fig. I.9), les huiles silicones 47V20, 47V100 et 47V1000 (Fig. I.10) et le glycérol dont les masses molaires et les masses volumiques sont données pour une température de 25°C dans la Tab.I. 3.

Liquides	Masse molaire M_{mol} [g.mol ⁻¹]	Masse volumique ρ [kg.m ⁻³]
Eau distillée	18	997
Glycérol 98%	92	1262
Huile silicone 47V20	2800-3200	950
Huile silicone 47V100	10000-12000	965
Huile silicone 47V1000	38000-40000	970

Tab.I. 3 : Masses molaires et masses volumiques des liquides utilisés à 25°C

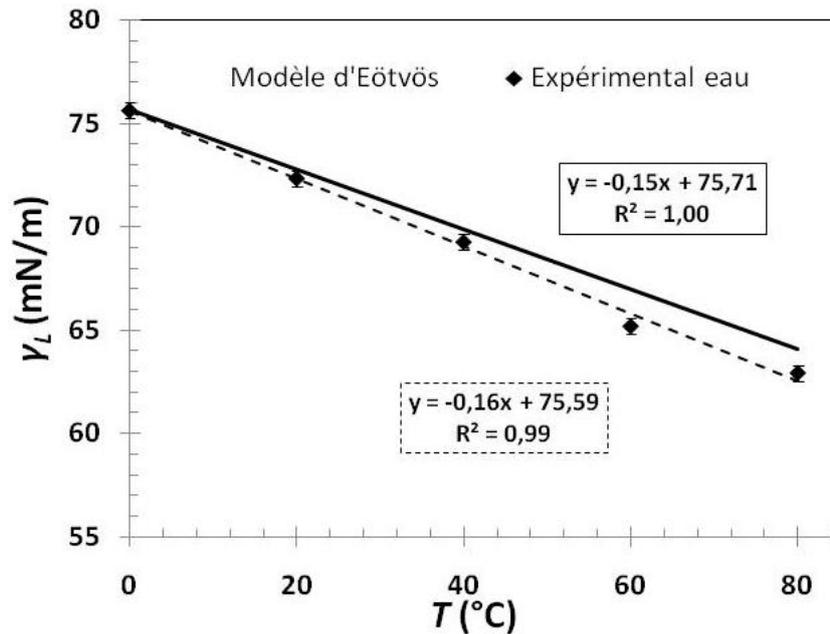


Fig. I.9 : Valeurs mesurées de la tension de surface de l'eau en fonction de la température

La tension de surface décroît linéairement pour une augmentation de la température ($d\gamma_L/dT < 0$). La connaissance du coefficient $d\gamma_L/dT$ permet par extrapolation de déterminer γ_L pour des températures T non-testées. A une température critique T_c , l'interface liquide/gaz disparaît et par conséquent la tension de surface est nulle. La règle d'Eötvös (Eötvös 1886) permet de donner une relation empirique entre la tension de surface et la température (en Kelvins). Cette relation s'écrit :

$$\gamma_L \left(\frac{M_{mol}}{\rho_L} \right)^{2/3} = C(T_c - T) \quad \text{Eq.I. 15}$$

où M_{mol} est la masse molaire du liquide, ρ_L , sa densité et C , la constante d'Eötvös qui vaut $2 \cdot 10^{-7} \text{ J}/(\text{K} \cdot \text{mol}^{2/3})$.

Ramsay et Shields (Ramsay et Shields 1893) ajoutent une correction à cette loi et donnent :

$$\gamma_L \left(\frac{M_{mol}}{\rho_L} \right)^{2/3} = C(T_c - T - 6) \quad \text{Eq.I. 16}$$

Pour l'eau, la connaissance d'une tension de surface à une température donnée ($T_1 = 20^\circ\text{C}$ par exemple) permet de déterminer grâce à l'Eq.I. 16 sa tension de surface pour une autre température T_2 . On peut écrire :

$$\gamma_L(T_1) = \left(\frac{M_{mol}}{\rho_L} \right)^{-2/3} C(T_c - T_1 - 6) \quad \text{Eq.I. 17}$$

avec $\gamma_L(T_1 = 293\text{K}) = 72,8 \text{ mN/m}$.

$$\gamma_L(T_2) = \left(\frac{M_{mol}}{\rho_L}\right)^{-2/3} C(T_c - T_2 - 6) \quad \text{Eq.I. 18}$$

L'Eq.I. 17 moins l'Eq.I. 18 donne :

$$\gamma_L(T_2) = \gamma_L(T_1) + \left(\frac{M_{mol}}{\rho_L}\right)^{-2/3} C(T_2 - T_1) \quad \text{Eq.I. 19}$$

Le modèle d'Eötvös suppose que la masse volumique reste constante en variant la température. Cette approche est une bonne approximation pour l'eau distillée où une augmentation de la température entraîne une faible variation de sa masse molaire (entre 5°C et 80°C, la masse volumique de l'eau varie entre 1000 kg/m³ et 971,6 kg/m³). Pour les huiles silicones polydiméthylsiloxanes (PDMS) (dont font partie les huiles silicones utilisées), la tension de surface « diminue avec la température, typiquement de 0,1 mN/m par degré » (Pierre Gilles de Gennes 2005). Ce constat est également fait dans (Rhodia octobre 1993).

Les mesures effectuées (Fig. I.10) donnent des valeurs inférieures à cet ordre typique. Dans le cas des polymères, il est montré que la température n'est pas le seul paramètre influent sur la tension de surface. Une étude sur l'évolution des tensions de surface des PDMS a été menée par Wu (Wu 1974) qui donne une loi empirique reliant la tension de surface à la masse molaire :

$$\gamma_L^{1/4} = \gamma_{L\infty}^{1/4} - \frac{C_s}{M_{mol}} \quad \text{Eq.I. 20}$$

où $\gamma_{L\infty} = 20,33$ mN/m est la tension de surface pour laquelle la masse molaire est infinie et $C_s = 22,22$ (mN/m)^{1/4} g mol⁻¹ est une constante empirique. Le Grand et Gaines (Le Grand et Gaines 1969) proposent un autre modèle qui s'écrit :

$$\gamma_L = \gamma_{L\infty} - \frac{C_e}{M_{mol}^{2/3}} \quad \text{Eq.I. 21}$$

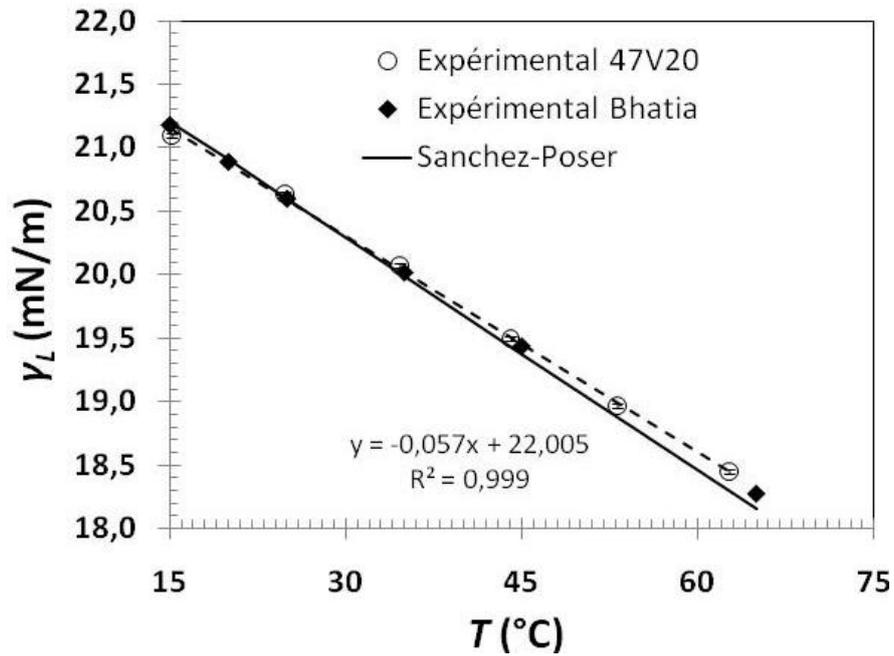
Avec $\gamma_{L\infty} = 21,26$ mN/m et $C_e = 166,1$ mN/m (g mol⁻¹)^{2/3}.

Poser et Sanchez (Poser et Sanchez 1979) donnent un développement thermodynamique qui permet d'exprimer la tension de surface en fonction de la masse volumique ρ et du coefficient de compressibilité isotherme X_T :

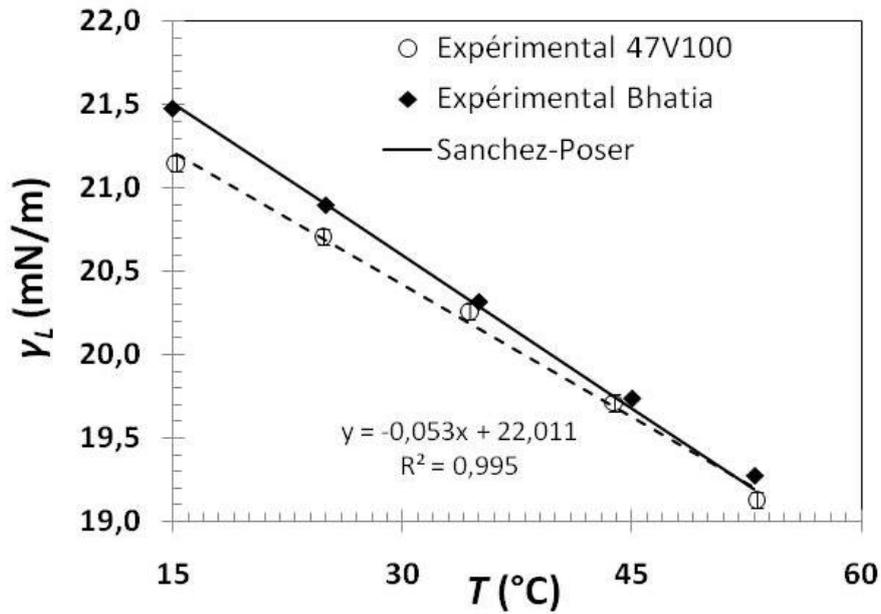
$$\gamma_L = A_0^{1/2} \left(\frac{\rho}{X_T}\right)^{1/2} \quad \text{Eq.I. 22}$$

où A_0 est une constante qui caractérise les interactions des molécules. Pour la plupart des polymères, les auteurs montrent que $A_0^{1/2}$ vaut entre 2 et $3 \cdot 10^{-4}$ (erg.cm²/g)^{1/2} avec 1 erg = 1 g.cm².s⁻² = 10⁻⁷ J.

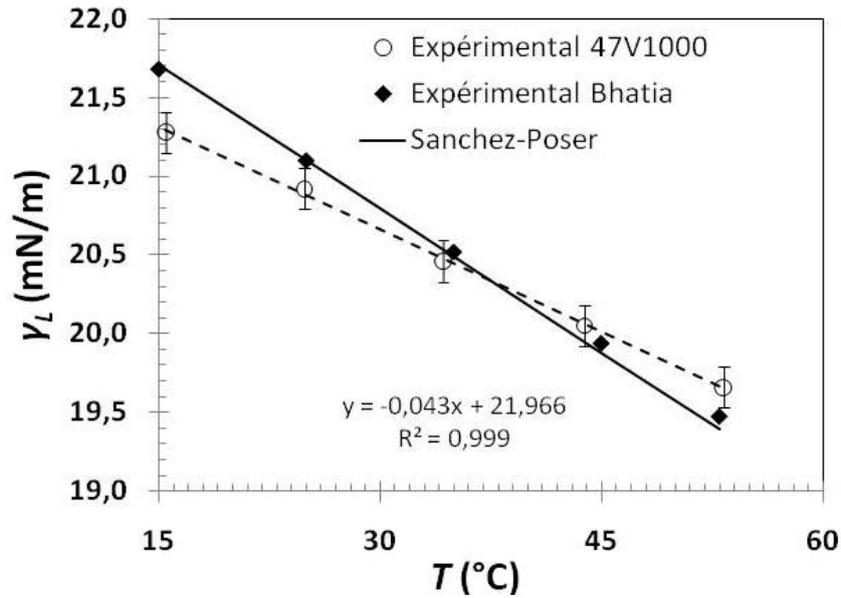
Le coefficient de variation de la tension de surface $-dy_L/dT$ pour les PDMS vaut 0,048 selon Wu (1974) ; 0,058 selon Bhatia et al. (Bhatia, et al. 1985) et 0,061 selon Poser et Sanchez (1979).



a) Huile silicone 47V20



b) Huile silicone 47V100



c) Huile silicone 47V1000

Fig. I.10 : Comparaison des résultats expérimentaux et des modèles de l'évolution de la tension de surface en fonction de la température pour les huiles silicones utilisées

Les résultats obtenus sont en bon accord avec ceux prévus par le modèle de Poser et Sanchez (1979) et les résultats expérimentaux de Bhatia et al. (1985) pour les huiles silicones 47V20 et 47V100. Une légère différence est cependant observée dans le cas de 47V1000 où le coefficient de variation de la tension de surface en fonction de la température est inférieur à la valeur prévue par la littérature. Pour le glycérol 98%, la variation de la tension de surface en fonction de la température est donnée sur la Fig. I.11.

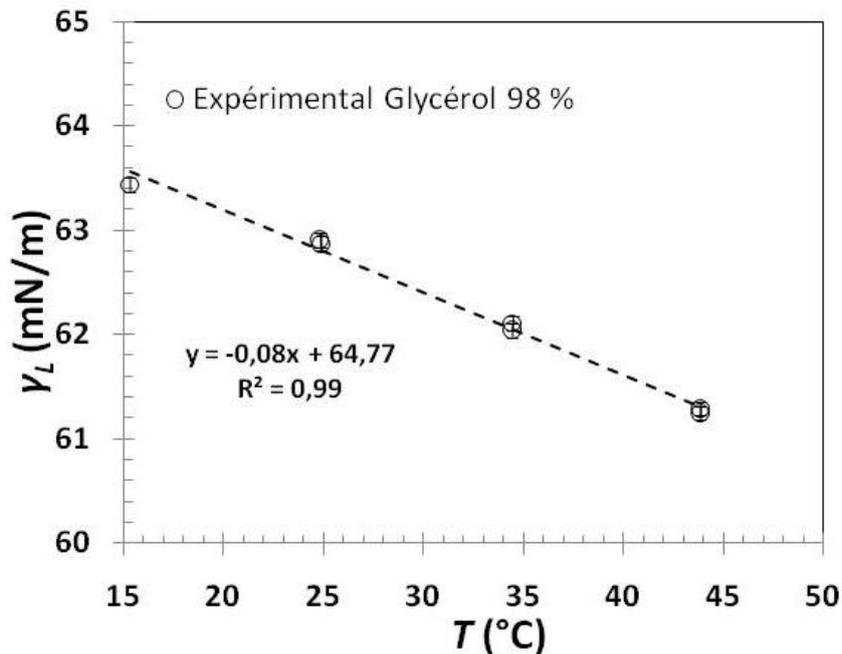


Fig. I.11 : Variation de la tension de surface du glycérol 98% en fonction de la température

Les résultats obtenus montrent que le coefficient de variation de la tension de surface en fonction de la température dépend de la masse molaire du liquide. Moreira et Demarquette (Moreira et Demarquette 2001) montrent que ce coefficient diminue lorsque la masse moléculaire augmente pour les polystyrènes, les polyéthylènes et les polypropylènes. Le même constat est observé dans les cas des huiles polydiméthylsiloxanes, l'eau et le glycérol 98% (Fig. I.12).

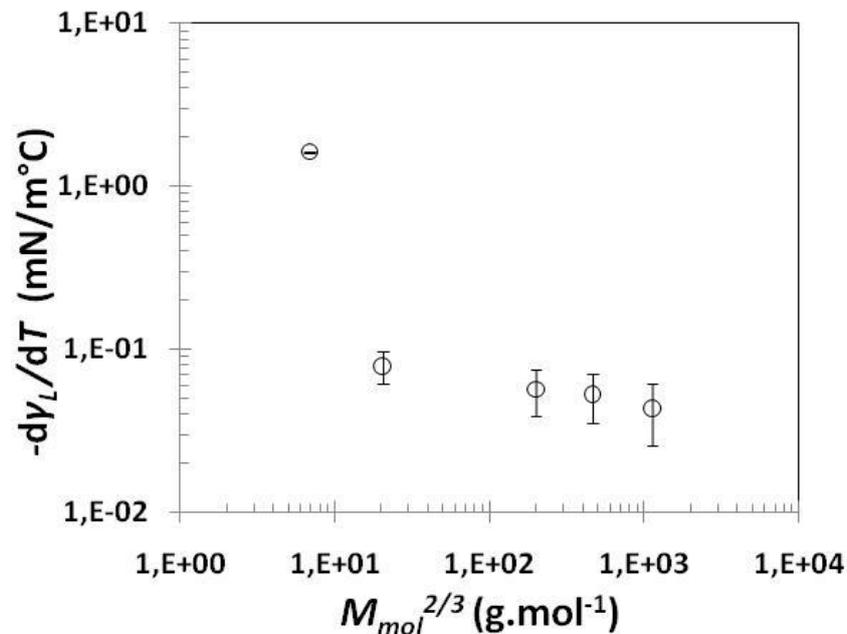


Fig. I.12 : Evolution du coefficient de variation linéaire de la tension de surface en fonction de la température en fonction de la masse molaire pour les liquides testés du Tab.I. 3

Le coefficient $-dy_L/dT$ varie de manière conséquente dans le cas des liquides aux faibles masses moléculaires (exemples de l'eau et du glycérol avec $M_{mol} < 1000$ g.mol⁻¹). Dans ce cas $-dy_L/dT$ est de l'ordre de 0,1 mN/m°C (0,16 pour l'eau et 0,08 pour le glycérol 98%). Le coefficient est plus faible pour les huiles silicones ($M_{mol} > 1000$ g.mol⁻¹) où $-dy_L/dT \sim 0,05$.

Les tensions de surface des liquides ayant été caractérisées dans un premier temps, il est nécessaire dans un deuxième temps, d'étudier les angles de contact à l'équilibre entre les liquides et les substrats solides afin de caractériser la mouillabilité (paramètre d'étalement I) et l'adhésion ($E_{Dupré}$) entre ces deux phases. L'étude du contact à l'équilibre fait l'objet du paragraphe suivant.

I.6 Equilibre d'une goutte sur un substrat solide lisse (verre)

La méthode classique souvent employée dans la littérature pour caractériser la mouillabilité et l'adhésion entre un liquide et un substrat solide est le dépôt de gouttes.

Une goutte de liquide dont la tension de surface initialement mesurée au tensiomètre est déposée sur une lame lisse en verre de microscope. Le contour de la goutte est numérisé grâce au logiciel Windrop++. Le travail est réalisé à température ambiante.

I.6.1 Protocole expérimental

Avant chaque essai, la lame de microscope est rincée à l'eau distillée et à l'éthanol, puis séchée à l'air comprimé filtré et enfin placée pendant quelques minutes dans une étuve à 50°C.

Windrop++ propose des méthodes d'acquisition différentes pour plusieurs applications. Pour la mesure des angles de contact, la méthode définie est l'acquisition cinétique automatique qui consiste à détecter la position du point de contact triple au cours du temps.

I.6.2 Résultats

I.6.2.1 Liquides modèles

La goutte de liquide s'étale sur le substrat solide en verre jusqu'à l'équilibre (Fig. I.13).

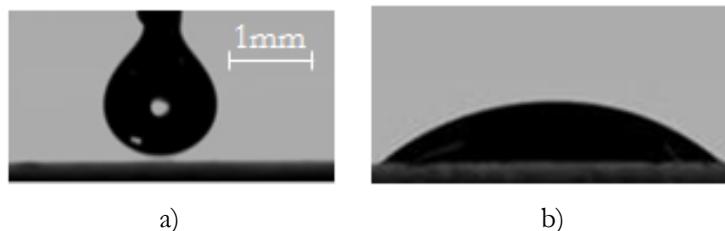


Fig. I.13 : Exemples d'images expérimentales extraites du glycérol 98% : a) goutte posée par la seringue ; b) équilibre apparent de la goutte sur le substrat

Pour chaque liquide, deux gouttes sont déposées sur le substrat. La moyenne de valeurs obtenues pour les deux essais est déterminée. Les résultats sont donnés dans le Tab.I. 4.

Une difficulté est rencontrée lors des essais concernant le glycérol 98% et le glycérol 85%/eau 15%. Pour le premier liquide, huit essais réalisés donnent des angles de contact à l'équilibre variant entre 34° et 66,5°. En réalité, l'angle de contact statique mesuré se trouve dans une fourchette entre l'angle à l'avancée et l'angle de reculée. On parle ici d'hystérésis de contact qui

se réfère à l'angle d'avancée statique ou de reculée statique au-delà ou en dessus duquel la goutte se déplace. Par conséquent, l'angle observé dépend de la manière dont on a posé la goutte.

Pour la pesée, le rapport entre la force de Wilhelmy appliquée sur la lame de verre et celle appliquée sur la lame de platine permet de déduire le cosinus de l'angle de contact à l'équilibre entre le glycérol et le substrat de verre. Pour la lame de platine, l'équilibre de Wilhelmy permet d'écrire (en supposant la mouillabilité parfaite $\cos\theta_e = 1$) :

$$F_{platine} = p_{platine}\gamma_L \quad \text{Eq.I. 23}$$

avec $F_{platine}$, le poids du ménisque de glycérol de périmètre $p_{platine}$.

L'équilibre de Wilhelmy pour la lame de verre s'écrit :

$$F_{verre} = p_{verre}\gamma_L \cos\theta_e \quad \text{Eq.I. 24}$$

L'angle de contact à l'équilibre entre le glycérol et la lame de verre est alors donné par :

$$\theta_e = \cos^{-1}\left(\frac{p_{platine} F_{verre}}{p_{verre} F_{platine}}\right) \quad \text{Eq.I. 25}$$

L'application numérique donne $\theta_e = 53^\circ \pm 3^\circ$ pour le glycérol 98% et $\theta_e = 44^\circ \pm 3^\circ$ pour le mélange glycérol 85%/eau 15%.

Les résultats des angles de contact obtenus pour quelques liquides (à $T \approx 25^\circ\text{C}$) par la visualisation (méthode de la goutte posée sur le substrat en verre au Goniomètre) et par la pesée de Wilhelmy (tensiomètre) sont donnés sur la Fig. I.14.

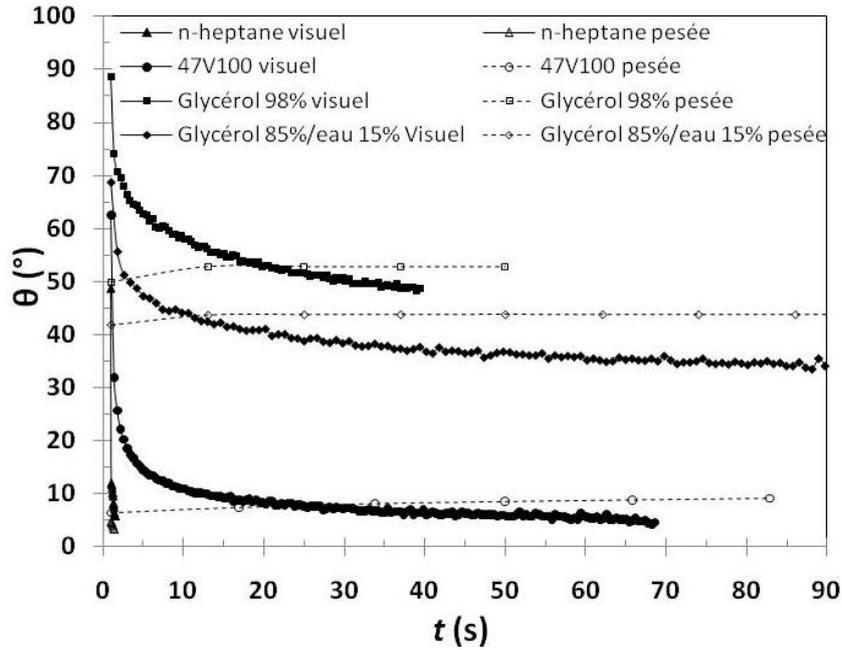


Fig. I.14 : Comparaison des résultats des mesures des angles de contact à l'équilibre

Les mesures des angles par la pesée sont plus précises ($\Delta\theta_e = 6^\circ$) que ceux déterminés par la visualisation au goniomètre où $\Delta\theta_e = 10^\circ$. Les angles de contact mesurés par la méthode de Wilhelmy convergent vers un angle d'équilibre quasi stable conditionné par le régime hydrostatique.

L'étude en visuel permet de caractériser les dimensions macroscopiques de la goutte. Deux configurations suivant les forces agissant sur la goutte peuvent se présenter lors de ces essais :

- Pour un rayon de goutte R_g inférieur à sa longueur capillaire κ^{-1} , seules les forces capillaires interviennent dans son étalement. La goutte a alors une forme de calotte sphérique. L'angle de contact à l'équilibre est donné par la relation :

$$\tan\left(\frac{\theta_e}{2}\right) = 2\frac{H}{L} \quad \text{Eq.I. 26}$$

où H et L sont la hauteur et la largeur (dans ce cas le diamètre) de la goutte (Fig. I.15 a).

- Dans le cas d'une goutte lourde où son rayon R_g est supérieur à κ^{-1} , la goutte est soumise à la gravité. Elle s'écrase sous l'effet de son poids et prend la forme d'une flaque (Fig. I.15b). L'équilibre de la flaque résulte alors d'un équilibre entre la force capillaire et la force gravitationnelle donnant une expression de l'angle de contact à l'équilibre sous la forme :

$$\sin\left(\frac{\theta_e}{2}\right) = \frac{e}{\kappa^{-1}} \text{ avec } \kappa^{-1} = \sqrt{\frac{\gamma_L}{\rho g}} \quad \text{Eq.I. 27}$$

où e est l'épaisseur de la flaque liquide.

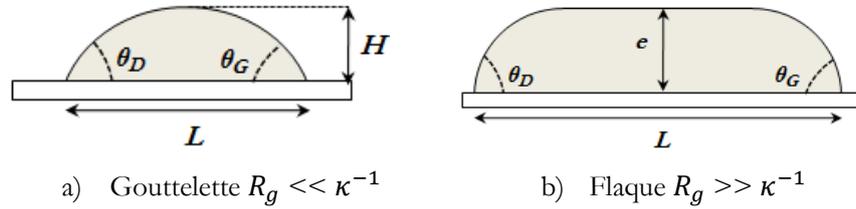


Fig. I.15 : Formes de gouttes à l'équilibre

Deux angles de contact apparents sont mesurés à l'équilibre de la goutte. Un angle à l'équilibre apparent à droite du côté de la goutte θ_D et un deuxième à gauche θ_G . L'angle de contact apparent à l'équilibre est donné par la moyenne des deux angles. Le volume V , La hauteur H ou l'épaisseur e et la largeur L de la goutte à l'équilibre sont également mesurés (Tab.I. 4).

Gouttes de liquides	$V \pm 0,3$ (mm ³)	$R_g \pm 0,1$ (mm)	κ^{-1} (mm)	$L \pm 0,1$ (mm)	H (ou e) \pm 0,1 (mm)	$\theta_e = (\theta_D + \theta_G)/2$ ($\pm 5^\circ$)
n-heptane	–	–	1,71	–	–	–
Huile silicone 47V20	4,5	1,02	1,47	6,0	0,1	5,0°
Huile silicone 47V100	4,8	1,04	1,48	6,1	0,1	5,0°
Huile silicone 47V1000	4,3	1,00	1,49	6,2	0,3	9,0°
Glycérol 98%	3,9	1,22	2,26	3,7	0,9	49,0°
Glycérol 85%/eau 15%	9,5	1,31	2,03	5,4	0,8	33,0°

Tab.I. 4 : Relevés expérimentaux des dimensions géométriques des gouttes et de leurs angles de contact apparents à l'équilibre sur une lame de verre

Pour le n-heptane la mouillabilité est parfaite, la goutte s'étale instantanément sur le substrat en film mince ($H < 0,1$ mm). Les huiles silicones sont connues pour être très mouillantes (basse tension de surface). Leur vitesse d'étalement est lente à cause de la dissipation dans la ligne de contact. On obtiendrait un angle nul en attendant assez longtemps. Le glycérol et le mélange glycérol/eau sont partiellement mouillants ($0 < \theta_e < \pi/2$) et les rayons mesurés des gouttes (R_g)

sont inférieurs à leurs longueurs capillaires (κ^{-1}) mais possède le même ordre de grandeur ($\sim 1\text{mm}$). Les deux modèles (gouttelette et flaque) sont donnés respectivement pour $R_g \ll \kappa^{-1}$ et pour $R_g \gg \kappa^{-1}$. Il est donc utile de comparer les valeurs des angles de contact à l'équilibre obtenues à celles prévues par les deux théories (Fig. I.16).

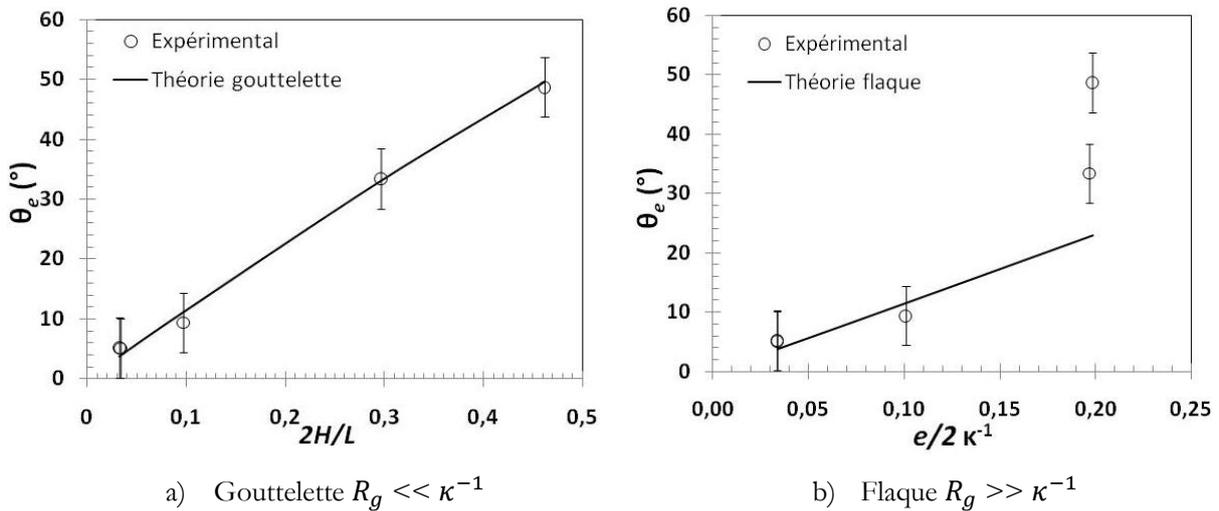


Fig. I.16 : Comparaison des mesures expérimentales des angles de contact à l'équilibre aux modèles théoriques

Les résultats obtenus montrent que la condition $R_g < \kappa^{-1}$ est suffisante pour que la goutte millimétrique atteigne le même équilibre apparent qu'une gouttelette microscopique.

Pour les huiles silicones, les rayons obtenus sont proches des longueurs capillaires. Par conséquent, leurs angles de contact à l'équilibre vérifient les valeurs prévues par les deux théories. Par contre, pour le Glycérol 98% et pour le mélange Glycérol 85%/ eau 15%, les rayons des gouttes sont à peu près 2 fois plus petits que leurs longueurs capillaires. Donc, la première théorie est plus appropriée dans ce cas.

1.6.2.2 Résines

Pour les résines polymères, les mesures de leurs tensions de surface passe tout d'abord par la détermination de leurs angles de contact apparents à l'équilibre avec un substrat lisse (lame de verre dans ce cas). Les mesures des angles de contact à l'équilibre ont été réalisées sur des résines dont les propriétés sont données par les fabricants dans la Tab.I. 5.

Une fois l'angle mesuré, il suffit d'effectuer une pesée de Wilhelmy au tensiomètre pour obtenir γ_L .

Résines	Données des fabricants		Mesures expérimentales
	Masse volumique ρ (kg.m ⁻³)	Viscosité dynamique η (Pa.s)	$\theta_e = (\theta_D + \theta_G)/2$
Epoxy SR8100	1158 ± 10 (à 20°C)	1,32 ± 0,1 (à 20°C)	36° ± 5°
Greenpoxy 55	1152 ± 10 (à 20°C)	3,00 ± 0,5 (à 20°C)	43° ± 5°
Polyester Norsodyne S 2010V	1120 (à 20°C)	0,275 (à 25°C)	35° ± 5°
Polylite 31325-00	1020 à 1250 (à 25°C)	6,50 à 12,50 (à 25°C)	44° ± 5°
biorésine	1100 (à 20°C)	2,20 à 3,00 (à 20°C)	52° ± 5°

Tab.I. 5 : Quelques caractéristiques des résines et valeurs des angles de contact mesurées à l'équilibre sur un substrat en verre lisse

Les mesures des tensions de surface sont données sur la Fig. I.17.

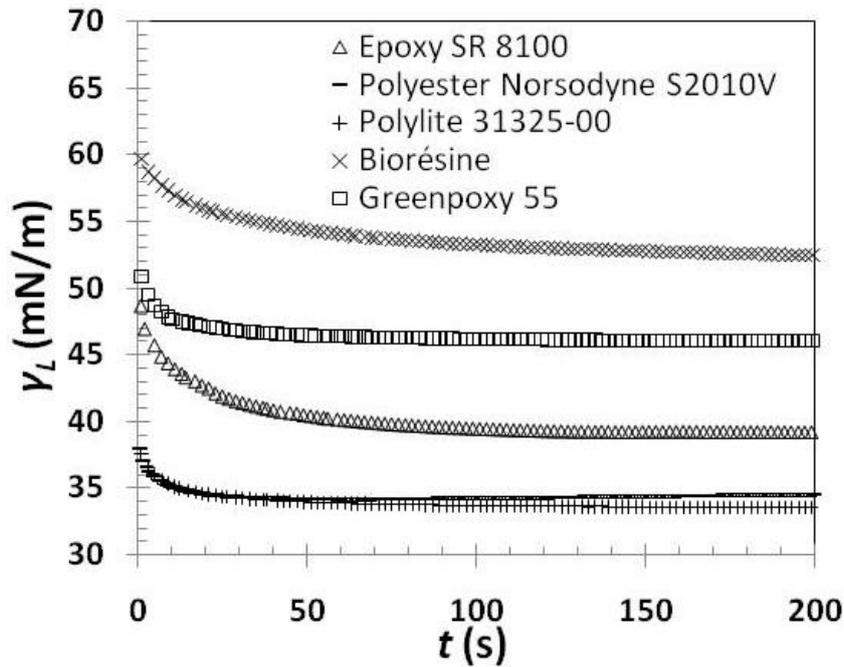


Fig. I.17 : Mesures des tensions de surface des résines

Les valeurs des tensions de surface et les mesures des caractéristiques géométriques des gouttes de résines sont données dans la Tab.I. 6.

Gouttes liquides	γ_L (mN.m ⁻¹)	V (mm ³)	R_g (mm)	κ^{-1} (mm)	L (mm)	H (ou e) (mm)	$\theta_e = (\theta_D + \theta_G)/2$
Epoxy SR8100	39,0 ± 1,1	4.1 ± 0.3	1,0 ± 0,1	1,8 ± 0,5	4,0 ± 0,1	0,7 ± 0,1	36° ± 5°
Greenpoxy 55	46,0 ± 1,1	5.6 ± 0.3	1,1 ± 0,1	2,0 ± 0,5	4,1 ± 0,1	0,8 ± 0,1	43° ± 5°
Polyester Norsodyne S2010V	35,0 ± 1,1	4.1 ± 0.3	1,0 ± 0,1	1,8 ± 0,5	4,0 ± 0,1	0,6 ± 0,1	35° ± 5°
Polylite 31325-00	34,0 ± 1,1	4,8 ± 0,3	1,0 ± 0,1	1,8 ± 0,5	4,1 ± 0,1	0,9 ± 0,1	44° ± 5°
Biorésine	51,0 ± 1,1	5 ± 0,3	1,0 ± 0,1	2,2 ± 0,5	3,7 ± 0,1	0,9 ± 0,1	52° ± 5°

Tab.I. 6 : Caractérisation de l'équilibre des gouttes de résines sur le substrat en verre à 25°C

I.6.3 Equilibre de Jurin

Si l'on met en contact un tube de petit rayon intérieur R_c avec un liquide mouillant, ce dernier s'élève dans le tube par capillarité (Fig. I.18). Laplace fut le premier à comprendre le phénomène (pourtant appelée loi de Jurin) qui constitue un des principes fondamentaux de l'imprégnation capillaire.

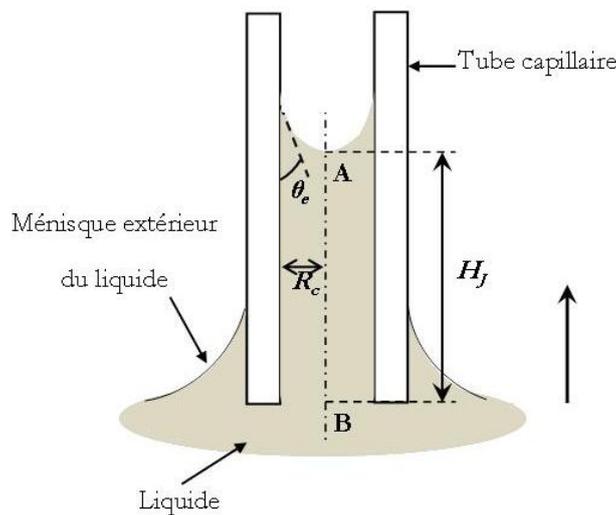


Fig. I.18 : Ascension capillaire dans un tube sec (loi de Jurin)

Le liquide s'élève si l'énergie de surface γ_S du tube sec est supérieure à l'énergie de surface γ_{LS} du tube mouillé.

On définit un paramètre d'imprégnation :

$$I = \gamma_S - \gamma_{SL} = \gamma_L \cos \theta_e \quad \text{Eq.I. 28}$$

qui représente la force par unité de longueur agissant sur le contour du capillaire pour équilibrer le poids de la colonne. Si R_c est le rayon du capillaire, l'équilibre s'écrit :

$$2\pi R_c (\gamma_S - \gamma_{SL}) = \pi R_c^2 H_J \rho g \quad \text{Eq.I. 29}$$

En utilisant l'équation d'Young, la loi de Jurin peut s'écrire :

$$H_J = \frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{R_c \rho g} \quad \text{Eq.I. 30}$$

En introduisant la longueur capillaire κ^{-1} dans l'équation, la loi de Jurin s'écrit :

$$H_J = \frac{2\kappa^{-1}}{R_c} \cos \theta_e \quad \text{Eq.I. 31}$$

La loi de Jurin est valable pour des $R_c \ll \kappa^{-1}$. La hauteur de montée capillaire peut être aussi déduite par un raisonnement en termes de pression. Ce raisonnement est plus rigoureux. En effet, l'argument avec la force indiquerait par exemple le mauvais sens de déplacement d'une goutte dans un tube conique. La (dé)pression hydrostatique dans la colonne de liquide compense la pression de Laplace liée à la courbure du ménisque de rayon R . Quand l'angle de contact à l'équilibre entre le liquide et la surface du tube est nul (cas d'un liquide parfaitement mouillant), R est égal au rayon R_c du tube capillaire. La relation entre les deux rayons est donc donnée par :

$$R = \frac{R_c}{\cos \theta_e} \quad \text{Eq.I. 32}$$

La pression sous l'interface est donnée par la Loi de Laplace (au point A de la Fig. I.18) :

$$P_A = P_0 - \frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{R_c} \quad \text{Eq.I. 33}$$

P_0 est la pression atmosphérique et P_A est la pression au point A du ménisque.

Au point B ($z = 0$), la pression vaut P_0 d'où l'équilibre de pressions entre A et B qui s'écrit :

$$P_0 - \rho g H_J = P_0 - \frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{R_c} \quad \text{Eq.I. 34}$$

La hauteur d'équilibre de Jurin est alors obtenue :

$$H_J = \frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{R_c \rho g} \quad \text{Eq.I. 35}$$

L'équilibre de Jurin (visuel) est équivalent à l'équilibre de Wilhelmy (pesée). En effet la masse de la colonne du liquide à l'équilibre s'écrit :

$$m_W = \rho \pi R_c^2 H_J \quad \text{Eq.I. 36}$$

En remplaçant H_J par sa valeur (Eq.I. 35) dans l'Eq.I. 36, l'équilibre de Wilhelmy s'écrit :

$$m_W = \frac{2\pi R_c \gamma_L \cos\theta_e}{g} \quad \text{Eq.I. 37}$$

Dans le cas d'une étude par pesée, la masse mesurée par la microbalance prend en compte un ménisque du liquide qui se forme autour de la paroi extérieure du tube (Fig. I.19). Une correction de la masse mesurée est alors nécessaire. La détermination de cette correction est importante pour la suite de l'étude surtout pour le cas où la mesure visuelle est difficile à réaliser.

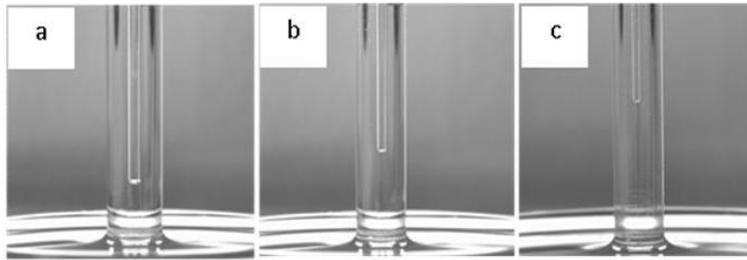


Fig. I.19 : Images à l'équilibre de l'ascension de l'huile silicone à 0,02 Pa.s dans différents tubes capillaires : a) $R_c = 0,6$ mm ; b) $R_c = 0,4$ mm et c) $R_c = 0,3$ mm

I.6.4 Résultats

I.6.4.1 Equilibre d'un ménisque autour d'un tube cylindrique

Cette étude a pour but d'apporter une correction sur la masse totale mesurée au tensiomètre d'un liquide en remontée capillaire dans un tube creux.

Trois tubes capillaires cylindriques en verre de rayons intérieurs/extérieurs respectifs 0,3/2,5 mm, 0,4/3 mm et 0,6/3,5 mm sont utilisés pour l'étude de l'équilibre de l'ascension capillaire de trois huiles silicones (47V20, 47V100 et 47V1000) à $T = 25^\circ\text{C}$. Les tubes ont été obstrués à l'intérieur, accrochés sur la microbalance puis mis en contact avec le liquide dans le réservoir (Fig. I.20). La détection visuelle de la hauteur d'équilibre se fait grâce à la caméra qui donne une position du ménisque en pixel. La conversion des pixels en millimètres donne une hauteur du ménisque à l'équilibre en mm, ce qui implique une erreur de mesure estimée à ± 1 pixel ($\pm 0,05$ mm).

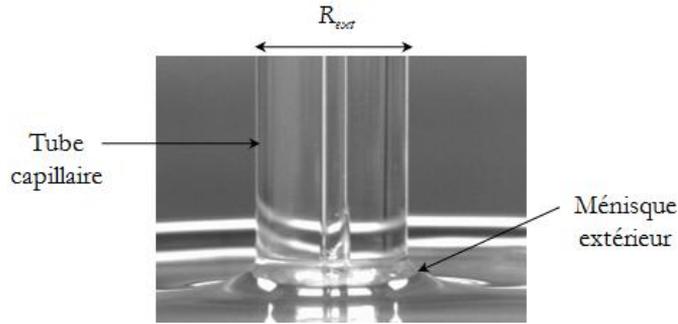


Fig. I.20 : Ménisque extérieur d'un liquide à l'équilibre autour d'un tube capillaire

L'angle de contact à l'équilibre est déduit de la hauteur d'équilibre de Jurin (détection visuelle) et du principe de Wilhelmy pour l'étude en pesée. Les deux méthodes donnent des valeurs assez proches (Tab.I. 7).

Liquides	R_{ext} (mm)	$m_{\acute{e}q}$ pesée \pm $1,10^{-4}$ (g)	$H_{\acute{e}q}$ pesée \pm $5,10^{-3}$ (mm)	θ_e pesée ± 3 ($^{\circ}$)	$H_{\acute{e}q}$ visuel \pm 0,05 (mm)	θ_e visuel ± 5 ($^{\circ}$)
Huile silicone 47V20	2,5	0,0329	1,77	3	1,75	5
	3,0	0,0396	1,47	3	1,46	5
	3,5	0,0461	1,26	5	1,25	5
Huile silicone 47V100	2,5	0,0329	1,73	8	1,74	10
	3,0	0,0393	1,44	10	1,45	11
	3,5	0,0460	1,23	8	1,25	9
Huile silicone 47V1000	2,5	0,0327	1,72	12	1,73	13
	3,0	0,0391	1,42	13	1,44	13
	3,5	0,0461	1,23	11	1,24	14

Tab.I. 7 : Résultats obtenus par la pesée et par la détection visuelle

On peut considérer que l'angle est nul, comme on l'attend des huiles silicone. En effet, une erreur de 2% sur la mesure de la hauteur donnerait un angle de 10° . Pour l'huile visqueuse, la dynamique d'ascension est lente sur la fin, ce qui peut conduire à une sous-estimation de la hauteur d'équilibre.

La masse du ménisque extérieur est par la suite retirée dans les expériences de la loi de Jurin et permet de corriger les mesures à l'équilibre obtenues par la pesée au tensiomètre.

1.6.4.2 Equilibre d'un ménisque à l'intérieur d'un tube capillaire cylindrique

Les résultats obtenus par la visualisation du ménisque du liquide à l'équilibre sont comparés ici à ceux déduits par la pesée corrigée réalisée grâce au tensiomètre K100 SF. La masse de la colonne de liquide à l'équilibre dans le tube est obtenue par la relation suivante :

$$m_{corr} = m_{K100 SF} - m_{m \acute{e}n ext} \quad \text{Eq.I. 38}$$

où m_{corr} est la masse de la colonne du liquide à l'équilibre dans le tube, $m_{K100 SF}$ est la masse totale du liquide mesurée par le tensiomètre et $m_{m \acute{e}n ext}$ est la masse du ménisque du liquide formé à l'extérieur du tube.

La masse du ménisque extérieur déjà mesurée (Tab.I. 7) est utilisée pour déterminer m_{corr} dont les valeurs sont données dans la Tab.I. 8.

Liquides	R_c (mm)	R_{ext} (mm)	$m_{K100 SF} \pm 1.10^{-4}$ (g)	$m_{m \acute{e}n ext} \pm 1.10^{-4}$ (g)	$m_{corr} \pm 2.10^{-4}$ (g)
47V20	0,30	2,5	$3,69.10^{-2}$	$3,29.10^{-2}$	$4,0.10^{-3}$
	0,40	3,0	$4,44.10^{-2}$	$3,96.10^{-2}$	$4,8.10^{-3}$
	0,60	3,5	$5,39.10^{-2}$	$4,61.10^{-2}$	$7,9.10^{-3}$
47V100	0,30	2,5	$3,68.10^{-2}$	$3,29.10^{-2}$	$3,9.10^{-3}$
	0,40	3,0	$4,45.10^{-2}$	$3,93.10^{-2}$	$5,2.10^{-3}$
	0,60	3,5	$5,38.10^{-2}$	$4,60.10^{-2}$	$7,8.10^{-3}$
47V1000	0,30	2,5	$3,63.10^{-2}$	$3,27.10^{-2}$	$3,6.10^{-3}$
	0,40	3,0	$4,40.10^{-2}$	$3,91.10^{-2}$	$4,9.10^{-3}$
	0,60	3,5	$5,41.10^{-2}$	$4,61.10^{-2}$	$8,0.10^{-3}$

Tab.I. 8 : Correction expérimentale des résultats obtenus par la pesée

Il est maintenant possible de comparer les hauteurs de Jurin obtenues par visualisation et celles obtenues par pesée par :

$$H_{\acute{e}quilibre} = \frac{m_{corr}}{\rho \pi R_c^2} \quad \text{Eq.I. 39}$$

La hauteur de la colonne de liquide et son angle de contact à l'équilibre avec la paroi intérieure du tube capillaire donnés par la pesée sont comparés aux résultats obtenus par la visualisation dans la Tab.I. 9 .

Liquides	R_c (mm)	R_{ext} (mm)	$m_{\acute{e}q}$ pesée corrigée \pm 2.10^{-4} (g)	$H_{\acute{e}q}$ pesée \pm 1.10^{-2} (mm)	θ_e pesée ± 5 (°)	$H_{\acute{e}q}$ visuel \pm 5.10^{-2} (mm)	θ_e visuel ± 5 (°)
47V20	0,3	2,5	$4,0.10^{-3}$	14,70	5	14,69	5
	0,4	3,0	$4,8.10^{-3}$	10,12	23	10,90	10
	0,6	3,5	$7,9.10^{-3}$	7,33	6	7,35	5
47V100	0,3	2,5	$3,9.10^{-3}$	14,29	14	14,42	12
	0,4	3,0	$5,2.10^{-3}$	10,78	12	10,80	12
	0,6	3,5	$7,8.10^{-3}$	7,15	14	7,26	99
47V1000	0,3	2,5	$3,6.10^{-3}$	13,12	27	13,43	25
	0,4	3,0	$4,9.10^{-3}$	10,05	25	9,97	26
	0,6	3,5	$8,0.10^{-3}$	7,29	9	7,17	14

Tab.I. 9 : Mesures de la masse à l'équilibre du liquide : comparaison pesée/visuel

La dynamique sous-jacente de l'ascension capillaire apparente sur les différentes courbes sera étudiée par la suite dans la partie dynamique du mouillage et de l'imprégnation.

Les angles de contact à l'équilibre obtenus par la détection visuelle sont déduits par l'équilibre de Jurin :

$$\theta_e = \cos^{-1} \left(\frac{\rho g R_c H_{\acute{e}q}}{2\gamma_L} \right) \quad \text{Eq.I. 40}$$

Ceux déterminés par la pesée sont déduits par le principe de Wilhelmy :

$$\theta_e = \cos^{-1} \left(\frac{g m_{\acute{e}q}}{2\pi R_c \gamma_L} \right) \quad \text{Eq.I. 41}$$

Les valeurs des angles de contact données par les deux méthodes sont assez proches et vérifient les résultats obtenus précédemment dans les cas des tubes cylindriques obstrués (Tab.I. 7) pour les deux huiles silicones 47V20 et 47V100. Pour l'huile silicone 47V1000, la différence avec les tubes obstrués est due au fait que l'équilibre n'est pas atteint. La vitesse de l'ascension de cette huile est beaucoup plus lente du fait de sa viscosité relativement élevée.

Les résultats obtenus par la visualisation sont généralement plus fiables et plus sûrs dans la mesure où ils ne nécessitent pas de correction. Pour l'étude en pesée, il faudrait choisir une sensibilité plus élevée pour avoir une meilleure précision sur les mesures. Le risque qu'il peut y avoir pour cette méthode est la sensibilité aux bruits extérieurs. Ces constatations montrent

qu'une vérification visuelle est importante pour valider les résultats obtenus par la pesée mais surtout pour choisir la sensibilité de mesure la plus appropriée (une erreur de 10^{-3} g modifie l'angle à l'équilibre d'environ $\sim 20^\circ$!).

I.7 Equilibre d'un ménisque liquide autour d'une fibre

Une fibre ou un fil en contact avec un bain de liquide mouillant conduit à une ascension capillaire instantanée par l'intermédiaire d'un ménisque (Fig. I.21). Dans le cas d'une fibre de rayon b inférieur à la longueur capillaire κ^{-1} , les forces de gravité sont négligeables. Ceci s'applique dans la plupart des cas étudiés ici ($b \sim 10 \mu\text{m}$ et $\kappa^{-1} \sim 1 \text{ mm}$). La visualisation est alors la méthode adéquate et généralement utilisée pour la détermination de l'angle de contact entre une fibre et un liquide donné.

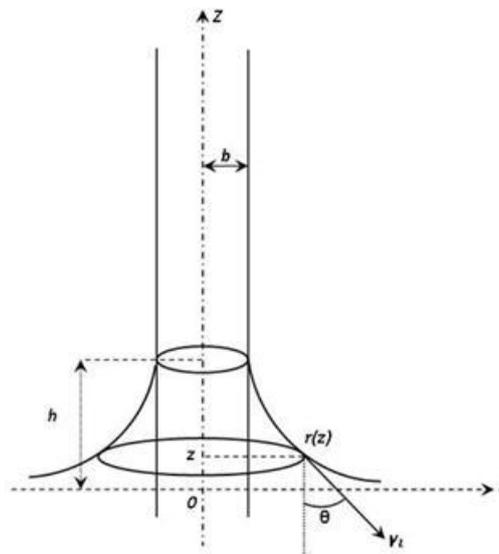


Fig. I.21 : Ménisque autour d'une fibre

Une étude expérimentale et une approche analytique proposées par Quéré et Di Meglio (Quéré et Di Meglio, The meniscus on fibre 1994) permettent de déterminer la hauteur d'équilibre d'un ménisque liquide parfaitement mouillant autour d'une fibre.

Les forces au voisinage du contact ménisque/fibre sont :

- La force capillaire qui s'exerce sur le contour extérieur du ménisque (interface liquide/air) est donnée par :

$$f_{c1} = 2\pi r(z)\gamma_L \cos\theta \quad \text{Eq.I. 42}$$

- La force capillaire exercée par la fibre sur le liquide (interface solide/liquide) s'écrit :

$$f_{c2} = -2\pi b\gamma_L \quad \text{Eq.I. 43}$$

- La force de pression sur la couronne de liquide de petit rayon b et de grand rayon z :

$$f_p = -\Delta p\pi(r(z)^2 - b^2) \quad \text{Eq.I. 44}$$

avec Δp , la dépression de Laplace.

Le bilan des forces à l'équilibre au voisinage du contact conduit à :

$$f_{c1} + f_{c2} + f_p = 0 \quad \text{Eq.I. 45}$$

Le ménisque de liquide est en équilibre avec le bain de liquide, d'où $\Delta p = 0$. Par conséquent, la force de pression sur la couronne liquide, f_p , est nulle.

En remplaçant chaque force par son expression dans l'Eq.I. 45 :

$$r(z)\cos\theta = b \quad \text{Eq.I. 46}$$

L'écriture de la relation de Laplace dans le système de coordonnées curvilignes, en considérant s , la coordonnée curviligne le long de la courbure et θ , l'angle de la normale de la courbure avec la verticale, permet de noter :

$$r(z) = R_2\cos\theta \quad \text{Eq.I. 47}$$

$$ds = -R_1d\theta \quad \text{Eq.I. 48}$$

La relation de Laplace devient :

$$-\frac{d\theta}{ds} + \frac{\cos\theta}{r(z)} = \frac{\Delta p}{\gamma_L} = 0 \quad \text{Eq.I. 49}$$

Les variations des coordonnées $r(z)$ et z s'écrivent dans le système de coordonnées curvilignes :

$$dr(z) = ds \sin\theta \text{ et } dz = ds \cos\theta \quad \text{Eq.I. 50}$$

Il en résulte :

$$\frac{dr(z)}{dz} = \dot{r}(z) = \frac{\sin\theta}{\cos\theta} = \tan\theta \quad \text{Eq.I. 51}$$

$$ds = dz\sqrt{1 + \dot{r}^2(z)} \quad \text{Eq.I. 52}$$

soit :

$$\frac{dz}{ds} = \cos\theta = \frac{1}{\sqrt{1 + \dot{r}^2(z)}} \quad \text{Eq.I. 53}$$

Finalement, l'équation de mouvement est obtenue en injectant Eq.I. 53 dans l'équation-bilan Eq.I. 46 :

$$b = \frac{r(z)}{\sqrt{1 + \dot{r}^2(z)}} \quad \text{Eq.I. 54}$$

Dans le cas d'un liquide parfaitement mouillant, la solution de cette équation s'écrit dans le système de coordonnées (r, θ) :

$$r(z) = b \cosh \frac{z - h}{b} \quad \text{Eq.I. 55}$$

avec h , la constante d'intégration qui est la hauteur du ménisque ($r(z = h) = b$).

Le calcul précédent a été réalisé en négligeant la gravité ce qui conduit à une limitation de l'extension latérale du ménisque par la taille du réservoir. En pratique, la gravité limite l'extension du ménisque si la taille du réservoir est grande devant la longueur capillaire κ^{-1} . L'extension latérale du ménisque est ainsi limitée par cette longueur. En considérant $r(z = 0) \sim \kappa^{-1}$ et $h \gg b$, la hauteur du ménisque est donnée par :

$$h = b \ln \left(\frac{2\kappa^{-1}}{b} \right) \quad \text{Eq.I. 56}$$

Ce raisonnement reste valable pour un rayon de fibre très inférieur par rapport à la longueur capillaire. Par exemple, pour une fibre de verre de rayon $b \sim 15 \mu\text{m}$ en contact avec du n-heptane ($\kappa^{-1} \sim 1,74 \text{ mm}$), la hauteur d'équilibre du ménisque vaut suivant ce modèle : $h \sim 81 \mu\text{m}$.

Du point de vue expérimental, les masses des ménisques mises en jeu sont trop faibles pour être mesurées directement avec le tensiomètre. La détermination des angles de contact à l'équilibre apparent entre une fibre et un liquide par pesée se fait par extrapolation des mesures obtenues en dynamique. En effet, pour des faibles vitesses d'immersion de la fibre, le ménisque dynamique peut être assimilé au ménisque statique. Cette méthode est développée dans le chapitre II.

I.8 Détermination du diamètre moyen d'une fibre en quasi-statique

L'utilisation d'un liquide parfaitement mouillant (n-heptane ici) permet de déterminer par extrapolation le diamètre moyen b d'une fibre par la méthode de Wilhelmy. Des essais sur des fibres de verre, de carbone et de lin ont été réalisés. Les diamètres sont d'abord déterminés avec un microscope optique. Le diamètre moyen obtenu par la visualisation au microscope est la moyenne de trois mesures des diamètres locaux à des endroits différents de la fibre partant de son extrémité jusqu'à une longueur correspondante à la longueur maximale supposée de son immersion dans l'heptane. La caractérisation du diamètre par la pesée de Wilhelmy (Paragraphe I.5.1.3) au tensiomètre est réalisée avec une sensibilité de mesure de 10^{-5} g pour une vitesse d'immersion égale à 1 mm/min à une température $T \approx 25^\circ\text{C}$.

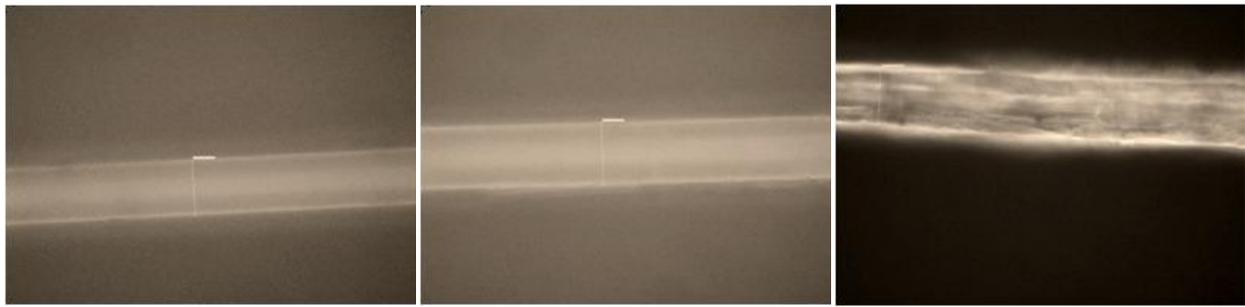
La valeur moyenne du diamètre de la fibre est obtenue par extrapolation jusqu'à l'ordonnée à l'origine des points expérimentaux de la force mesurée en fonction de la profondeur d'immersion de la fibre.

En effet, pour une profondeur d'immersion nulle, les forces d'Archimède sont négligées et le diamètre de la fibre est alors donné par la relation de Wilhelmy :

$$2b = \frac{F}{\pi\gamma_L} \quad \text{Eq.I. 57}$$

avec F , la force de ménisque de l'heptane pour une profondeur d'immersion nulle.

Pour chaque famille de fibres (verre UD, verre Roving et lin), trois fibres distinctes sont testées (Fig. I.22).



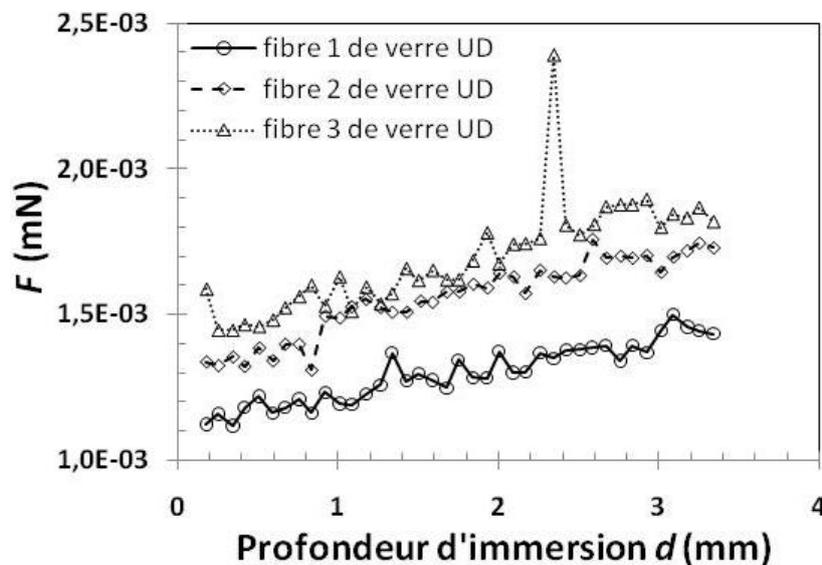
a) Fibre 3 de verre Roving

b) Fibre 3 de verre UD

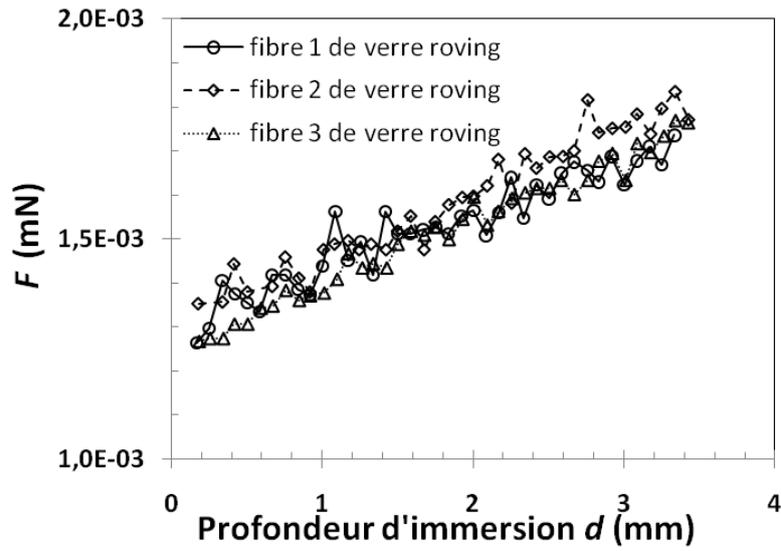
c) Fibre 3 de lin

Fig. I.22 : Images des fibres au microscope optique

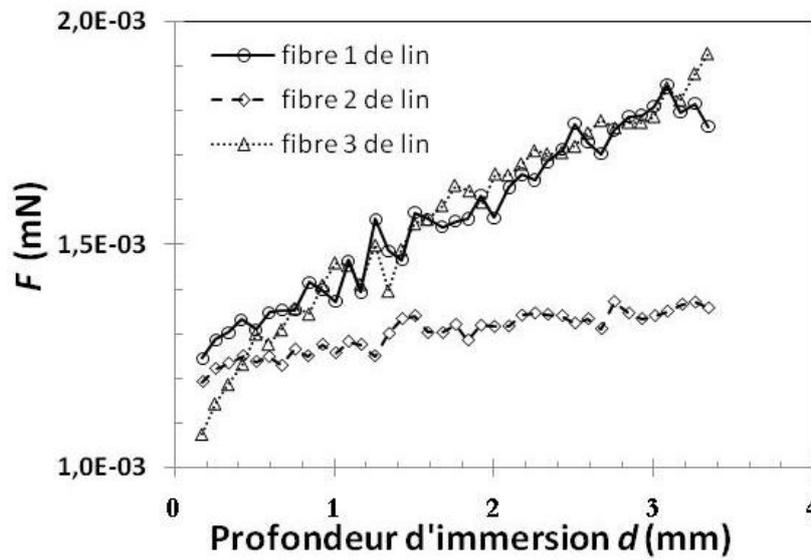
Les courbes obtenues sont répertoriées sur la Fig. I.23.



a) Fibres de verre UD



b) Fibres de verre Roving



c) Fibres de lin

Fig. I.23 : Détermination des diamètres moyens des fibres par la pesée de Wilhelmy

Les valeurs des diamètres déterminés par visualisation et ceux déduits par la pesée sont comparés dans la Tab.I. 9.

Fibres	N°	Mesure visuelle au microscope (μm)	Mesure par pesée au K100SF (μm)
Verre Roving	Fibre 1	$19,6 \pm 0,5$	$20,7 \pm 0,5$
	Fibre 2	$21,4 \pm 0,4$	$20,7 \pm 0,5$
	Fibre 3	$19,9 \pm 0,4$	$19,8 \pm 0,5$
Verre UD	Fibre 1	$16,9 \pm 0,1$	$17,7 \pm 0,4$
	Fibre 2	$18,6 \pm 0,3$	$20,9 \pm 0,5$
	Fibre 3	$22,8 \pm 0,2$	$22,6 \pm 0,6$
Lin	Fibre 1	$19,8 \pm 0,4$	$19,6 \pm 0,5$
	Fibre 2	$20,9 \pm 0,2$	$19,3 \pm 0,5$
	Fibre 3	$22,3 \pm 0,2$	$18,4 \pm 0,5$

Tab.I. 9: Diamètres des fibres mesurés par visualisation (microscope optique) et déduits par pesée (tensiomètre)

Les diamètres moyens obtenus par les deux méthodes sont assez proches pour les fibres de verre Roving et les fibres de verre UD. L'approximation est moins bonne dans le cas de certaines fibres de lin à cause de la variation du diamètre d'une fibre unitaire, de son état de surface et de sa rugosité (Fig. I.22 c).

I.9 Conclusion

Ce chapitre a permis de valider les méthodes et les outils utilisés pour caractériser les tensions de surface des liquides ainsi que leurs propriétés liées au contact avec des surfaces solides modèles à l'équilibre apparent. Ces valeurs mesurées et validées sont utilisées pour la suite des études expérimentales.

L'emploi de certains liquides ou solides obligent à invalider certaines méthodes par manque de précision. Par exemple, pour l'équilibre d'une goutte de liquide sur un substrat, il est difficile d'avoir des gouttes microscopiques et d'observer leur équilibre à cette échelle ou encore il n'est pas possible d'utiliser le tensiomètre à disposition afin de déterminer directement l'angle de contact et la hauteur d'équilibre d'un ménisque liquide autour d'une fibre.

Quelques approches sont alors employées afin de déduire certaines grandeurs. C'est le cas d'une approche macroscopique pour le premier exemple où une goutte peut être caractérisée par son rayon millimétrique inférieur à sa longueur capillaire.

Pour le deuxième exemple (relaxation du ménisque autour d'une fibre), il est possible d'extrapoler les mesures en dynamique et d'en déduire le contact à l'équilibre en supposant que pour de faibles vitesses d'immersion d'une fibre, le ménisque dynamique est égal au ménisque statique.

Il est généralement possible de comparer les données commerciales ou, plus largement, de la bibliographie et les valeurs expérimentales mesurées ou déduites d'une ou plusieurs méthodes. La concordance est alors généralement constatée.

Chapitre II : dynamique de la mouillabilité et de l'imprégnation

II.1 Introduction

La dynamique du mouillage concerne le déplacement de la ligne de contact triple entre une surface solide, un liquide et la vapeur ou l'air environnant avant d'atteindre l'équilibre. Le comportement de cette ligne est souvent décrit par les angles de contact appelés « angles de contact dynamiques » formés par les trois phases en un point commun (point triple). L'angle de contact dynamique noté θ_d est donc l'un des paramètres-clés permettant de décrire les mécanismes d'étalement d'un liquide sur une surface solide. Généralement, l'étalement ou le mouillage en dynamique est décrit par un angle à l'avancée du liquide souvent noté θ_a sur une surface solide initialement sèche ou prémouillée. Le retrait ou le démouillage est décrit par un angle de retrait du liquide noté θ_r sur une surface solide déjà mouillée lors de l'avancée.

Deux cas peuvent être distingués pour la dynamique d'étalement d'un liquide sur une surface solide :

- Une dynamique spontanée (régime libre) de la ligne de contact due uniquement aux forces de tension de surface et aux forces de friction visqueuse dans le cas de petites gouttes, ie de dimension inférieure à la longueur capillaire. Dans le cas d'un volume de liquide plus important (dimension supérieure à la longueur capillaire), la dynamique de l'avancée de la ligne triple résulte à la fois des effets capillaires, des effets visqueux et des effets gravitationnels. La dynamique d'étalement spontané est décrite par la relaxation de la courbure du ménisque au cours du temps.
- Un régime forcé où l'on impose une vitesse à la ligne de contact triple. Tout comme pour le régime libre, les forces qui conditionnent la dynamique de l'envahissement du liquide dépendent des dimensions géométriques des liquides et des solides. Les intensités relatives des forces mises en jeu pour la dynamique d'écoulement forcé ou imposé des liquides sont généralement décrites par un large nombre de paramètres. Cependant, une faible échelle géométrique permet de réduire considérablement ces nombres dans la mesure où les phénomènes de surface et de viscosité dominant en général les autres effets présents lors de l'écoulement.

Le nombre de Reynolds Re compare les effets inertiels aux effets visqueux. Le nombre capillaire Ca permet de comparer les effets visqueux aux effets de tension de surface. Le nombre de Bond Bo est donné comme le rapport entre les forces gravitationnelles et les forces de tension de

surface. La comparaison entre les effets inertiels et les effets gravitationnels est donnée par le nombre de Froude Fr . Le nombre de Weber We compare les effets des forces inertielles et ceux des forces de tension de surface.

Il est important de noter qu'une variation de la température ou l'ajout de surfactants au liquide, peut influencer les effets de la tension de surface (Chapitre I). Il est donc utile, dans ce cas, de considérer le nombre de Marangoni Ma qui prend en compte la variation de la tension de surface en fonction de la température ou en en fonction de la concentration du surfactant.

Dans ce chapitre, quelques lois de la dynamique de la mouillabilité sont introduites. Des essais expérimentaux en dynamique sont réalisés avec des liquides purs (sans surfactant) sur les surfaces solides caractérisés dans le Chapitre I, puis comparés aux modèles et aux résultats de la littérature. Dans cette partie, les mesures sont réalisées à une température de 25°C.

II.2 Régime spontané

Pour comprendre les mécanismes contrôlant la dynamique de mouillage, on considère généralement le cas simple de l'étalement d'une goutte de liquide sur une surface solide lisse et plane.

II.2.1 Dynamique d'étalement d'une goutte liquide sur un substrat solide

Quand une petite goutte de liquide, de diamètre faible devant sa longueur capillaire, est déposée sur une surface solide, les forces capillaires conduisent spontanément l'interface à l'équilibre. La goutte s'étale, son angle diminue de sa valeur initiale maximale qui est de 180° au moment du contact jusqu'à sa valeur d'équilibre de 0° pour un mouillage parfait ou $\theta_e > 0^\circ$ dans le cas d'un mouillage partiel.

Malgré la simplicité du système, il n'existe pas une approche complète et standard pour décrire la dynamique de l'étalement. Deux approches différentes ont été développées à ce sujet : la cinétique hydrodynamique (macroscopique) et la cinétique moléculaire (microscopique). Comme le profil de courbure de la goutte change au cours du temps, cela sous-entend que le système goutte-solide dissipe de l'énergie.

Le premier type d'approche basée sur la cinétique hydrodynamique considère que la dissipation d'énergie est générée par l'écoulement visqueux de la goutte lors de son étalement (Hoffman 1975), (Voinov 1976), (Tanner 1979) et (P. de Gennes 1985). Cette approche est basée

sur des lois d'échelles simples permettant de négliger les forces intermoléculaires au voisinage de la ligne triple. Dès lors, l'angle dynamique microscopique θ_m est assimilé à l'angle de contact à l'équilibre statique θ_e (Fig. II. 1). Ces considérations donnent une variation de l'angle de contact dynamique apparent au cours du temps sous la forme $\theta_d \sim t^{-3/10}$ et du rayon de base de la goutte en $R \sim t^{1/10}$.

La seconde approche, dérivant du modèle de Glasstone et al (Glasstone, Laidler et Eyring 1941) et du modèle de Frenkel (Frenkel 1946), est basée sur la cinétique moléculaire et s'intéresse à la dissipation d'énergie au voisinage de l'avancée de la ligne triple (solide/liquide/gaz) et plus particulièrement au collage ou au détachement des particules liquides de la surface solide (Dodge 1988), (Blake, Dynamic contact angle and wetting kinetics 1993), (Blake, Clarke, et al. 1997) et (de Ruijter, De Coninck et Blake, et al. 1997). Dans ce cas, la dissipation au voisinage de la couche moléculaire microscopique est assimilée à la dissipation dans l'écoulement visqueux de la goutte et l'angle dynamique microscopique $\theta_m = \theta_d$. Pour cette approche, $\theta_d \sim t^{-1/2}$ et $R \sim t^{1/7}$.

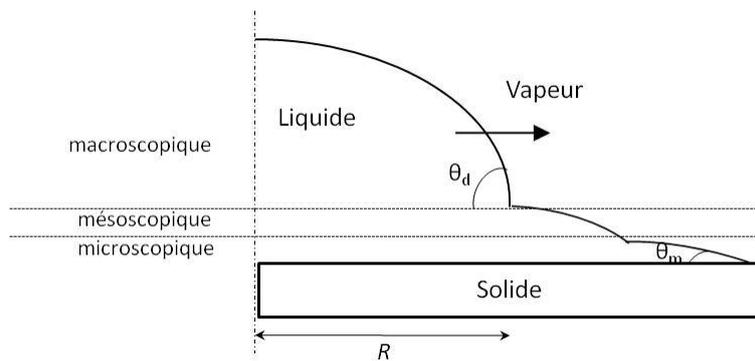


Fig. II. 1 : Etalement dynamique à trois échelles d'une goutte liquide sur une surface solide lisse et plane

En réalité, les deux aspects de dissipation hydrodynamique (macroscopique) et moléculaire (microscopique) existent simultanément et l'une des difficultés souvent rencontrée consiste à combiner ces deux approches. Par manque d'observations expérimentales à cette échelle, des simulations numériques ont été réalisées par de Ruijter et al (de Ruijter, De Coninck et Oshanin, Droplet spreading: partial wetting regime revisited 1999) et donnent des lois d'évolution de la forme $\theta_d \sim t^{-3/7}$ pour l'angle de contact dynamique et $R \sim t^{1/7}$ pour le rayon de base de la goutte.

Une étude expérimentale préliminaire de la dynamique d'étalement de gouttes de quelques liquides (dont les caractéristiques physiques ont été données dans le chapitre I) sur une surface lisse et plane de lame de microscope en verre est présentée dans cette partie.

Un exemple de l'étalement d'une goutte de glycérol 98% au cours du temps est donné sur la Fig. II. 2.

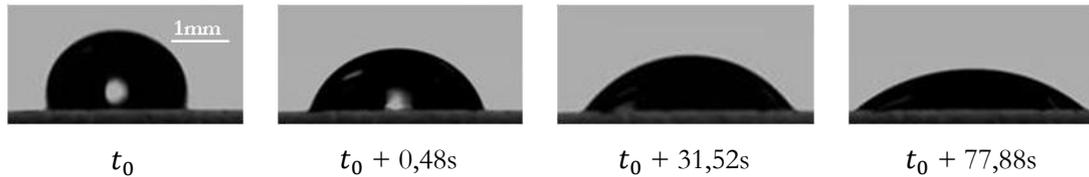


Fig. II. 2 : Images extraites de l'étalement d'une goutte de glycérol 98% sur une surface plane en verre au cours du temps

Les résultats de l'évolution du rayon de la goutte au contact de la surface du verre des deux huiles silicones 47V100 et 47V1000, du glycérol 98%, du mélange glycérol 98%/eau 15%, de l'Epoxy SR8100 et du Polyester Norsodyne S2010V sont donnés sur la Fig. II. 3. Les valeurs de R sont données avec une incertitude de $\pm 0,1$ mm et les volumes des gouttes testés varient de 3,9 à 5,6 mm³.

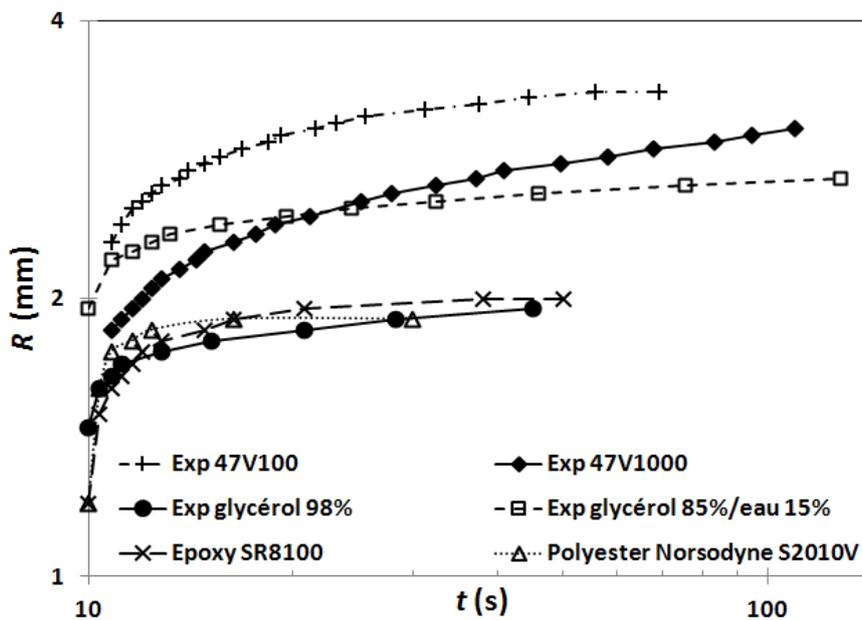


Fig. II. 3 : Résultats de l'évolution du rayon de goutte de quelques liquides R en fonction du temps

Pour les mêmes liquides, les résultats de l'évolution de l'angle dynamique apparent à l'avancée de la goutte sur la surface du verre en fonction du temps sont représentés sur la Fig. II.4. Les valeurs de l'angle dynamique sont données avec une incertitude de $\pm 5^\circ$.

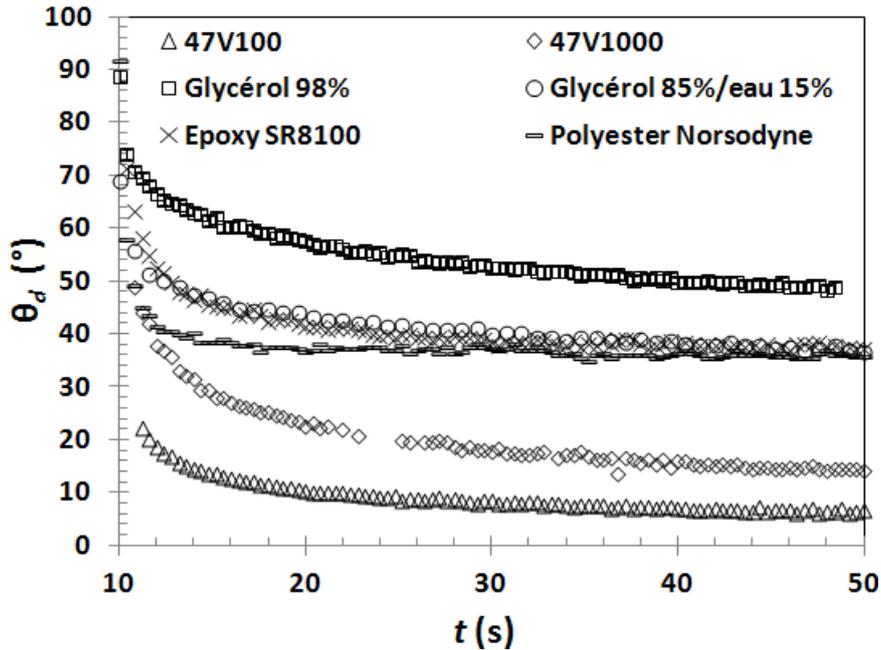


Fig. II. 4 : Résultats de l'évolution de l'angle de contact dynamique à l'avancée de la goutte sur la surface du verre θ_d en fonction du temps

En dynamique, la force capillaire est atténuée par une friction visqueuse au voisinage de la surface du solide. Cette atténuation provoque un aplatissement du ménisque d'où un affaiblissement de la force capillaire motrice ce qui explique les profils d'évolutions temporelles des rayons des gouttes (Fig. II. 3) et des angles dynamiques (Fig. II. 4) caractérisés par deux phases : aux temps courts, une relaxation instantanée et rapide a lieu et ensuite, une évolution plus lente à l'approche de l'équilibre.

Les résultats de l'évolution du rayon apparent de la goutte R en fonction du temps (Fig. II. 3) sont proches de ceux proposés par les des deux approches introduites ci-dessus : macroscopique où $R \sim t^{1/10}$ et microscopique où $R \sim t^{1/7}$.

Pour l'angle dynamique à l'avancée (Fig. II. 4), la relaxation temporelle dévie des deux développements (hydrodynamique macroscopique et moléculaire microscopique) essentiellement pour les deux huiles silicones et le glycérol 98%.

II.2.2 Relaxation de ménisque autour d'une fibre quasi-stationnaire

L'étalement spontané d'un liquide sur une fibre quasi-stationnaire verticale est généralement contrôlé par la relaxation du ménisque dynamique jusqu'au ménisque statique.

Pour des fibres de faibles diamètres (typiquement inférieurs à 100 μm), il est démontré que la loi d'évolution de l'angle de contact en fonction du temps diffère de la loi classique de Tanner-Voinov-de Gennes. Cette loi stipule que $\theta_d \sim Ca^{1/3}$, ce qui se traduit par $\theta_d \sim t^{-1/3}$ dans le cas d'une goutte posée. Cette démonstration est résumée ci-dessous.

En considérant la cinétique hydrodynamique et en négligeant la dissipation au voisinage de la ligne de contact, Quéré et Di Meglio (1994) donnent une évolution de l'angle dynamique apparent θ_d le long d'une fibre pour un liquide parfaitement mouillant ($\cos \theta_e = 1$). Le profil de relaxation de l'angle de contact à l'avancée est décrit par la loi exponentielle :

$$1 - \cos \theta_d \sim \exp(-t/\tau^*) \quad \text{Eq.II. 1}$$

avec τ^* , le temps caractéristique de relaxation.

La relaxation temporelle à l'avancée du ménisque dynamique dans l'approximation des faibles angles est alors donnée par :

$$\theta_d = \sqrt{\tau^*}(t)^{-1/2} \quad \text{avec } \tau^* = \frac{3\eta b l}{\gamma_L} \quad \text{Eq.II. 2}$$

avec η , la viscosité dynamique du liquide, b , le rayon de la fibre, γ_L , la tension de surface du liquide et l une constante empirique.

L'Eq.II. 2 montre que la relaxation dépend du rayon de la fibre, de la viscosité et de la tension de surface du liquide. Pour un même liquide, τ^* est proportionnel au rayon b (Huh et Scriven 1969). Cette loi de relaxation du ménisque a été confirmée par une étude expérimentale de Sauer et Kampert (Sauer et Kampert 1998). L'évolution de l'angle à l'avancée sur des fibres est donc plus élevée que celle prédites par la théorie $\theta_d \sim t^{-1/3}$ à cause de la courbure élevée du ménisque sur une fibre comparée à celle d'une goutte sur une surface classique.

En prenant en compte la cinétique moléculaire au voisinage de la ligne de contact, Seveno et De Coninck (Seveno et De Coninck 2004) montrent, par simulations numériques, qu'il existe deux échelles de temps reliées aux dissipations dans les deux couches : pour la cinétique moléculaire, la loi de relaxation est caractérisée par l'évolution $\theta_d \sim t^{-1}$ et pour la dissipation hydrodynamique, cette loi est décrite par $\theta_d \sim t^{-1/2}$.

Pour notre étude expérimentale concernant les fibres de rayon d'ordre de grandeur $10\ \mu\text{m}$, en l'absence de suivi d'évolution visuelle de la relaxation du ménisque autour d'une fibre et pour la limitation en sensibilité de mesure en pesée par la microbalance utilisée, nous nous limiterons à une analyse par déduction et extrapolation des résultats obtenus pour un régime forcé (vitesse du liquide imposée) à des vitesses si faibles que le système peut être considéré comme quasi-stationnaire. Les mesures sur les fibres sont donc détaillées dans le paragraphe II.3 sur le régime forcé.

L'étalement spontané des liquides sur des surfaces solides lisses et de géométries classiques (plane et cylindrique) étant introduit, il est utile de s'intéresser, maintenant, à la dynamique de progression spontanée dans un tube creux, qui modélise de manière très simple une porosité.

II.2.3 Imprégnation capillaire

L'imprégnation est « la pénétration d'une substance (généralement à l'état fluide) dans la matière d'un corps à l'intérieur duquel elle se répand de façon diffuse » (Lexicographie s.d.)

II.2.3.1 *Loi de Washburn*

La cinétique d'imprégnation spontanée dans un tube de dimension inférieure à la longueur capillaire du liquide imprégnant est décrite par la loi de Washburn (Washburn 1921).

L'avantage d'un tube cylindrique est que son rayon capillaire est égal à son rayon hydrodynamique, ce qui permet de s'affranchir des contraintes géométriques rencontrées dans un milieu poreux.

Si l'on considère un tube capillaire de rayon R_c placé au contact d'un réservoir de liquide, alors la force capillaire à l'équilibre responsable de la remontée du liquide dans le tube s'écrit :

$$F_c = 2\pi R_c \gamma_L \cos \theta_e \quad \text{Eq.II. 3}$$

ou encore en utilisant l'équation de Young :

$$F_c = 2\pi R_c (\gamma_S - \gamma_{SL}) \quad \text{Eq.II. 4}$$

Si le tube est vertical, l'équation de mouvement fait intervenir cette force et le poids de la colonne du liquide. C'est la loi de Jurin. Les vitesses qui rentrent en jeu sont en général faibles du fait que deux forces s'opposent : la force capillaire F_c et la force de friction visqueuse F_η donnée par la loi d'écoulement de Poiseuille :

$$F_\eta = 8\pi\eta v h \quad \text{Eq.II. 5}$$

où η est la viscosité dynamique du liquide, $v = dh/dt$ est la vitesse de remontée du liquide et h est la position du ménisque du liquide à l'instant t de sa progression (inférieure à la longueur d'équilibre de Jurin).

Le poids de la colonne du liquide s'écrit :

$$P = \rho g \pi R_c^2 h \quad \text{Eq.II. 6}$$

avec ρ , la masse volumique du liquide et g , l'accélération de la pesanteur. L'équation du mouvement est obtenue grâce à l'équilibre des forces :

$$F_\eta = F_c - P \quad \text{Eq.II. 7}$$

d'où la relation de Washburn généralisée :

$$\frac{dh}{dt} = \frac{R_c^2}{8\eta h} \left(\frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{R_c} - \rho g h \right) \quad \text{Eq.II. 8}$$

Dans ce problème tout comme dans les problèmes d'imprégnation plus généralement, l'effet de l'inertie est négligeable devant la force visqueuse, du fait que les liquides avancent à des échelles inférieures à la hauteur d'équilibre de Jurin.

On note que cette équation dépend du temps vu que la force visqueuse et le poids de la colonne du liquide en dépendent (la hauteur h et la vitesse v dépendent du temps).

L'intégration de l'Eq.II.8 conduit à une relation qui s'écrit sous la forme :

$$at = -bh - \ln(1 - bh) \quad \text{Eq.II. 9}$$

avec, $a = \rho^2 g^2 R_c^3 / (16\gamma_L \eta \cos \theta_e)$ et $b = \rho g R_c / (2\gamma_L \cos \theta_e)$.

La hauteur d'équilibre h_j dite de Jurin est atteinte quand la pression capillaire est équilibrée par la pression hydrostatique :

$$h_j = \frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{\rho g R_c} \quad \text{Eq.II. 10}$$

Notons que $h_j = 1/b$ et la solution (Eq.II.9) de la loi de Washburn (Eq.II.8) peut donc s'écrire sous la forme :

$$\frac{h}{h_j} + \ln \left(1 - \frac{h}{h_j} \right) = - \frac{R_c \gamma_L \cos \theta_e}{4\eta h_j^2} t \quad \text{Eq.II. 11}$$

Si la gravité n'est pas prise en compte (par exemple pour un tube horizontal) ou négligeable (dans le cas où $h \ll h_j$), l'équilibre des forces se réduit à :

$$h \frac{dh}{dt} = \frac{R_c \gamma_L \cos \theta_e}{4\eta} \quad \text{Eq.II. 12}$$

L'intégration de cette relation se simplifie alors à une loi diffusive pour $h \ll h_j$ qui s'écrit :

$$h^2(t) = \frac{R_c \gamma_L \cos \theta_e}{2\eta} t \quad \text{Eq.II. 13}$$

Cette loi n'a pas de signification physique aux temps très courts quand $t \rightarrow 0$ car la vitesse dh/dt tend alors vers l'infini. En réalité, il faut tenir compte du régime inertiel au démarrage lié à l'énergie cinétique.

Quéré (Quéré, Inertial capillarity 1997) considère que seules les forces capillaires interviennent dans les temps très courts. La loi de Quéré s'écrit alors :

$$\frac{dp}{dt} = 2\pi R_c \gamma_L \cos \theta_e ; p = m \frac{dh}{dt} ; m = \rho h \pi R_c^2 \quad \text{Eq.II. 14}$$

avec p , la quantité de mouvement du liquide et m , la masse de la colonne du liquide.

La relation précédente (Eq.II. 14) s'écrit alors :

$$\left(\frac{dh}{dt}\right)^2 + h \left(\frac{d^2h}{dt^2}\right) = \frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{\rho R_c} \quad \text{Eq.II. 15}$$

Pour les temps courts ($t \rightarrow 0$), la vitesse de progression C est constante et vaut :

$$C = \left(\frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{\rho R_c}\right)^{1/2} \quad \text{Eq.II. 16}$$

Il en résulte que pour un liquide en ascension capillaire dans un tube, la pression capillaire est équilibrée par la pression inertielle, la pression visqueuse et la pression hydrostatique :

$$\frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{R_c} = \rho \left(\frac{dh}{dt}\right)^2 + \rho h \left(\frac{d^2h}{dt^2}\right) + \frac{8\eta}{R_c^2} h \frac{dh}{dt} + \rho g h \quad \text{Eq.II. 17}$$

Fries et Dreyer (Fries et Dreyer 2008) proposent des solutions analytiques de l'Eq.II.17 selon les différents régimes d'ascension de liquide délimités par des temps caractéristiques.

Régimes de l'ascension capillaire

Régime purement inertiel

Pour les premiers instants après le contact du tube avec le liquide, la loi de Quéré (1997) donne la hauteur du liquide :

$$h = \left(\frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{\rho R_c}\right)^{1/2} t \quad \text{Eq.II. 18}$$

Cette loi reste valable jusqu'à un temps τ_1 à partir duquel un régime visco-inertiel apparaît.

Régime visco-inertiel

Bosanquet (Bosanquet 1923) donne la solution analytique résultante de l'équilibre entre les forces inertielles et les forces visqueuses et obtient :

$$h^2 = \frac{2c}{d} \left[t - \frac{1}{c} (1 - e^{-ct}) \right] \quad \text{Eq.II. 19}$$

avec $c = 8\eta/(\rho R_c^2)$ et $d = 2\gamma_L \cos \theta_e/(\rho R_c)$. Le temps de transition τ_1 entre le régime purement inertiel de Quéré (1997) et le régime visco-inertiel de Bosanquet (1923) est obtenu en équilibrant les hauteurs données par Eq.II.18 et Eq.II.19 pour $t = \tau_1$ avec une déviation de 3% (Fries et Dreyer, 2008). Le temps de transition obtenu est donné par :

$$\tau_1 = \frac{0,1856}{c} \quad \text{Eq.II. 20}$$

soit la hauteur de transition h_1 (en injectant Eq.II.20 dans Eq.19) :

$$h_1 = \frac{0,18\sqrt{d}}{c} \quad \text{Eq.II. 21}$$

Ce régime peut être pris en compte jusqu'à un temps caractéristique de transition noté τ_2 . Le régime visco-inertiel peut être négligé pour un rayon capillaire relativement petit. Par exemple pour une huile silicone 47V100, $\tau_1 \approx 2 \cdot 10^{-9}$ s et $\tau_1 \approx 2 \cdot 10^{-4}$ s pour des rayons capillaires respectifs de 1 μm et de 1 mm.

Régime purement visqueux

Un régime purement visqueux a ensuite lieu. La hauteur du liquide suit une loi diffusive en fonction du temps donnée par l'Eq.II.13.

Le temps de transition τ_2 entre le régime visco-inertiel et le régime purement visqueux est déterminé en équilibrant les hauteurs données par le modèle de Bosanquet Eq.II.19 et la loi diffusive de Washburn Eq.II.13 à cet instant avec une incertitude de 3% (Fries et Dreyer, 2008).

Le temps de transition τ_2 est :

$$\tau_2 = \frac{16,921}{c} \quad \text{Eq.II. 22}$$

soit la hauteur de transition h_2 (en injectant Eq.II.22 dans Eq.19) :

$$h_2 = \frac{5,6429\sqrt{d}}{c} \quad \text{Eq.II. 23}$$

Le régime purement visqueux est considéré jusqu'à une hauteur $h = 0,1 \cdot h_j$ (Fries et Dreyer, 2008). En général, cette hauteur est petite par rapport au rayon du tube (sauf si le liquide est très peu visqueux) et on peut négliger l'inertie du liquide dans le problème.

Régime visco-gravitationnel

Pour une hauteur de liquide supérieure à $0,1.h_j$, les effets gravitationnels ne sont plus négligeables et l'évolution de la hauteur du liquide en fonction du temps suit la loi :

$$h = \frac{\alpha}{\beta} \left[1 - e^{-\frac{\beta^2}{\alpha}t} \right] \tag{Eq.II. 24}$$

avec $\alpha = \gamma_L R_c \cos \theta_e / (4\eta)$ et $\beta = \rho g R_c^2 / (8\eta)$.

Etude expérimentale

L'étude expérimentale consiste à valider la dynamique de la progression capillaire de trois huiles silicone 47V20, 47V100 et 47V1000 (de viscosités dynamiques respectives à 25°C : 0,02 Pa.s, 0,1 Pa.s et 1 Pa.s). Trois tubes capillaires cylindriques en verre de rayons intérieurs respectifs 0,3 mm, 0,4 mm et 0,6 mm sont utilisés. L'étude de l'évolution du front du liquide en fonction du temps est effectuée par la pesée grâce à la microbalance K100 SF et par détection visuelle avec une caméra. La correction des résultats en pesée par la prise en compte du ménisque formé sur la paroi extérieure du tube est utilisée (Chapitre I).

Le carré de la hauteur h d'ascension dans un tube en fonction du temps pour la silicone 47V100 dans les trois tubes est présenté sur la Fig. II. 5.

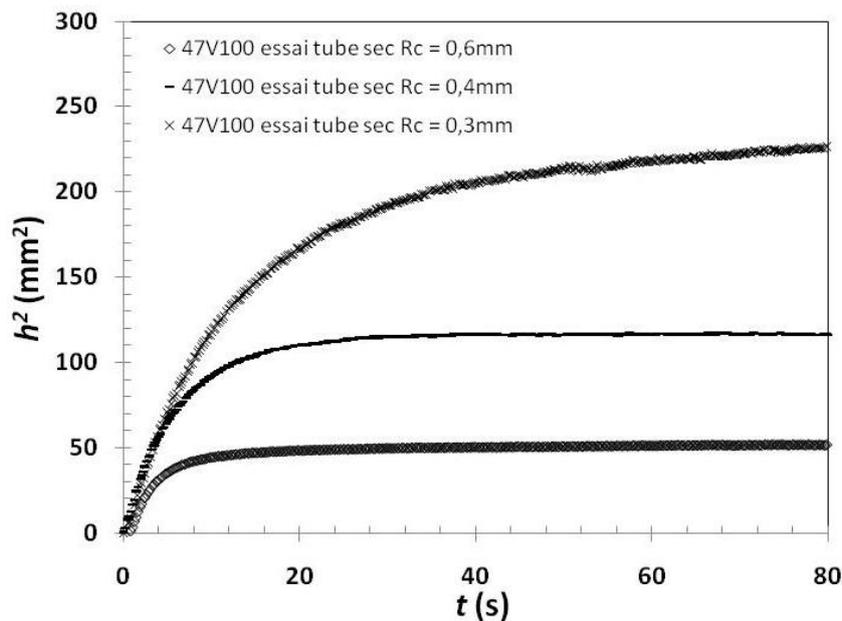


Fig. II. 5 : Ascension capillaire de l'huile silicone 47V100 dans trois tubes cylindriques

Pour des temps courts, l'ascension du liquide se fait de manière rapide puis ralentit sous l'effet de son poids jusqu'à la hauteur d'équilibre de Jurin. Comme prévu par la relation de Washburn

simplifiée (Eq.II.9) et confirmé par les résultats de la Fig.II.5, un liquide monte plus vite mais moins haut dans un gros tube que dans un tube étroit. La cinétique de la progression capillaire est donc proportionnelle au rayon du tube.

Pour des liquides de même tension de surface, la cinétique de d'ascension est inversement proportionnelle à leurs viscosités (Fig.II.6).

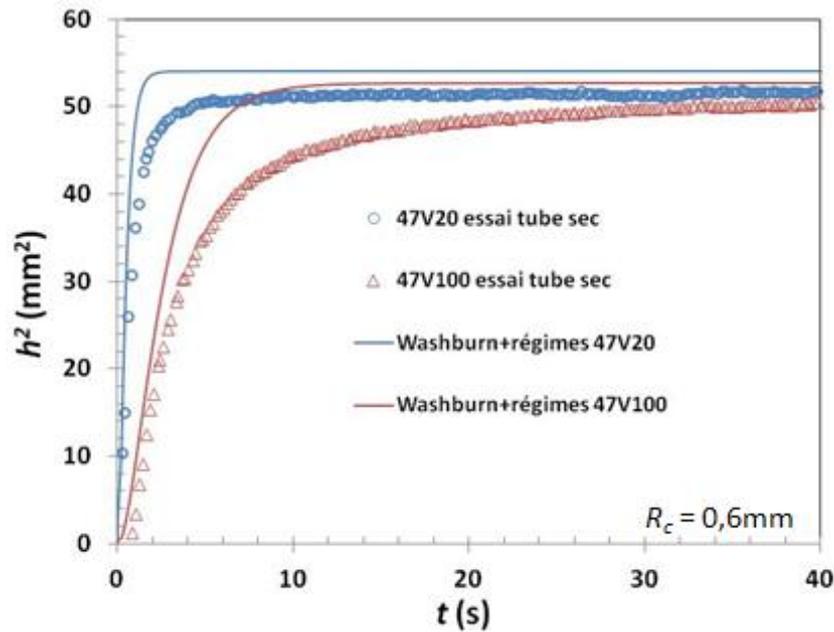


Fig. II. 6 : Ascension capillaire des huiles silicones 47V20 et 47V100 dans un tube de rayon $R_c=0,6\text{mm}$

Une limitation de la loi de Washburn est qu'elle ne prend pas en compte les effets des angles dynamiques qui sont particulièrement importants au temps courts où la vitesse d'ascension est élevée. Pour des temps faibles, la force capillaire responsable de l'ascension du liquide s'écrirait alors :

$$F_c = 2\pi R_c \gamma_L \cos \theta_d \quad \text{Eq.II. 25}$$

Pour des liquides mouillants et dans l'approximation des faibles angles dynamiques, la relation de Tanner-de Gennes (développée ultérieurement dans le paragraphe II.3.1) permet d'exprimer l'angle de contact dynamique en fonction de la vitesse du front :

$$\theta_d(\text{rad}) = (6\Gamma Ca)^{1/3} \quad \text{Eq.II. 26}$$

avec $\Gamma = \ln(X_{max}/X_{min})$ où X_{max} est le rayon du tube considéré et X_{min} , la taille caractéristique d'une molécule du liquide.

L'équation bilan de Washburn (Eq.II.17) se modifie simplement en substituant θ_e par θ_d :

$$\frac{2\gamma_L \cos \theta_d}{R_c} = \rho \left(\frac{dh}{dt} \right)^2 + \rho h \left(\frac{d^2h}{dt^2} \right) + \frac{8\eta}{R_c^2} h \frac{dh}{dt} + \rho g h \quad \text{Eq.II. 27}$$

La résolution de l'Eq.II.20 par méthode d'itérations est comparée aux résultats expérimentaux des ascensions capillaires des liquides dans les tubes. Un exemple de résultat de la progression de l'huile silicone 47V20 dans un tube de rayon $R_c = 0,6 \text{ mm}$ est donné sur la Fig. II. 7.

Deux configurations sont étudiées (Fig. II. 7) : le tube sec puis le même tube prémouillé.

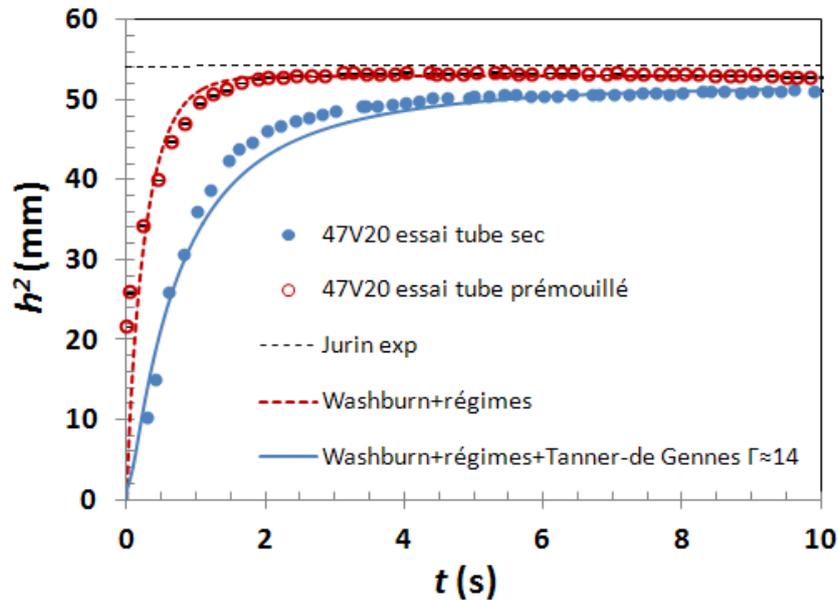


Fig. II. 7 : Ascension capillaire de l'huile silicone 47V20 dans un tube sec et prémouillé de rayon $R_c=0,6\text{mm}$

Pour un tube prémouillé, le liquide en ascension est en contact avec le film initialement déposé sur la paroi du tube. L'angle de contact apparent est proche de l'angle à l'équilibre et par conséquent la loi de Washburn (Eq.II.17) est une bonne approximation pour un tube prémouillé. Dans le cas d'un contact sec, les angles dynamiques doivent être considérés dans le modèle de Washburn (Eq.II.20). Pour l'ascension d'un liquide mouillant (ici, huile silicone 47V20) sur une surface sèche, la prise en compte du modèle de Tanner-de Gennes dans la loi de Washburn donne un bon accord avec les résultats expérimentaux.

II.3 Régime forcé

Pour un mouillage forcé, le solide ou le liquide sont mobilisés à une vitesse contrôlée pour déplacer le front du liquide au contact triple solide/liquide/gaz. Les premières investigations s'intéressant à l'angle de contact dynamique (Ablett 1923) (DeRoeth 1948) (Rose et Heins 1962) (Blake et Haynes 1969) (Philipps et Riddiford 1972) (Schwartz et Tejada 1972) ont conduit à le représenter en fonction de la vitesse du liquide au voisinage de la paroi solide. Pour des faibles dimensions de gouttes liquides (effets gravitationnels négligés), une vitesse imposée relativement faible permet de négliger les effets inertiels liés à l'écoulement du liquide. L'angle de contact dynamique peut donc être relié au nombre capillaire Ca qui compare le rapport de dominance entre les effets visqueux et les effets de tension de surface.

Cependant, les observations sont restées qualitatives, se limitant simplement à des modèles empiriques. C'est à partir du milieu des années 1970 que l'approche quantitative la plus complète reliant l'évolution de l'angle dynamique au nombre capillaire a été proposée suite aux études d'Hoffman (1975), Tanner (1976), Voinov (1976) et de Gennes (1985).

II.3.1 Approche hydrodynamique

Hoffman (1975) a démontré, avec une expérience consistant à déterminer l'angle de contact dynamique entre des huiles silicones et un capillaire sec en verre ($d = 2$ mm), que l'angle dynamique apparent peut être relié au régime d'écoulement imposé. En effet, l'étude expérimentale réalisée dans un régime visco-capillaire donne une variation en puissance $1/3$ de l'angle de contact dynamique apparent θ_d (exprimé en radians) en fonction du nombre capillaire Ca . La loi établie par Hoffman, initialement pour des angles dynamiques faibles, a été validé par la suite par Tanner (1979) pour des angles relativement grands (jusqu'à 160°). Cette loi est donnée par la relation :

$$\theta_d^3 \sim \frac{\eta v}{\gamma_L} = Ca \quad \text{Eq.II. 28}$$

De Gennes (1985) considère que la force capillaire agissant sur la ligne de contact résulte d'une force d'Young non-compensée par unité de longueur dont l'expression est simplifiée dans une limite d'un faible angle à l'avancée :

$$f(\theta_d) = \gamma_L(1 - \cos \theta_d) \approx \frac{1}{2}\gamma_L\theta_d^2 \quad \text{Eq.II. 29}$$

L'auteur a évalué la force de dissipation visqueuse au voisinage de la ligne de contact en proposant d'utiliser deux longueurs de coupure, X_{max} (rayon d'un tube ou longueur capillaire

pour une géométrie ouverte) et X_{min} (taille caractéristique d'une molécule liquide). D'où une force de friction visqueuse par unité de longueur qui s'exprime par :

$$f_V = \frac{3\eta v}{\theta_d} \int_{X_{min}}^{X_{max}} \frac{dx}{x} = \frac{3\eta v}{\theta_d} \ln(X_{max}/X_{min}) \quad \text{Eq.II. 30}$$

En posant $\Gamma = \ln(X_{max}/X_{min})$ et en équilibrant la force capillaire et la force de friction visqueuse au voisinage de la ligne de contact, la loi de Tanner-de Gennes s'écrit :

$$\theta_d(rad) = (6\Gamma Ca)^{1/3} \quad \text{Eq.II. 31}$$

avec $\Gamma \approx 15$ pour un tube capillaire cylindrique sec de 2 mm de diamètre sur la base des expériences de Hoffman (1975).

En pratique, le modèle de Hoffman-Tanner-de Gennes constitue une bonne approche pour des faibles angles à l'équilibre ($\theta_e < \pi/6$).

Dans le cas d'un mouillage partiel, un développement analytique similaire mené par Voinov (1976) permet de prendre en compte l'angle de contact à l'équilibre. En introduisant les longueurs de coupure X_{max} et X_{min} dans l'expression de la force de friction visqueuse et en équilibrant à nouveau celle-ci avec la force capillaire, l'angle de contact dynamique apparent est donné pour $\pi/6 < \theta_e < 3\pi/4$ par :

$$\theta_d(rad) \approx (\theta_e^3 + 9\Gamma Ca)^{1/3} \quad \text{Eq.II. 32}$$

Le régime des grands angles reste à ce jour mal compris. En effet, pour des vitesses très élevées, l'angle de contact dynamique tend vers 180° et peut provoquer la naissance d'un film d'air à l'interface (apparition des poches d'air).

II.3.2 Approche moléculaire

Blake et Haynes (Blake et Haynes, Kinetics of liquid/liquid displacement 1969) ont proposé une théorie caractérisant la vitesse de la ligne de mouillage. Celle-ci dépend des estimations statistiques des déplacements d'une molécule individuelle le long de la ligne triple. Ces déplacements sont caractérisés par une fréquence K . Intervient aussi la distance moyenne λ entre deux sites voisins d'adsorption de la surface solide. En posant K^+ la fréquence des déplacements de la molécule dans le même sens que l'avancée de la ligne de mouillage et K^- la fréquence des déplacements opposés, la fréquence moyenne des déplacements vaut : $K_{net} = K^+ - K^-$. La vitesse de la ligne triple s'écrit :

$$v = (K^+ - K^-)\lambda = K_{net} \cdot \lambda \quad \text{Eq.II. 33}$$

A l'équilibre quasi-statique de la ligne triple, $K_{net} = 0$ et $K^+ = K^- = K^0$.

La force motrice responsable du déplacement de la ligne triple par unité de longueur est donnée par (Blake et Haynes, 1969) :

$$F(\theta_d) = \gamma_L(\cos \theta_e - \cos \theta_d) \quad \text{Eq.II. 34}$$

En utilisant la théorie de la vitesse d'activation pour le transport dans le liquide (Glasstone et al, 1941 et Frenkel, 1946), la relation entre la vitesse de la ligne triple v et l'angle de contact dynamique θ_d est donnée par la relation :

$$v = 2K^0\lambda \cdot \sinh \left[\frac{\gamma_L}{2nk_B T} (\cos \theta_e - \cos \theta_d) \right] \quad \text{Eq.II. 35}$$

avec n , le nombre de sites d'adsorption par unité d'aire du solide, k_B , la constante de Boltzmann et T , la température absolue.

En supposant que :

$$\gamma_L(\cos \theta_e - \cos \theta_d) < 2nk_B T \quad \text{Eq.II. 36}$$

L'Eq.II. 35 se simplifie à :

$$v = \frac{1}{\xi_0} \gamma_L (\cos \theta_e - \cos \theta_d) \quad \text{Eq.II. 37}$$

avec $\xi_0 = nk_B T / K^0 \lambda$, le coefficient de friction de la ligne de contact triple par unité de longueur.

Pour des faibles angles de contact dynamiques :

$$\theta_d \sim Ca^{1/2} \quad \text{Eq.II. 38}$$

Le modèle moléculaire développé a été validé numériquement et reste dépendant du choix des paramètres $K^0 \lambda$ et $nk_B T$ rentrés pour un système liquide/solide donné. Le résultat de l'approche moléculaire (Eq.II.38) est donc sensiblement différent de celui donné par l'approche hydrodynamique (Eq.II.31 et Eq.II.32).

II.3.3 Approche combinée

Une approche combinée des cinétiques des dissipations hydrodynamiques et moléculaires a été proposée par de Ruijter et al (1999). La vitesse d'avancée de la ligne triple obtenue s'écrit :

$$v = \frac{\gamma_L (\cos \theta_e - \cos \theta_d)}{\xi_0 + 6\eta \left(\frac{\sin^3(\theta_d)}{2 - 3 \cos \theta_d + \cos^3(\theta_d)} \right) \ln(X_{max}/X_{min})} \quad \text{Eq.II. 39}$$

En analysant cette équation, il apparaît un temps caractéristique τ , dépendant à la fois du coefficient de friction ξ_0 et de la viscosité dynamique du liquide η , qui sépare les régimes de cinétiques moléculaire et hydrodynamique.

Dans le cas pratique, l'approche choisie dépend de la durée de la mesure. En effet, pour des temps inférieurs à τ , l'énergie est dissipée par la cinétique moléculaire au voisinage de la ligne de

contact. Cependant, pour des temps supérieurs à τ , l'énergie dissipée est due à l'écoulement visqueux de la goutte de liquide (régime hydrodynamique).

Pour une limite des angles faibles, la loi d'évolution de l'angle de contact dynamique se simplifie en :

$$\theta_d \sim Ca^{3/7} \quad \text{Eq.II. 40}$$

La difficulté dans le cas pratique reste la quantification du coefficient de friction ξ_0 propre à chaque liquide et il n'existe donc pas un modèle qui permet de décrire de façon standard et complète la cinétique de l'étalement d'une goutte sur une surface solide.

II.3.4 Angle de contact dynamique sur une fibre

La sonde verticale de Wilhelmy est utilisée pour déterminer l'angle de contact dynamique à l'avancée et au retrait d'un liquide sur une fibre de verre. Le mouillage forcé est obtenu en immergeant (avancée) et en retirant les fibres du réservoir liquide déplacé avec une vitesse v .

Dans la technique de Wilhelmy, les angles dynamiques ne sont pas mesurables directement. En effet, seules les masses sont mesurées et les angles dynamiques apparents sont déduits grâce à la pesée du poids du ménisque entourant la fibre.

L'étude expérimentale réalisée consiste à déterminer les angles de contact dynamiques à l'avancée et au retrait des trois huiles silicones 47V20, 47V100 et 47V1000 sur des fibres de verre « roving ». Les rayons moyens des fibres sont initialement déterminés au microscope optique. La pesée par la microbalance est effectuée avec une sensibilité de détection de $3 \cdot 10^{-5}$ g. Les fibres sont immergées dans le liquide avec une vitesse v jusqu'à une profondeur de 5 mm puis retirées à la même vitesse. Un exemple de résultats des forces appliquées par le ménisque liquide sur la fibre est donné sur la Fig. II. 8 pour $v = 2$ mm/min.

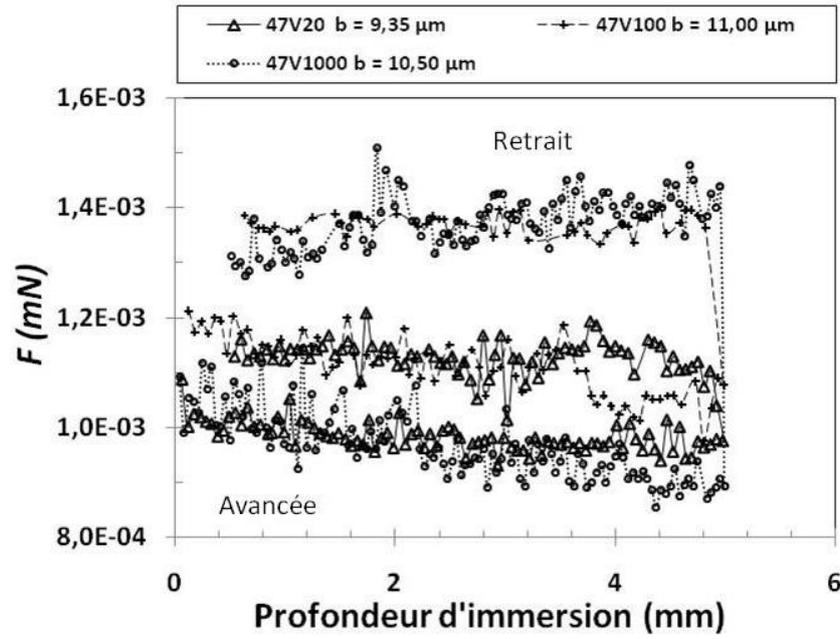


Fig. II. 8 : Forces : à l'avancée et au retrait des ménisques de 3 huiles silicones sur des fibres de verre ($v = 2 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$; b correspond au rayon de la fibre)

La force mesurée par la microbalance correspond au poids du ménisque du liquide autour de la fibre donné par :

$$F = F_g = g \cdot m_d \quad \text{Eq.II. 41}$$

avec m_d , la masse du ménisque dynamique (pour l'avancée m_d est noté m_a et pour le retrait, m_r).

En se plaçant sur le ménisque loin de la ligne de contact triple, la force de friction visqueuse F_η est négligée et l'angle de contact dynamique apparent se déduit de la relation de Wilhelmy en équilibrant le poids du liquide et la force capillaire :

$$g \cdot m_d = 2\pi b \gamma_L \cos \theta_d \quad \text{Eq.II. 42}$$

Les cosinus des angles de contact dynamiques apparents déduits sont représentés sur la Fig. II. 9.

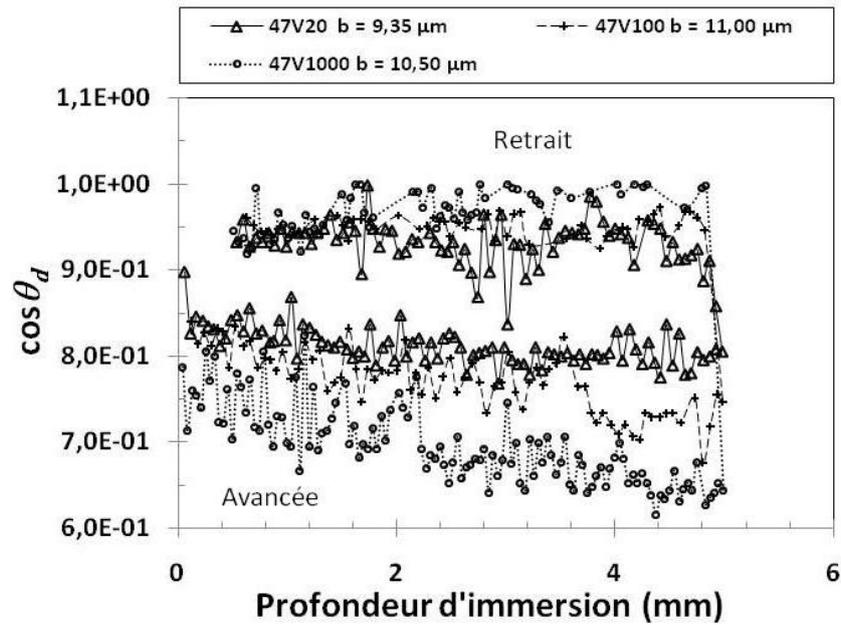


Fig. II. 9 : Angles dynamiques: à l'avancée et au retrait des ménisques de 3 huiles silicones sur des fibres de verre ($v = 2 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$)

Pour chaque liquide, un angle dynamique moyen apparent à l'avancée et un au retrait peuvent être obtenus en extrapolant à l'origine les points expérimentaux donnés pour différentes profondeurs d'immersion de la fibre. Pour cet exemple, les angles dynamiques moyens apparents à l'avancée θ_a sont $33,52^\circ$, $34,85^\circ$ et $40,78^\circ$ respectivement pour les 47V20, 47V100 et 47V1000. Pour le retrait, les valeurs moyennes de θ_r respectivement pour 47V20, 47V100 et 47V1000 sont $19,33^\circ$, $19,60^\circ$ et $20,20^\circ$.

A l'avancée, le contact entre le liquide et le solide est sec et par conséquent, l'angle à l'avancée dépend de la friction visqueuse. Pour une même vitesse d'immersion, les frottements sont plus importants pour une viscosité plus élevée, d'où un ménisque plus aplati et un angle plus élevé.

Au retrait, la fibre est prémouillée. Le contact au tirage se fait donc entre le liquide est un film de mouillage du même liquide déposé sur la fibre lors de son immersion. Ceci explique le fait que les valeurs de θ_r sont proches pour différentes viscosités et à une vitesse donnée.

Les angles dynamiques moyens à l'avancée et au retrait sur des fibres de verre ont été déterminés par la même méthode en variant la vitesse d'immersion et de retrait. Pour des vitesses relativement faibles, le nombre capillaire Ca prend en compte l'effet de la viscosité et de la vitesse sur l'évolution des angles dynamiques apparents.

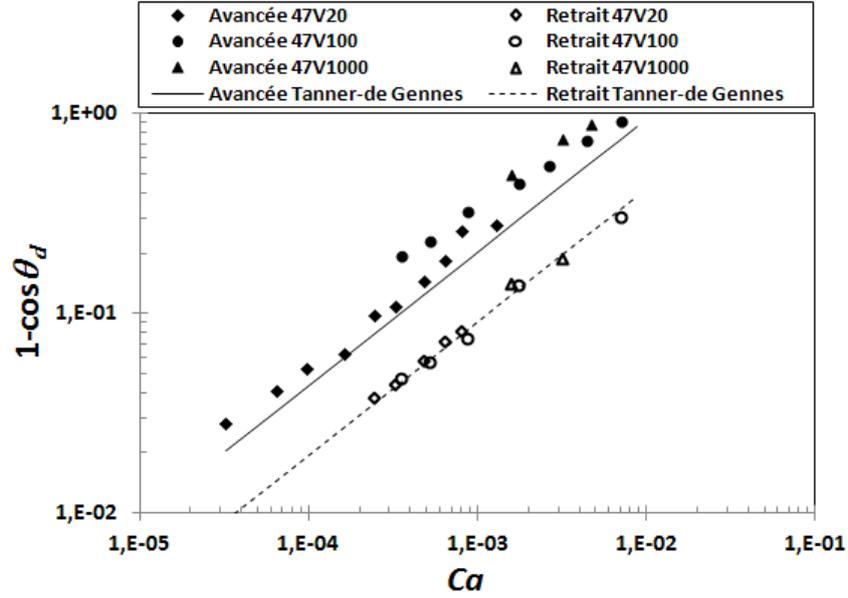


Fig. II. 10 : Résultats de l'évolution de l'angle dynamique apparent moyen en fonction du nombre capillaire pour les trois huiles silicones

Les résultats sur les angles au retrait sont en accord avec la théorie de Tanner-de Gennes (Eq.II.24). A l'avancée, la loi de puissance correspond à une constante près à la théorie. La translation des points expérimentaux peut être effectuée en prenant en compte l'angle de contact à l'équilibre. En effet, la force d'Young par unité de longueur responsable du mouillage est donnée par la relation :

$$F_Y = \gamma_S - \gamma_{SL} - \gamma_L \cos \theta_d \quad \text{Eq.II. 43}$$

Cette force s'annule à l'équilibre :

$$\gamma_S - \gamma_{SL} = \gamma_L \cos \theta_e \quad \text{Eq.II. 44}$$

Pour une fibre de rayon b , en remplaçant l'Eq.II. 44 dans l'Eq.II. 43, la force capillaire s'écrit :

$$F_Y = 2\pi b \gamma_L (\cos \theta_e - \cos \theta_d) \quad \text{Eq.II. 45}$$

La force du poids du liquide déplacée de sa position d'équilibre est donnée par :

$$F_g = g(m_d - m_e) \quad \text{Eq.II. 46}$$

avec m_d , la masse du ménisque dynamique, m_e , la masse du ménisque statique à l'équilibre et g , l'accélération de la pesanteur.

Loin de la ligne de contact triple, la force visqueuse est négligée et l'équilibre du ménisque est réduit à :

$$F_g = F_Y \quad \text{Eq.II. 47}$$

Au voisinage de la ligne de contact, la force due à la gravité peut être négligée et l'équilibre du ménisque résulte de l'équilibre entre la force de traînée visqueuse et la force capillaire :

$$F_{\eta} = F_{\gamma} \quad \text{Eq.II. 48}$$

d'où :

$$F_{\eta} = g(m_d - m_e) = 2\pi b\gamma_L(\cos \theta_e - \cos \theta_d) \quad \text{Eq.II. 49}$$

Lors de l'avancée, la dissipation visqueuse se fait dans un film mince déposé sur la fibre. La force de traînée générée dans ce film s'écrit en fonction de l'épaisseur du film e et d'une longueur effective l (Landau et Levich 1942) :

$$F_{\eta} = \eta v \frac{l}{e} \quad \text{Eq.II. 50}$$

Cette théorie est basée sur un raccord asymptotique au voisinage de la ligne triple donnant $l/e \sim (\eta v / \gamma_L)^{-1/3} = Ca^{-1/3}$. En remplaçant cette expression dans Eq.II. 50 puis dans Eq.II. 49, il en résulte la relation :

$$(\cos \theta_e - \cos \theta_d) \sim Ca^{2/3} \quad \text{Eq.II. 51}$$

En considérant les longueurs de coupures proposées par de Gennes (1985) :

$$(\cos \theta_e - \cos \theta_d) \approx (6\Gamma Ca)^{2/3} \quad \text{Eq.II. 52}$$

Pour des faibles nombres capillaires, le ménisque dynamique apparent peut être assimilé au ménisque statique. En effet, à faible vitesse, le ménisque a le temps de se relaxer spontanément vers sa forme à l'équilibre. L'extrapolation des points expérimentaux à $Ca = 0$ ($\hat{a} v = 0$) permet de déterminer approximativement θ_e . Les valeurs déduites des expériences pour l'angle à l'équilibre sont 6° , 10° et 13° respectivement pour les huiles silicones 47V20, 47V100 et 47V1000. Les résultats sont donnés et comparés au modèle de Tanner-de Gennes sur la Fig. II. 11.

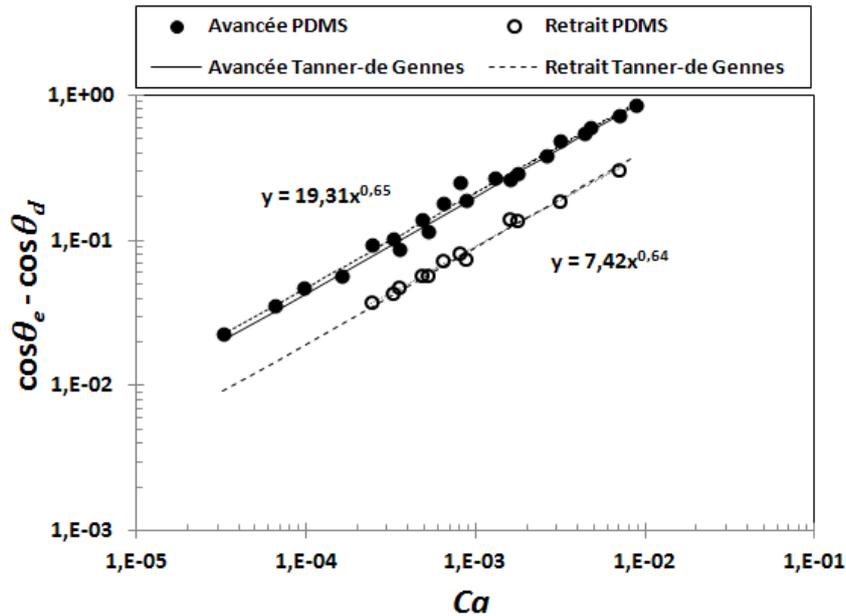


Fig. II. 11 : Résultats de l'évolution de l'angle dynamique apparent moyen corrigé en fonction du nombre capillaire pour les trois huiles silicones

Pour les huiles silicones mouillantes, la prise en compte de l'angle à l'équilibre dans la loi de puissance du $\cos\theta_d$ en fonction du Ca obtenue par les points expérimentaux est en accord avec la loi prévue par le modèle de Tanner-de Gennes à l'avancée et au retrait : 0,65 à l'avancée et 0,64 au retrait à comparer au 0,66 prévu par la théorie de Tanner-de Gennes.

Pour le coefficient de longueur de coupure Γ , la valeur expérimentale déduite de la courbe de tendance pour le contact sec entre les huiles silicones et les fibres de verre (à l'avancée) est de 14,14. Cette valeur est légèrement en-dessous de la valeur donnée par le modèle ($\Gamma \approx 15$) pour un tube de Hoffman (rayon 1 mm). Notons qu'en considérant la longueur capillaire κ^{-1} (de l'ordre de 1,49 mm pour les huiles silicones étudiées) comme étant la longueur de coupure macroscopique ($\kappa^{-1} = X_{max}$), on obtient $\Gamma \approx 14,32$ qui est très proche du 14,14 obtenu par l'étude expérimentale.

Dans le cas du contact prémouillé (au retrait), la valeur expérimentale est $\Gamma \approx 3,37$, c'est-à-dire en-dessous de 4,5 donné par le modèle.

En considérant les incertitudes de mesure et les valeurs approximatives des coefficients de coupure microscopique et macroscopique données par le modèle, les résultats obtenus pour les huiles silicones et les fibres de verre étudiées peuvent être considérés concordants avec le modèle théorique.

II.3.5 Chute d'un liquide dans un tube vertical : pression imposée

Considérons un tube capillaire vertical raccordé à un réservoir de liquide vertical (Fig. II. 12).

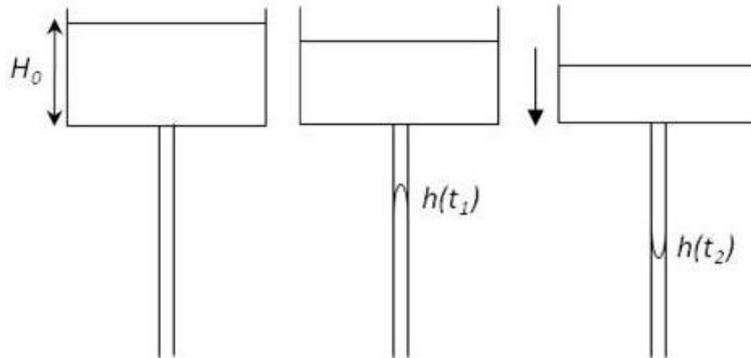


Fig. II. 12 : Chute d'un liquide dans un tube vertical avec une pression imposée par un réservoir

Le bilan énergétique est obtenu en partant de l'étude de l'ascension verticale et en associant :

- un terme lié à la perte de charge singulière au niveau du rétrécissement brusque correspondant au passage du réservoir au capillaire.
- un terme lié à la différence de pression imposée par le liquide présent dans le réservoir. Le bilan des pressions est alors donné par :

$$\rho(h + \lambda) \frac{d^2h}{dt^2} + \rho \left(1 + \frac{k}{4}\right) \left(\frac{dh}{dt}\right)^2 + \frac{8\eta}{R_c^2} h \frac{dh}{dt} + \frac{2\gamma_L \cos \theta}{R_c} - \rho g(H_0 - h) = 0 \quad \text{Eq.II. 53}$$

avec k , le coefficient des pertes de charge singulières au niveau du rétrécissement brusque qui vaut 0,5 pour un rayon de réservoir $R_{\text{réservoir}} \gg R_c$ (Idel'cik 1986).

La résolution de l'équation nécessite l'ajout de deux conditions aux limites : $h(0) = 0$ et $h'(0) = 0$. D'après Zhmud et al (Zhmud, Tiberg et Hallstenson 2000), les conditions aux limites choisies posent un problème de divergence à $t = 0$. Les auteurs proposent d'introduire un coefficient λ .

L'étude est réalisé sur les huiles silicones 47V100 et 47V1000 pour un rayon capillaire $R_c = 0,5$ mm. La résolution numérique de l'Eq.II.53 est effectuée sur Mathematica pour $\lambda = R_c$.

Les valeurs expérimentales de la position du liquide dans le capillaire au cours du temps et les solutions numériques pour deux valeurs extrêmes de l'angle de contact : « num1 » pour $\theta = 0$ et « num2 » pour $\theta = \pi$ sont présentées sur la Fig. II. 13.

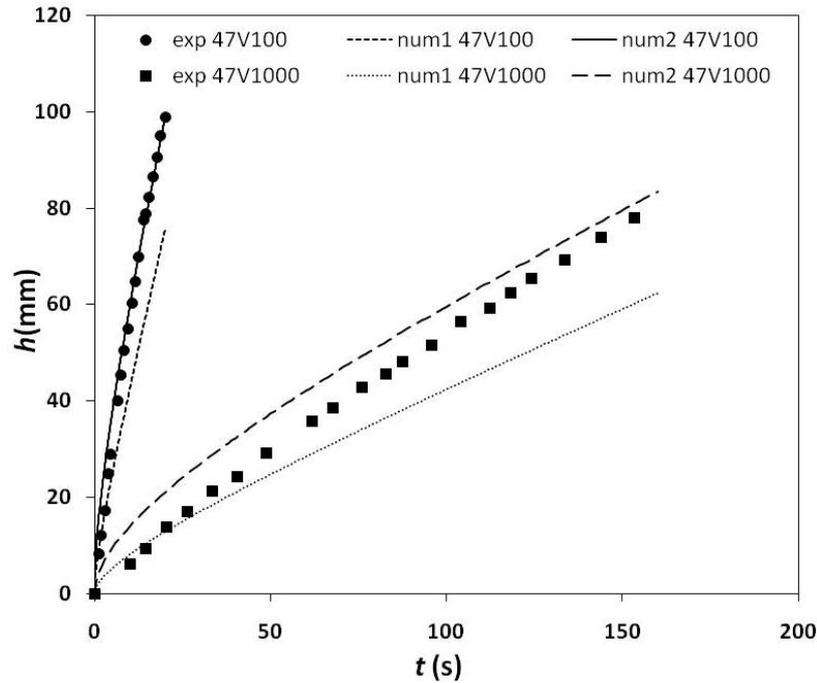


Fig. II. 13 : Evolution de la position du front au cours du temps

Un changement rapide du régime d'écoulement est observé. L'écoulement est caractérisé par un régime inertiel (1^{er} et 2^{ème} terme de l'Eq.II.53) aux temps très courts puis atteint rapidement un régime visqueux de Poiseuille.

II.4 Conclusion

Ce chapitre a été consacré à la validation de quelques lois de la dynamique de l'étalement d'un liquide sur une surface solide modèle.

Pour une échelle microscopique, la cinétique moléculaire est un paramètre important qui doit être pris en compte dans les modèles décrivant la dynamique d'étalement au voisinage de la ligne de contact triple solide-liquide-gaz. Cependant, expérimentalement cette approche reste difficile à étudier à cause du manque d'observation à ces échelles. Une approche hydrodynamique simpliste basée sur la théorie de raccord des ménisques macroscopiques est souvent utilisée pour décrire la dynamique apparente de la ligne de contact triple.

L'étude expérimentale menée sur des liquides mouillants et des surfaces solides modèles montre une bonne concordance avec les approches théoriques.

L'imprégnation capillaire spontanée d'un milieu poreux modèle est décrite par le modèle de Washburn. Il est tout de même nécessaire de définir une notion de temps caractéristiques afin de prendre en compte les différents régimes gouvernant la cinétique de l'imprégnation. En effet, les lois décrivant l'écoulement résultent d'une combinaison de phénomènes physico-chimiques (cinétique moléculaire, angle dynamique, pression imposée, etc.) qui peuvent y avoir lieu dans des temps plus ou moins courts.

Le modèle de Washburn étudié dans ce chapitre considère le milieu poreux comme un milieu isotrope et équivalent à un ensemble des capillaires droits de rayon R_c . Pour une préforme fibreuse, la structure géométrique caractérisée par un arrangement en fibres et en mèches et donc à double échelle de pores rend l'écoulement capillaire plus difficile à décrire et fait l'objet du chapitre III.

Chapitre III : imprégnation dans un milieu fibreux

III.1 Introduction

Dans cette partie, nous nous intéressons à la progression capillaire dans un milieu fibreux.

Une préforme fibreuse est un milieu poreux dans lequel le transport du liquide est généralement décrit par le modèle de Darcy.

En modélisant l'espace poral par un ensemble de tubes capillaires, la cinétique du transport peut être décrite par le modèle de Washburn.

Pour le premier cas, les paramètres caractéristiques du modèle de Darcy comme la perméabilité sont difficiles à caractériser et sont souvent obtenus de façon empirique ou par voie numérique.

Concernant le deuxième cas, il est nécessaire de déterminer le rayon effectif du capillaire ainsi que l'angle de contact par la voie expérimentale.

L'objectif dans cette partie consiste à modéliser la progression capillaire d'un liquide mouillant dans une préforme en fibres de verre quasi-unidirectionnelles, c'est-à-dire parallèles entre elles et orientées parallèlement à l'écoulement.

Une description de l'espace fibreux est nécessaire afin de caractériser les paramètres géométriques intervenant dans les lois de transport du liquide.

III.2 Description de l'espace poral dans les milieux fibreux

III.2.1 Problématique

Pour décrire de manière pertinente les écoulements dans les pores des milieux fibreux, que ces écoulements soient capillaires, gravitaires ou générés par une différence de pression externe, il est nécessaire de caractériser la géométrie porale. Il est à noter que ces paramètres géométriques peuvent également servir à décrire les propriétés mécaniques, électriques ou thermiques des matériaux composites.

La géométrie des pores a souvent été caractérisée par défaut, c'est-à-dire que des paramètres géométriques, plus ou moins bien définis, ont été utilisés pour rapprocher les modèles de mécanique des fluides et les mesures expérimentales. On peut citer l'exemple de la tortuosité définie par $T = (L/L_e)^2$ avec L , longueur des canaux d'écoulement et L_e , longueur du milieu poreux (Bear 1972). Ce facteur a notamment été utilisé pour adapter la formule de Kozeny-Carman utilisée pour décrire la perméabilité dans les milieux poreux.

Il est à noter que les milieux fibreux ont des caractéristiques géométriques particulières et très différentes des milieux poreux de type granulaire. Les pores sont donc très différents entre ces deux types de milieux.

De plus, à l'intérieur de la catégorie des milieux fibreux, il est possible d'avoir des arrangements très différents : par exemple, en allant des feutres jusqu'aux unidirectionnels, en passant par des préformes tissées ou tricotées.

Dans la suite de ce paragraphe, nous décrivons rapidement les techniques et paramètres de caractérisation géométriques applicables aux pores des préformes fibreuses. Le lien entre ces techniques et les propriétés des matériaux (préformes et matériaux composites) est mis en exergue, avec une insistance particulière par rapport à l'écoulement de fluides dans ces pores.

III.2.2 Descripteurs

Réseaux triangulaire, carré et hexagonal

La première approche de la géométrie des pores, très souvent utilisée en numérique et notamment dans les modèles de micromécanique, est de considérer un milieu fibreux unidirectionnel comme un réseau de fibres régulièrement espacées, en arrangement triangulaire, carré ou hexagonal.

Dans le cadre d'une étude concernant la perméabilité dans les injections de type RTM, les empilements carrés et hexagonaux sont le plus souvent préconisés. Gebart (Gebart 1992) utilise ces réseaux pour modéliser la perméabilité transversale par rapport aux fibres.

La difficulté de ce type de modèle réside dans son écart à la réalité d'un milieu fibreux. En effet, à moins de placer les fibres une à une et qu'elles restent dans cette position, il est impossible d'obtenir une microstructure pareille. L'écart le plus important à la réalité réside donc dans l'irrégularité du positionnement des fibres et même des mèches comme le montre la Fig.III. 1. Une autre origine de l'écart provient du fait que les fibres n'ont pas toutes le même diamètre tel que le montre la Fig.III. 1a pour des fibres de verre. Dans ce cas, comment décrire une cellule élémentaire d'un milieu fibreux à l'aide de ce type de réseau modèle ? Enfin, ce type de modèle ne peut s'appliquer tant bien que mal qu'aux composites unidirectionnels. Les autres microstructures de pores sont beaucoup plus complexes.

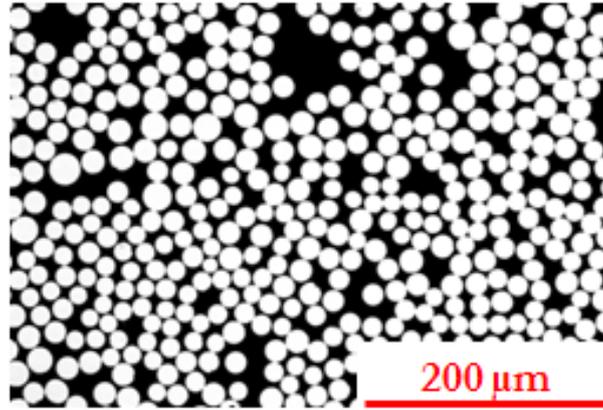


Fig.III. 1 : Exemple de microstructure de composites à fibres longues : image intra-mèche de composite à fibres de verre et matrice polyester au microscope électronique à balayage

Distribution d'orientation des fibres

Dans le domaine des composites à fibres courtes où ces dernières sont injectées avec le plastique dans un moule, la caractérisation microstructurale porte essentiellement sur la distribution statistique de l'orientation des fibres. En effet, celle-ci est importante par rapport à la qualité des pièces ainsi que pour la détermination des flux à l'intérieur du moule. Ces distributions d'orientation des fibres, qui sont fonction de l'emplacement dans le moule, peuvent être obtenues à partir de coupes 2D de la microstructure. Eberhardt et Clarke (Eberhardt et Clarke 2001) ont utilisé de manière originale la microscopie confocale pour arriver aux mêmes fins. Cette technique a d'ailleurs également été appliquée par les mêmes auteurs (Clarke et Eberhardt 1999) pour décrire le positionnement de fibres longues.

Corrélation de paires

Des formalismes spécifiques ont été utilisés pour quantifier la position relative des fibres dans un composite comme, par exemple, la corrélation de paires.

Par exemple, Albérola et al. (Albérola, Merle et Benzarti 1999) ont utilisé la distribution de la distance au plus proche voisin pour les centres de fibres d'un composite unidirectionnel de fibres de verre et matrice époxyde. De cette étude, ils ont utilisé le paramètre suivant :

$$\xi = \overline{d_{ppv}} \cdot \overline{1/d_{ppv}} \quad \text{Eq.III. 1}$$

ξ est le produit de la distance moyenne entre 2 fibres par la moyenne de la distance réciproque au plus proche voisin. Ce paramètre est égal à 1 pour une parfaite dispersion des fibres. Des valeurs plus élevées reflètent une tendance vers une structure à mèches. Ainsi, les auteurs réussissent à décrire l'agglomération « clustering » des fibres. Dans la même étude, les auteurs relient le comportement viscoélastique du matériau à la microstructure en considérant la partie des fibres à

l'intérieur des mèches comme non-percolante tandis que la fraction de matrice à l'extérieur est désignée comme matrice percolante. Leur hypothèse plutôt bien vérifiée est la suivante : c'est la fraction volumique de fibres percolante qui joue un rôle sur les propriétés viscoélastiques du composite.

Dubouloz-Monnet et al. (Dubouloz-Monnet, Mélé et Albérola 2005) ont poursuivi ce type d'étude avec une fonction d'autocorrélation calculée à partir d'une double transformation de Fourier. Cette fonction d'autocorrélation permet d'établir des spectres avec les distances caractéristiques des périodicités de la structure.

La fonction de corrélation de paires a également été utilisée par Thomas et al. (Thomas, et al. 2008) ainsi que plusieurs autres descripteurs (covariance et diagrammes de Voronoï) pour tenter de définir un Volume Élémentaire Représentatif (V.E.R.) dans un composite unidirectionnel. L'objectif de ces auteurs est de comparer microstructure et conductivité thermique du matériau. La fonction de corrélation de paires est définie par l'intensité d'occurrence de distances entre centres de fibres.

Covariance

La covariance est du même type de quantification de la microstructure que la corrélation de paires. La fonction de covariance est définie en analyse locale par Coster et Chermant (Coster et Chermant 1989) :

$$C(x; h) = P\{x \in X, x + h \in \cap X\} \quad \text{Eq.III. 2}$$

C'est-à-dire la probabilité P pour qu'un point x et le même point x décalé de h appartiennent tous deux à l'ensemble X .

De manière générale, la covariance permet de caractériser la dispersion des phases ou des particules dans un milieu.

Diagramme de Voronoï

Appliqué aux composites à fibres longues, ce type de caractérisation consiste à définir des cellules qui entourent chaque fibre de telle manière que chaque point dans la cellule est plus proche du centre de la fibre entourée que de n'importe quelle autre fibre. Chaque fibre « possède » alors une zone de matrice. L'irrégularité dans l'arrangement des fibres peut être repérée par des cellules dont la surface est plus importante.

Fractales

Les pores dans les matériaux composites à fibres longues montrent plusieurs tailles et ont souvent été décrits comme étant à double échelle : les macropores situés entre les mèches et les micropores dans les mèches. De ce fait, certains auteurs ont utilisé des traitements d'image à base de fractales pour décrire ces milieux. Pearce et al. (Pearce, Guild et Summerscales 1998-a) utilisent donc les dimensions fractales afin de distinguer différentes architectures de tissus utilisés dans des composites carbone-époxyde et comparent qualitativement celles-ci aux propriétés mécaniques des matériaux et à la perméabilité des préformes. Par la suite, d'autres auteurs, tels que Pitchumani et Ramakrishnan (Pitchumani et Ramakrishnan 1999) ou Yu et al. (Yu, Lee et Cao 2002), se sont intéressés à modéliser la perméabilité de préformes à fibres longues à l'aide de paramètres fractals liés à la microstructure.

Néanmoins, si les pores peuvent présenter une certaine invariance par changement d'échelle, celle-ci est forcément limitée par l'échelle supérieure (taille du plus gros pore) et l'échelle inférieure (taille du plus petit pore, c'est-à-dire celui confiné entre 3 fibres compactées).

Granulométries

Une granulométrie consiste à obtenir un spectre représentant une distribution de tailles. Cette distribution de tailles peut être liée à une caractéristique géométrique des pores dans une préforme fibreuse : longueur, surface, volume, etc. Par exemple, Pearce et al. (Pearce, Guild et Summerscales 1998-b) déterminent sur des coupes 2D les répartitions de surface de pores dans des préformes à base de deux satins et d'un sergé de fibres de carbone. Bizet (Bizet 2004) a utilisé des granulométries linéaires pour caractériser la répartition des longueurs présentes dans les pores en fonction de l'orientation (parallèle, perpendiculaire et +/- 45° par rapport aux plis). Il en ressort des hétérogénéités de tailles de pores et des évolutions en fonction de la fraction volumique de fibres. Plus récemment, Rieber et al. (Rieber, Wirjadi et Mitschang 2010) ont calculé des granulométries sphériques pour déterminer des fréquences de diamètres de pores dans des composites verre-époxyde imagés en 3D par microtomographie à rayons X.

Pour simplifier l'étude, nous nous limiterons au cas des structures en fibres de verre unidirectionnelles.

III.3 Modélisation de la progression capillaire

L'espace poral dans une préforme fibreuse et généralement dans un ensemble fibreux est composé de deux échelles de pores : une échelle dite « macro » due à l'espacement entre les mèches ($\sim 0,1$ à 1 mm) et une échelle « micro » due à l'espacement entre les fibres au sein d'une mèche unitaire (~ 1 à 100 μm).

Les lois décrivant le transport des liquides dans un milieu fibreux et plus généralement dans un milieu poreux dépendent fortement de la porosité en particulier, de sa distribution spatiale et de l'interconnectivité des pores. La difficulté supplémentaire d'un milieu fibreux à double échelle est la caractérisation de la connectivité entre les deux échelles micro et macro, qui compense plus ou moins complètement la différence d'écoulement entre ces deux échelles.

Généralement, le cas d'une imprégnation capillaire dans un milieu poreux est décrit par le modèle de Washburn. En considérant la structure poreuse formée d'un assemblage de canaux parallèles, la loi de Washburn permet d'estimer le mouillage apparent du solide par le liquide, de déduire un rayon effectif, puis de le ramener à une surface effective moyenne imprégnée. A l'échelle d'une préforme, la description de la distribution de ces canaux, leurs dimensions et les échanges entre les deux tailles de porosité ne sont pas directement donnés par ce modèle.

Des expérimentations de progression capillaire à partir de plis cousus de verre UD sont effectuées. Le pli en fibres de verre UD utilisé est d'abord caractérisé. Ensuite, les deux pores caractéristiques sont modélisés. Enfin, l'étude de la cinétique capillaire est étudiée en séparant les deux échelles de porosité et en prenant en compte les lois de mouillage validées dans les chapitres précédents.

III.3.1 Caractéristiques du pli en fibres de verre UD

Considérons un échantillon de pli en fibres de verre UD de longueur L_{pli} , de largeur l_{pli} , d'épaisseur H et de masse m_{pli} . Le pli considéré est formé par un ensemble de mèches reliées entre elles par des fils de couture de masse surfacique égale à $6\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ et distants de 11 mm perpendiculairement aux fibres UD (Fig.III.2). Une mèche unitaire de section $S_{mèche}$ est formée par un nombre n de fibres de masse volumique ρ_{fibre} , de masse surfacique $m_{surfactive}$ et de rayon unitaire moyen b . Les fibres sont considérées parfaitement rectilignes.

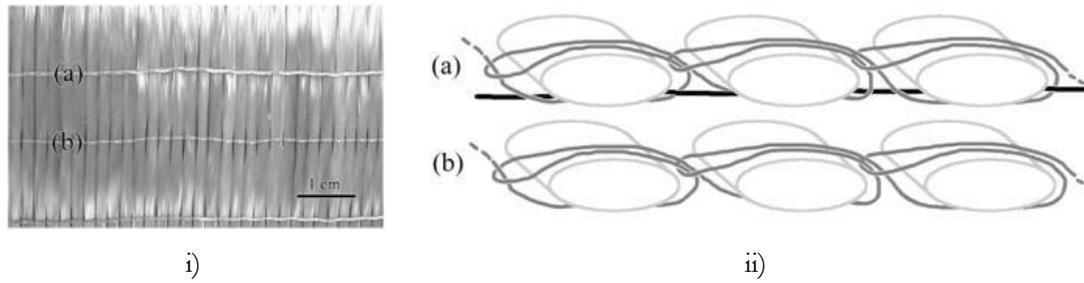


Fig.III. 2 : i) Echantillon de pli en fibres de verre UD et ii) description schématique des fils de couture reliant les mèches (Bizet, Bréard, et al. 2004)

Les caractéristiques de l'échantillon de pli utilisé, dont quelques grandeurs moyennées sont extraits de la thèse de Bizet (2004), sont résumées dans la Tab.III. 1.

$L_{pli} \pm 1mm$	$l_{pli} \pm 1mm$	$H (mm)$	$m_{pli} \pm 0,01 (g)$	Nbre mèches	n fibres/mèche	$m_{surfactive} (g.m^{-2})$	$S_{mèche} (mm^2)$	$\rho_{fibre} (g.cm^{-3})$	$b (\mu m)$
250	25	0,50	3,20	13	2000	646	0,62	2,56	8,9

Tab.III. 1 : Caractéristiques de l'échantillon de pli de verre UD utilisé

La porosité globale ε d'un pli est donnée par :

$$\varepsilon = 1 - \frac{m_{surfactive}}{H\rho_{fibre}} = 0,50 \quad \text{Eq.III. 3}$$

Les valeurs données dans la Tab.III. 1 permettent d'estimer la porosité microscopique notée ε_{micro} caractéristique des espacements entre les fibres au sein d'une mèche unitaire et la porosité macroscopique ε_{macro} caractéristique des espacements inter-mèches.

Ces porosités peuvent être modélisées grâce à des considérations géométriques par des canaux modèles.

III.3.2 Modélisation de la porosité microscopique

Pour une mèche, la porosité ε_{micro} est définie par :

$$\varepsilon_{micro} = 1 - \frac{V_{n,fibres}}{V_{mèche}} \quad \text{Eq.III. 4}$$

où n est le nombre de fibres dans une mèche unitaire et $V_{mèche}$, le volume de la mèche considérée.

Généralement, la section d'une mèche est modélisée par une ellipse de hauteur H (hauteur du pli), de largeur $l_{mèche}$ et de longueur L_{pli} . Son volume est donc estimé par :

$$V_{mèche} = S_{mèche} L_{pli} = \frac{\pi l_{mèche} H}{4} L_{pli} \quad \text{Eq.III. 5}$$

En considérant une fibre unitaire circulaire de rayon b , son volume est donné par $V_{fibre} = L_{pli} \pi b^2$. La porosité de la mèche est alors obtenue par :

$$\varepsilon_{micro} = 1 - \frac{4nb^2}{Hl_{mèche}} = 1 - \frac{n\pi b^2}{S_{mèche}} \quad \text{Eq.III. 6}$$

Pour l'exemple considéré, la porosité moyenne d'une mèche ε_{micro} est estimée à 0,24.

En considérant deux configurations d'arrangement des fibres dans la mèche : empilement triangulaire et empilement carré (Fig.III. 3), un rayon microscopique moyen R_{micro} peut être estimé pour les deux arrangements.

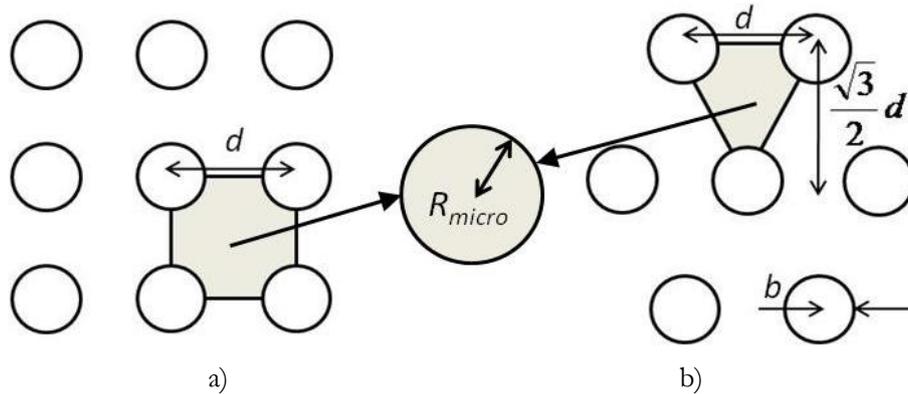


Fig.III. 3 : Modélisation de la porosité microscopique dans une mèche : a) empilement carré et b) empilement triangulaire

Pour l'arrangement triangulaire, la section de la surface de la mèche constituée de n fibres espacées de d peut s'écrire de deux manières :

$$S_{mèche} = \frac{\pi H l_{mèche}}{4} = n \frac{\sqrt{3}}{2} d^2 \quad \text{Eq.III. 7}$$

d'où :

$$d = \sqrt{\frac{\pi H l_{mèche}}{2n\sqrt{3}}} \quad \text{Eq.III. 8}$$

La section circulaire microscopique équivalente s'écrit :

$$S_{micro} = \pi R_{micro}^2 = \frac{\sqrt{3}}{4} d^2 - \frac{3}{6} \pi b^2 = \pi \left(\frac{Hl_{mèche}}{8n} - \frac{b^2}{2} \right) \quad \text{Eq.III. 9}$$

Le rayon micro est donné par :

$$R_{micro} = \sqrt{\frac{Hl_{mèche}}{8n} - \frac{b^2}{2}} \quad \text{Eq.III. 10}$$

L'Eq.III.6 permet d'exprimer le nombre de fibres n en fonction de la porosité de la mèche :

$$n = \frac{Hl_{mèche}(1 - \varepsilon_{micro})}{4b^2} \quad \text{Eq.III. 11}$$

En remplaçant n par son expression (Eq.III.11) dans l'Eq.III.10, le rayon microscopique est donné par :

$$R_{micro} = \frac{1}{\sqrt{2}} b \sqrt{\frac{\varepsilon_{micro}}{1 - \varepsilon_{micro}}} \quad \text{Eq.III. 12}$$

Pour l'arrangement carré, R_{micro} est donné par :

$$R_{micro} = b \sqrt{\frac{\varepsilon_{micro}}{1 - \varepsilon_{micro}}} \quad \text{Eq.III. 13}$$

En fonction de la géométrie de la cellule poreuse considérée, le rayon micro dans une mèche peut être exprimé en général sous la forme :

$$R_{micro} = C \cdot b \sqrt{\frac{\varepsilon_{micro}}{1 - \varepsilon_{micro}}} \quad \text{Eq.III. 14}$$

avec C , facteur dépendant de la géométrie ($C = 1$ pour une cellule carrée et $C = 1/\sqrt{2}$ pour une cellule triangulaire).

Pour l'exemple considéré ici, les rayons microscopiques équivalents obtenus par l'Eq.III.12 et l'Eq.III.13 valent $R_{micro} = 3,46 \mu\text{m}$ pour un empilement triangulaire et $R_{micro} = 4,90 \mu\text{m}$ pour un empilement carré.

III.3.3 Modélisation de la porosité macroscopique

La distance entre deux mèches voisines peut être modélisée par une distance équivalente e_{macro} entre deux plaques parallèles (Γ. Lundström 2000) (Fig.III.4).

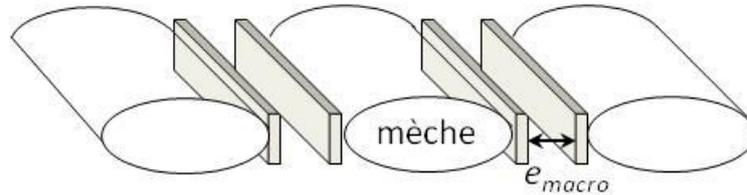


Fig.III. 4 : Modélisation de la porosité macroscopique

En considérant la section de la mèche de forme elliptique avec $S_{mèche} = \pi l_{mèche} H / 4$, e_{macro} peut être estimée par la relation :

$$e_{macro} = \frac{l_{pli} - \left(\frac{4n_{mèches} * S_{mèche}}{\pi H} \right)}{(n_{mèches} - 1)} \quad \text{Eq.III. 15}$$

Pour le pli considéré, e_{macro} est estimée à 373 μm .

Bizet (2004) exprime le libre parcours moyen des mèches suivant une direction horizontale à partir d'une approche basée sur des considérations granulométriques linéiques :

$$\overline{L_{macro}} = e_{macro} = \frac{\pi l_{mèche}}{4} \quad \text{Eq.III. 16}$$

Une relation polynômiale empirique permet alors d'estimer le libre parcours moyen des macropores en fonction de la macroporosité a été proposée :

$$\overline{L_{macro}} = 1949,1 \varepsilon_{micro}^2 + 365,9 \varepsilon_{micro} + 66,7 \quad \text{Eq.III. 17}$$

Pour l'échantillon d'UD de verre considéré, la valeur du libre parcours moyen donnée par cette relation est égale à 293 μm qui est inférieure à la valeur déterminée à partir des considérations géométriques simplifiées.

III.3.4 Progression capillaire dans les deux canaux

En supposant que les deux canaux modèles sont séparés, La méthode de Washburn permet en général de caractériser une dimension capillaire effective dans le cas des micropores et des macropores. Cette approche micro/macro est valable si les porosités ne sont pas interconnectées.

Dans **les micropores**, la porosité élémentaire peut être considérée comme un tube de rayon effectif microscopique R_{micro} . Pour les fibres de verre unidirectionnelles, en supposant que les espacements peuvent être assimilés à des micro-tubes droits, la loi de Washburn simplifiée (paragraphe II.2.3.1) s'écrit alors (en négligeant les effets inertiels aux instants courts) :

$$\frac{dh}{dt} = \frac{R_{micro}^2}{8\eta h} \left(\frac{2\gamma_L \cos\theta_e}{R_{micro}} - \rho gh \right) \quad \text{Eq.III. 18}$$

La hauteur d'équilibre dans le micro-tube équivalent est alors :

$$h_{\acute{e}q} = \frac{2\gamma_L \cos\theta_e}{\rho g R_{micro}} \quad \text{Eq.III. 19}$$

Pour le n-heptane ($\cos\theta_e \approx 1$, $\gamma_L = 19,9 \pm 0,1$ mN.m⁻¹; $\eta = 0,41.10^{-3}$ Pa.s et $\rho = 683$ kg.m⁻³ à 25°C), la hauteur d'équilibre est prévue à 1,74 m pour $R_{micro} = 3,45$ μm.

La loi de Washburn se simplifie en une loi diffusive (effet de gravité négligé) pour une progression capillaire horizontale ou pour $h \ll h_{\acute{e}q}$ dans le cas d'une progression capillaire verticale :

$$h^2(t) = \frac{R_{micro}\gamma_L \cos\theta_e}{2\eta} t \quad \text{Eq.III. 20}$$

Dans **les macropores**, la loi de Washburn appliquée à deux plaques parallèles distantes de e_{macro} s'écrit :

$$\frac{dh}{dt} = \frac{e_{macro}^2}{12\eta h} \left(\frac{2\gamma_L \cos\theta_e}{e_{macro}} - \rho gh \right) \quad \text{Eq.III. 21}$$

soit une hauteur d'équilibre dans un macrocanal :

$$h_{\acute{e}q} = \frac{2\gamma_L \cos\theta_e}{\rho g e_{macro}} \quad \text{Eq.III. 22}$$

Pour le n-heptane, $h_{\acute{e}q}$ est prévue à 16,10 mm pour $e_{macro} = 373$ μm.

La loi de mouvement dans le macrocanal peut être décrite par deux régimes :

- un régime visqueux diffusif pour une progression capillaire horizontale ou dans le cas où $h \ll h_{\acute{e}q}$ (progression verticale) donné par :

$$h^2(t) = \frac{e_{macro}\gamma_L \cos\theta_e}{3\eta} t \quad \text{Eq.III. 23}$$

- puis un régime visco-gravitationnel pour une progression capillaire verticale avec $h > 0,1h_{\acute{e}q}$. L'intégration de la loi de Washburn, donne une loi de mouvement de la forme :

$$h(t) = \frac{\alpha}{\beta} \left(1 - e^{-\frac{\beta^2}{\alpha} t} \right) \quad \text{Eq.III. 24}$$

avec $\alpha = \gamma_L e_{macro} \cos \theta_e / 6\eta$ et $\beta = \rho g (e_{macro})^2 / 12\eta$ pour deux plaques parallèles distantes de e_{macro} .

Un exemple des hauteurs d'équilibre prévues par la loi de Jurin de quelques liquides pour les deux canaux caractéristiques du pli utilisé est donné dans la Tab.III. 2.

	$h_{\acute{e}q}(mm)$			
	heptane	47V20	47V100	47V1000
$R_{macro} = 3,5 \mu m$	1739,0	1279,0	1261,7	1257,4
$e_{macro} = 373 \mu m$	16,0	11,8	11,7	11,6

Tab.III. 2 : Hauteurs d'équilibre prévues par la loi de Jurin pour les deux canaux caractéristiques du pli

Pour une huile silicone 47V100, la hauteur d'équilibre moyenne expérimentale dans un macrocanal obtenue est ~ 9 mm légèrement inférieure au 11,7 mm prévue par la théorie (Fig.III.5).

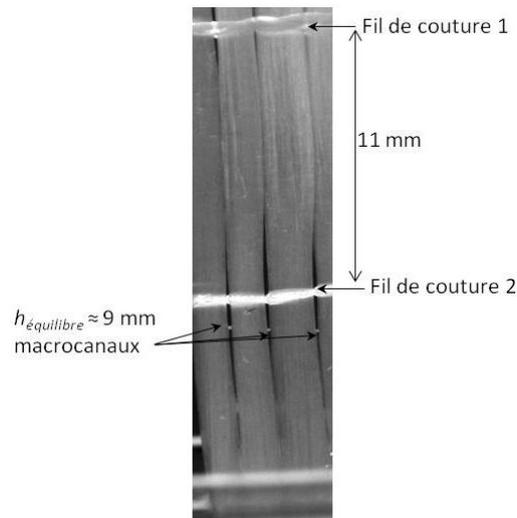


Fig.III. 5 : Hauteur moyenne à l'équilibre de 47V100 dans les macrocanaux

Pour la cinétique de la progression capillaire verticale des liquides dans le pli de verre UD, la loi de Washburn prévoit une progression plus rapide dans les espacements inter-mèches mais le liquide monte à peu près 100 fois plus haut dans les espacements intra-mèches. Un exemple de l'ascension de la silicone 47V20 prévue par le modèle de Washburn dans les deux canaux caractéristiques est représenté sur la Fig.III. 6.

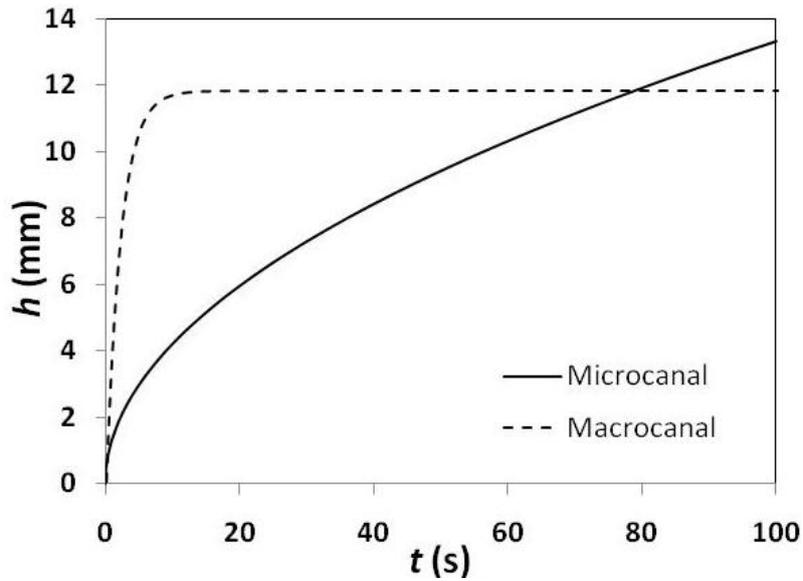


Fig.III. 6 : Prévisions de la hauteur du front du 47V20 dans les microcanaux et les macrocanaux

Dans le cas où l'envahissement se fait dans un pli horizontal, la progression capillaire dans les microcanaux et dans les macrocanaux se réduit simplement à une loi diffusive où l'écoulement du liquide dans les macrocanaux sera toujours en avance par rapport à celui dans les microcanaux comme le montre la Fig.III. 7 pour une huile silicone 47V20.

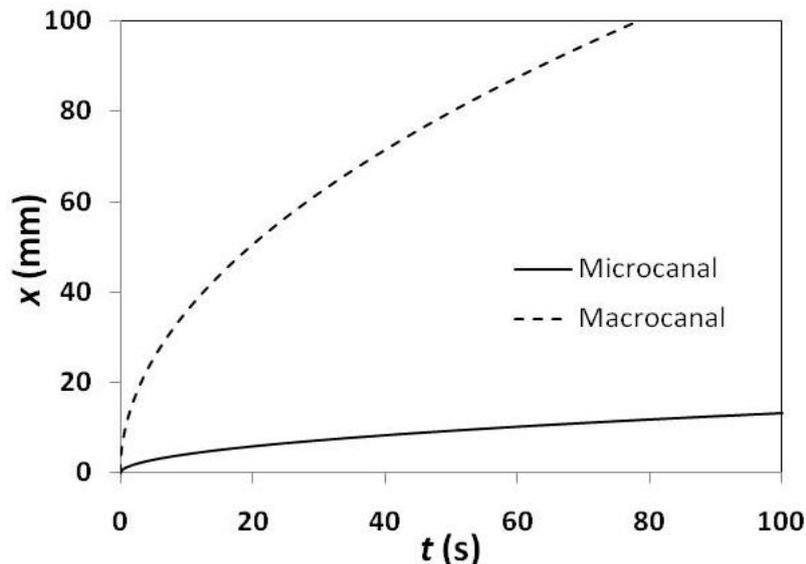


Fig.III. 7 : Prévisions de la position horizontale du front du 47V20 dans les microcanaux et les macrocanaux

III.3.5 Influence des angles dynamiques

L'analyse développée jusqu'à maintenant a été basée sur le modèle de Washburn simplifié où l'angle de contact considéré entre le liquide imprégnant et le pli imprégné est un angle d'équilibre. Pour un liquide mouillant donné, la relation de Tanner-de Gennes (paragraphe II.3.1) montre que l'angle de contact dynamique dépend de la vitesse de progression du liquide dans le canal considéré. On peut donc s'attendre à une influence plus importante de ces angles à l'échelle macro comme illustré pour la 47V20 sur la Fig.III. 8.

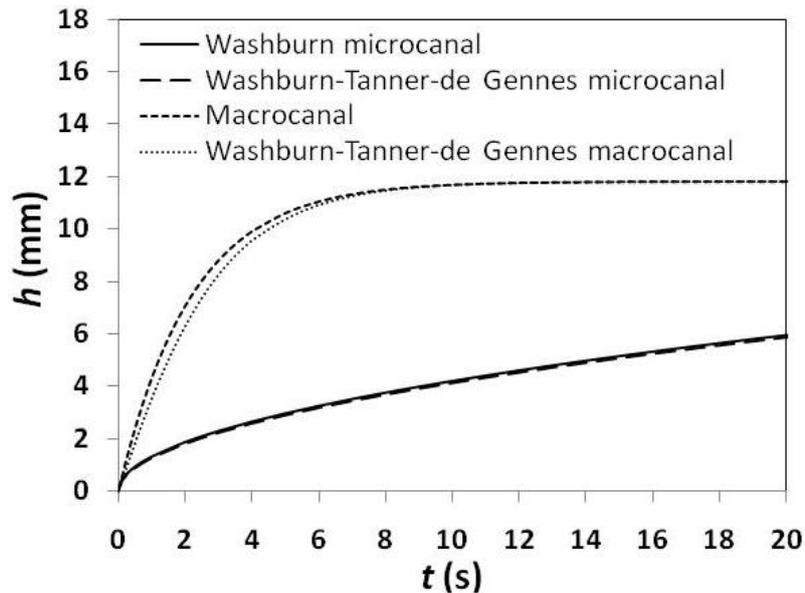


Fig.III. 8 : Influence des angles de contact dynamiques lors de l'ascension de l'huile silicone 47V20 dans le macrocanal et dans le microcanal

Jusqu'ici, les prévisions de la progression capillaire d'un liquide mouillant dans un pli unidirectionnel modélisé par des canaux modèles peuvent être décrites par la loi de Washburn. L'hypothèse considérant que les canaux modèles ne sont pas interconnectés permet de considérer que l'écoulement est indépendant dans chaque canal et s'y effectue suivant une seule direction. Dans le cas réel, ces canaux sont interconnectés et on peut par conséquent s'attendre à des échanges qui peuvent avoir lieu lors de l'imprégnation capillaire du pli. Par conséquent, les paramètres géométriques de la préforme (e_{macro} et R_{micro}) ne devraient pas être les seuls caractéristiques permettant de décrire l'imprégnation.

III.4 Etude expérimentale de l'ascension capillaire

Pour le pli en fibres de verre unidirectionnelles décrit dans le paragraphe III.3.1, quelques expérimentations de son imprégnation capillaire verticale par des liquides modèles ont été menées et sont présentées ici.

III.4.1 Dans un pli de verre UD (macro)

Le pli est accroché à une balance puis mis en contact avec le liquide. Le dispositif expérimental (Fig.III. 9) permet le suivi de la masse du liquide en ascension capillaire dans la préforme en fonction du temps. Les liquides utilisés sont les huiles silicones 47V20, 47V100 et 47V1000 caractérisées dans le chapitre I.

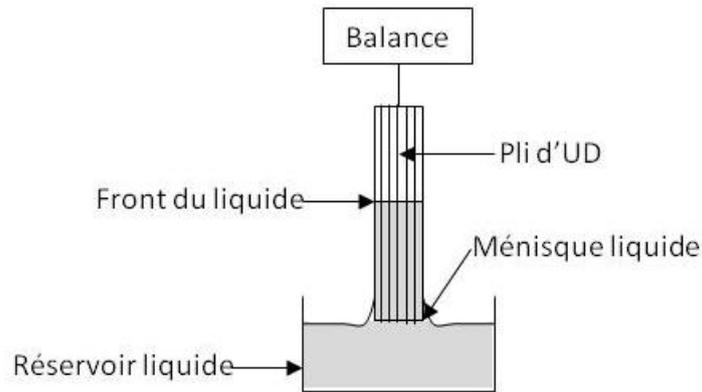


Fig.III. 9 : Ascension capillaire d'un liquide dans un pli de verre UD

L'ascension capillaire est perturbée par un ménisque extérieur lors de la mise en contact du pli avec le liquide dans le réservoir. La masse du liquide en ascension capillaire est donc donnée par :

$$m_{liq}(t) = m_{mesurée}(t) - m_{ménisque}(t) \quad \text{Eq.III. 25}$$

Contrairement à une géométrie modèle (tube capillaire cylindrique par exemple), la masse du ménisque pour une préforme fibreuse est plus délicate à quantifier. La méthode utilisée ici pour s'affranchir du ménisque de mouillage est celle proposée par Pezron et al (Pezron, Bourgain et Quéré 1995). Cette méthode est expérimentale et permet de déduire la masse du ménisque en extrapolant la partie linéaire de $m(\sqrt{t})$ à l'ordonnée à l'origine.

Le rayon effectif capillaire R_c de la préforme est déduit généralement à partir de la hauteur visualisée à l'équilibre d'un liquide parfaitement mouillant. Dans notre cas, l'étude s'est restreinte

à des pesées au cours du temps. La précision de la balance utilisée est de 10^{-2} g. Pour l'huile silicone 47V20 ($\cos \theta_e \approx 1$, $\gamma_L = 20,6 \pm 0,1$ mN.m $^{-1}$; $\eta = 0,02$ Pa.s et $\rho = 950$ kg.m $^{-3}$ à 25°C), le relevé en pesée de sa progression dans le pli de verre UD au cours du temps est reporté sur la Fig.III. 10.

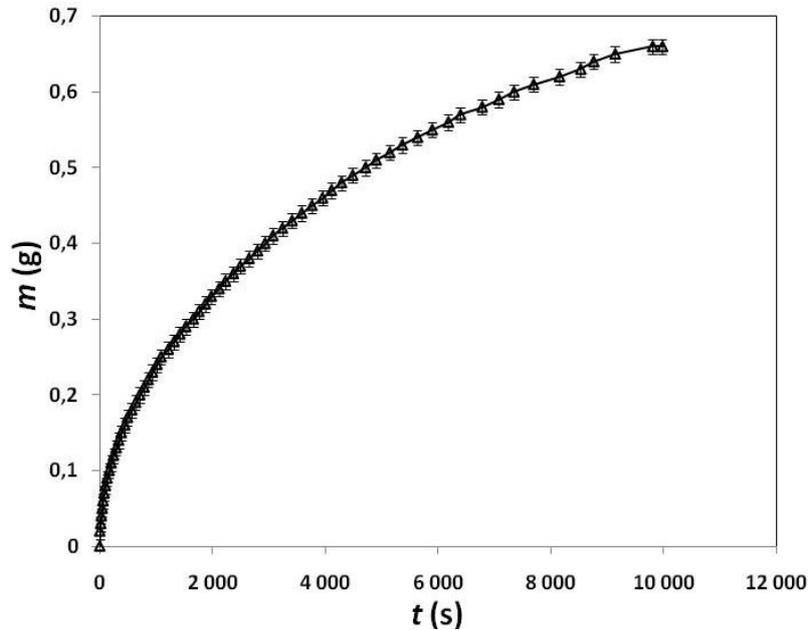


Fig.III. 10 : Relevé en pesée de l'ascension capillaire de 47V20 dans le pli de verre UD

La courbe $m = f(t)$ présente une allure similaire à celle de la progression capillaire dans un milieu poreux isotrope. La modélisation des macropores dans le pli par des plaques parallèles indépendantes et distantes de $e_{macro} = 373$ μm prévoit une masse d'équilibre $2,1 \cdot 10^{-3}$ g dans un macrocanal. Expérimentalement, l'équilibre est atteint pour une masse totale $m_{\text{eq}} = 0,66$ g, soit $55 \cdot 10^{-3}$ g dans un macrocanal. Cela correspond à une distance entre plaques de 80 μm inférieure aux 373 μm prévus. Il en résulte que le remplissage des macrocanaux ne s'effectue pas seulement par l'ascension capillaire, mais aussi par les microcanaux qui viennent se déverser dans les macrocanaux.

Pour l'ascension capillaire des 3 huiles silicones 47V20, 47V100 et 47V1000 dans des plis d'UD similaires (Fig.III. 11), la loi de Jurin prévoit l'obtention d'une masse à l'équilibre quasiment identique.

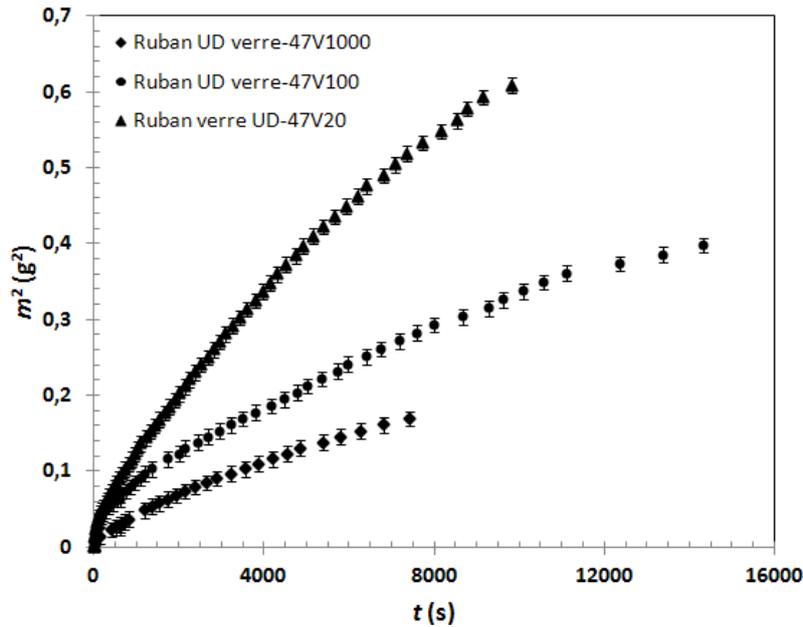


Fig.III. 11 : Carré de la masse de l'ascension capillaire d'huiles silicones 47V20, 47V100 et 47V1000

Le rayon capillaire statique moyen R_c n'est pas le seul paramètre géométrique caractérisant le milieu fibreux. Un rayon dynamique R_d doit être pris en compte dans le modèle de Washburn :

$$\frac{dh}{dt} = \frac{R_d^2}{8\eta h} \left(\frac{2\gamma_L \cos\theta_e}{R_c} - \rho gh \right) \quad \text{Eq.III. 26}$$

A priori, ces deux rayons ne sont pas nécessairement identiques. Le premier décrit le moteur capillaire moyen alors que le second prend aussi en compte une dissipation visqueuse. En général le rayon dynamique est plus petit que le rayon statique. Pour une structure poreuse ouverte, un terme lié à l'évaporation du liquide peut être pris en compte dans le modèle de Washburn. En considérant que les huiles silicones utilisées sont peu volatiles, ce terme peut être négligé.

Finalement, il est clair que, pour une progression capillaire dans un pli à double échelle de pores, l'imprégnation capillaire est gouvernée par les micropores. L'étude de l'ascension capillaire dans une mèche en fibres de verre UD fait l'objet du paragraphe suivant. Cette étude permet d'apporter des éléments sur le phénomène de remplissage des micropores.

III.4.2 Dans une mèche de verre UD (micro)

Ici, les fibres de verre UD sont insérées dans un tube capillaire de section circulaire de rayon R_c . La porosité est donc donnée par :

$$\varepsilon_{micro} = 1 - \frac{nb^2}{R_c^2} \quad \text{Eq.III. 27}$$

Les mèches sont coupées à une longueur $L_{mèche} = 35 \pm 1$ mm. La masse de la mèche $m_{mèche}$ est déterminée par pesée avec une incertitude de $\pm 0,005$ g. Les tubes capillaires utilisés ont un rayon interne $R_c = 0,6$ mm. Le taux de porosité ε_{micro} s'écrit en fonction des données :

$$\varepsilon_{micro} = 1 - \frac{m_{mèche}}{\pi R_c^2 L_{mèche} \rho_{fibre}} \quad \text{Eq.III. 28}$$

Le tube contenant la mèche est suspendu verticalement à la microbalance K100 SF. Le réservoir liquide est amené au contact du tube puis stoppé. La masse du liquide pénétrant dans la mèche au cours du temps est relevée. Cette masse est corrigée par la soustraction de la masse du ménisque formée rapidement autour de la paroi externe du tube (voir paragraphe I.6.4.2).

Expériences avec le n-heptane

L'utilisation d'un liquide parfaitement mouillant permet d'obtenir un rayon capillaire statique caractéristique d'un milieu fibreux isotrope. Le liquide utilisé ici est le n-heptane ($\cos \theta_e \approx 1$, $\gamma_L = 19,9 \pm 0,1$ mN.m⁻¹ ; $\eta = 0,41.10^{-3}$ Pa.s et $\rho = 683$ kg.m⁻³ à 25°C). L'évolution de la masse en fonction du temps est suivie pour des mèches de différentes porosités.

Les profils des courbes $m = f(t)$ présentent des allures classiques de progression capillaire dans des milieux poreux isotropes. Les $m(t)$ montrent un comportement linéaire pour les temps courts (jusqu'à 2s), justifiant l'application du modèle de Washburn (Fig.III. 12). La pente de $m^2(t)$ permet alors de déduire du rayon microscopique moyen R_{micro} caractéristique de l'espacement entre les fibres de verre UD au sein d'une mèche unitaire.

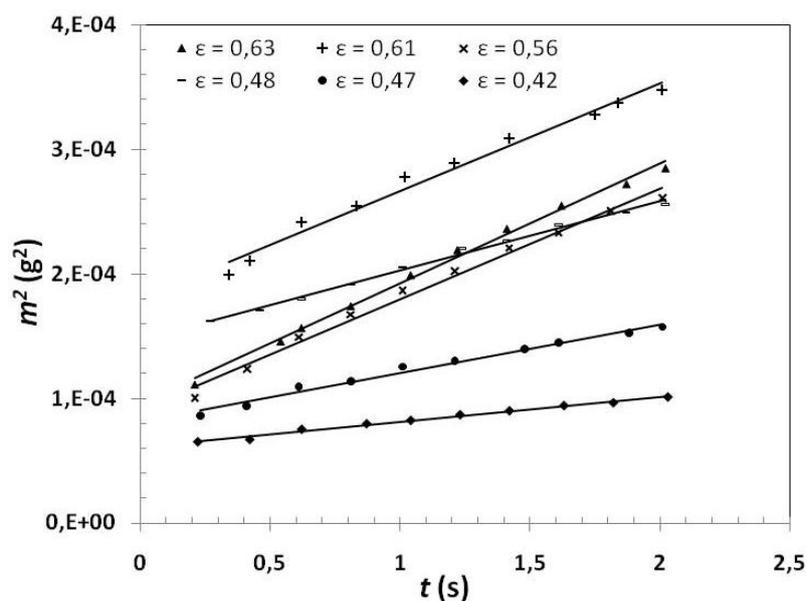


Fig.III. 12 : Carré de la masse de l'ascension du n-heptane dans des mèches en verre UD insérées dans des tubes capillaires

Pour une masse suffisamment faible, l'ascension capillaire du liquide dans la mèche au cours du temps s'écrit suivant le modèle de Washburn :

$$m^2(t) = \frac{\pi^2 \rho^2 R_{micro}^5 \gamma_L \cos \theta_e}{2\eta} t \quad \text{Eq.III. 29}$$

Les valeurs expérimentales des rayons microscopiques pour différents taux de porosité de la mèche sont déduites des pentes des courbes de la Fig.III. 12. Ces valeurs sont comparées à celles prédites par l'Eq.III.12 pour les arrangements des fibres en réseaux triangulaire et carré et sont comparées à une approche par granulométrie linéaire (Bizet, 2004). Une estimation du libre parcours moyen dans les micropores en fonction de la fraction surfacique des micropores et du rayon des fibres est donnée par :

$$\overline{L_{micro}} = \frac{\pi b}{2} \frac{\varepsilon_{micro}}{1 - \varepsilon_{micro}} \quad \text{Eq.III. 30}$$

avec :

$$\overline{L_{micro}} = 2R_{micro} \quad \text{Eq.III. 31}$$

d'où :

$$R_{micro} = \frac{\pi b}{4} \frac{\varepsilon_{micro}}{1 - \varepsilon_{micro}} \quad \text{Eq.III. 32}$$

Les résultats sont reportés sur la Fig.III. 13.

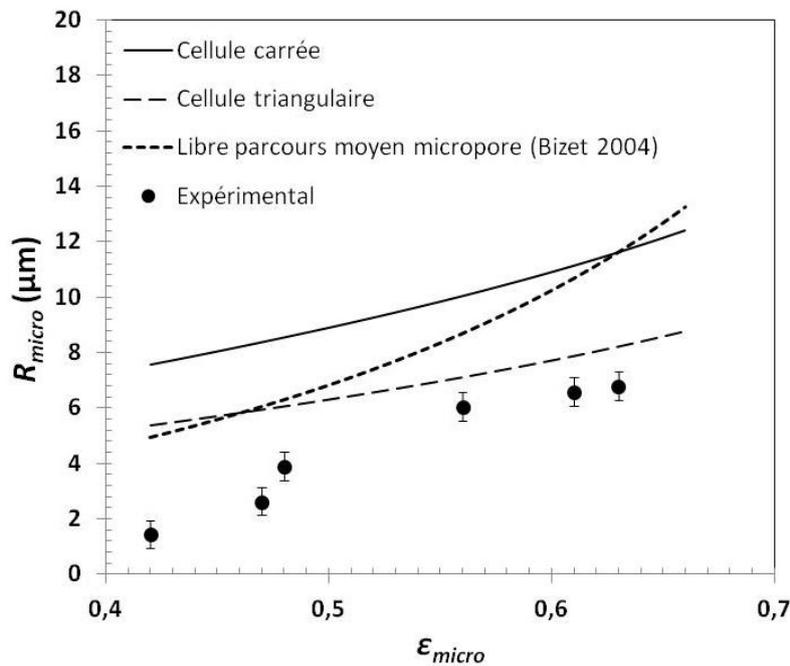


Fig.III. 13 : Comparaison entre valeurs expérimentales des R_{micro} et celles prévues par les modèles d'arrangement des en réseaux carré et triangulaire et par le modèle du libre parcours moyen (Bizet 2004)

Comme pour le cas du pli (paragraphe III.4.1), les valeurs mesurées sont inférieures à celles calculées. Cependant, on peut noter que les points expérimentaux ont une tendance plus proche

de celle du modèle basé sur une approche par granulométrie linéaire. En effet, pour des faibles porosités microscopiques, les fibres sont serrées et donc mieux approchées par une configuration triangulaire alors que pour des microporosités plus élevées, les fibres sont plus espacées et l'empilement en réseau carré peut être considéré.

Expériences avec l'huile silicone 47V20

La même étude est réalisée pour une huile silicone 47V20. Les résultats obtenus sont aussi comparés à ceux prévus par la loi de Washburn pour une porosité microscopique équivalente à un arrangement des fibres en cellules triangulaires (Fig.III. 14).

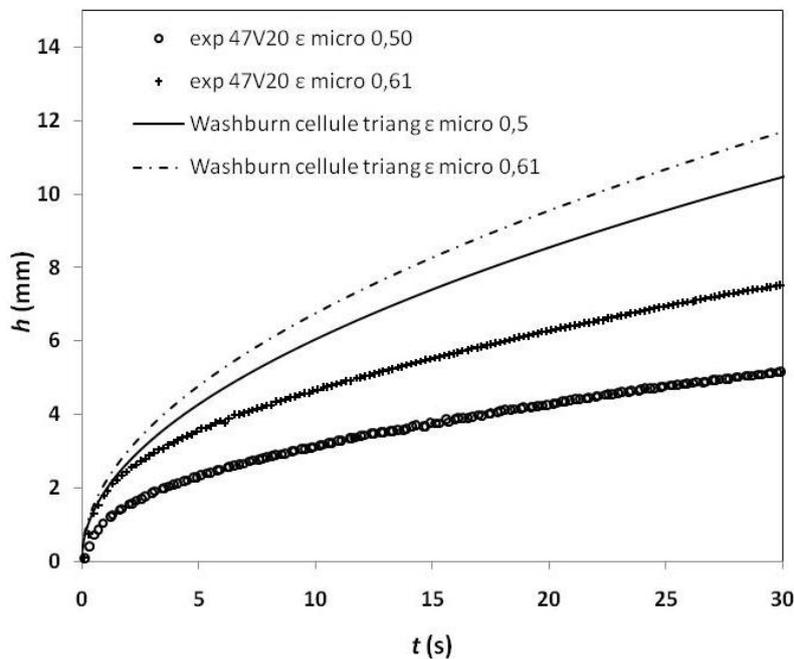


Fig.III. 14 : Ascension capillaire de la silicone 47V20 dans des mèches insérées dans des tubes capillaires

Pour des porosités respectivement de 0,50 et 0,61, les rayons microscopiques prévus par l'arrangement triangulaire des fibres sont 7 et 8 μm tandis que les résultats expérimentaux donnent R_{micro} de 2 et de 4 μm . Ces valeurs obtenues sont proches de celles déterminées par l'heptane, ce qui confirme la validité de la mesure. Néanmoins, ces résultats des rayons microscopiques équivalents déduits du modèle de Washburn sont inférieurs aux valeurs prédites par les modélisations de la cellule poreuse unitaire du réseau triangulaire. L'étude en pesée ne permet pas d'expliquer directement ce constat. Une caméra est alors placée à l'intérieur du tensiomètre. Un éclairage en lumière rouge avec des LED 660 nm est utilisé pour une meilleure visualisation.

Il apparaît que des bulles se forment lors de l'ascension du liquide dans la mèche. Ces bulles sont le plus souvent localisées entre la paroi du tube et la mèche (Fig.III. 15).

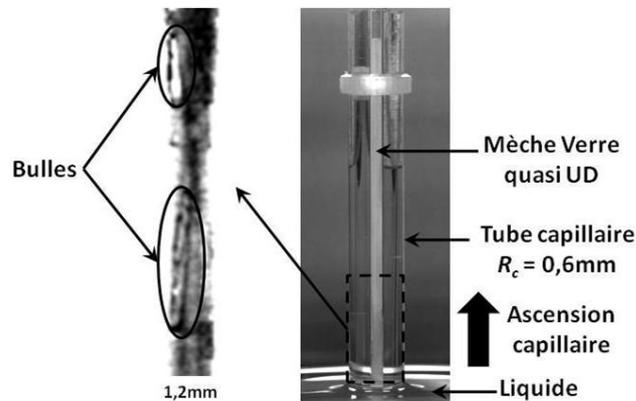


Fig.III. 15 : Formation de bulles lors de l'ascension capillaire d'huile silicone 47V20 dans une mèche insérée dans un tube

Les bulles formées restent bloquées et ralentissent la cinétique de l'ascension capillaire dans la mèche. Leur localisation à proximité de la paroi laisse penser que l'ascension à l'intérieur de la mèche est plus rapide que l'ascension entre cette dernière et la paroi du tube. Ce constat est confirmé par Bico (Thèse de doctorat, 2000) pour deux tubes interconnectés de rayons différents dans lesquels le liquide peut passer librement (Fig.III. 16). Contrairement au cas où les canaux sont fermés (le liquide monte plus rapidement dans un gros tube que dans un tube étroit), l'aspiration capillaire est plus élevée dans les tubes étroits que dans les plus gros. Le liquide monte à la fois plus haut et plus rapidement dans les petits tubes en s'alimentant des grands tubes qui jouent le rôle de réservoirs.

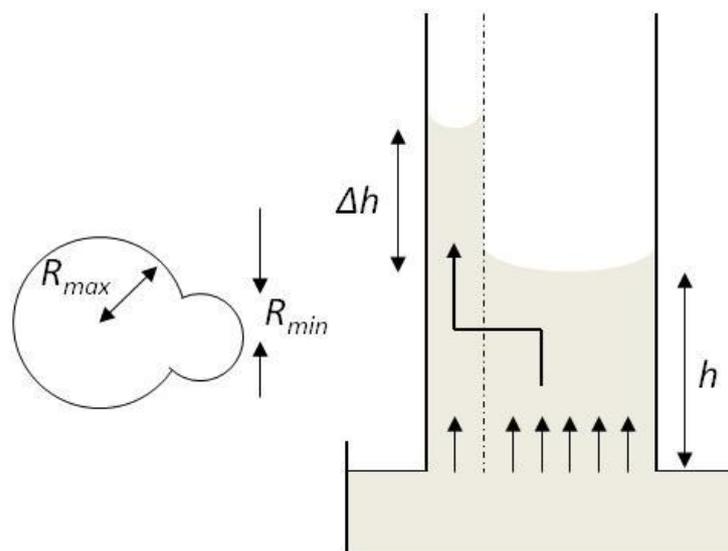


Fig.III. 16 : Ascension capillaire dans des tubes interconnectés (d'après Bico, 2000)

On peut donc imaginer que les bulles formées puis piégées résultent des effets d'avance-retard entre les ménisques en écoulement dans des canaux de tailles différentes. Le ménisque en écoulement dans le canal étroit est en avance par rapport à celui qui est en écoulement dans le gros canal (Fig.III. 17a.). Une fermeture de ménisque peut donner naissance à une bulle dans le canal le plus gros (Fig.III. 17b).

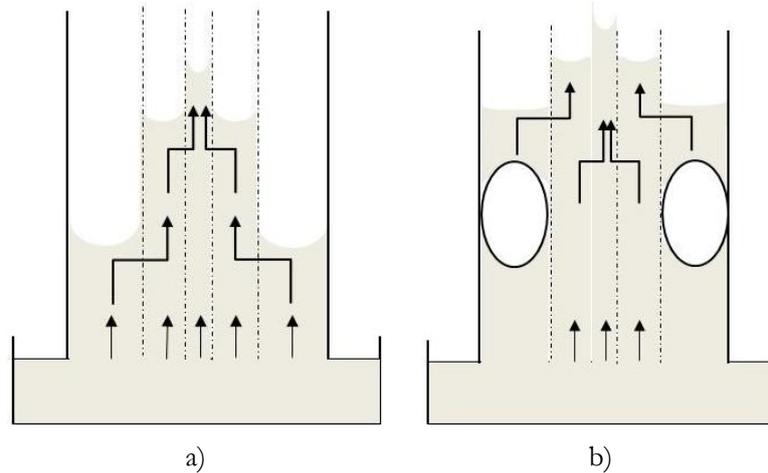


Fig.III. 17 : Ascension capillaire dans des canaux interconnectés de différentes tailles : a) alimentation des petits canaux par les grands canaux et b) formation de bulles par avance-retard des ménisques

L'interconnectivité micro-macro se traduit par la formation des bulles et elle est à l'origine de chutes de pressions dans des milieux à double échelle de pores comme c'est le cas dans un pli UD. Une de des questions est alors de savoir pourquoi ce ménisque se referme, ce qui fait l'objet du chapitre suivant.

III.5 Conclusion

La progression capillaire verticale a été étudiée pour deux échelles de porosités : à l'échelle microscopique pour l'espacement entre les fibres dans une mèche d'UD et à l'échelle macroscopique pour un pli d'UD. Il apparait que les microcanaux gouvernent l'essentiel de l'écoulement du liquide dans un pli d'UD en utilisant les macrocanaux comme des réservoirs d'alimentation ou des déversoirs suivant les conditions.

Dans un pli d'UD, l'interconnectivité micro-macro rend l'écoulement complexe et difficile à caractériser par le modèle de Washburn où les porosités sont supposées isotropes et

indépendantes. Le front de liquide dans la mèche est en avance par rapport au front dans l'espace inter-mèches, ce qui favorise la formation de bulles.

Du point de vue expérimental, il est difficile d'observer la formation et le transport des bulles à l'échelle d'une préforme fibreuse. Cette problématique peut alors être modélisée par la compétition entre deux pressions de ménisques dans deux porosités interconnectées. L'utilisation de réseaux modélisant ces deux porosités permettrait de comprendre plus facilement les mécanismes de formation de bulles dus aux effets d'avance-retard. Cette question fait l'objet du chapitre IV.

**Chapitre IV : formation et
transport de bulles dans deux
pores convergents**

IV.1 Introduction

Les arrangements de fibres induisent en général l'existence de deux tailles de pores : les macropores (Fig.IV. 1.a) et les micropores (Fig.IV. 1.b). Cette porosité double-échelle provoque des différences locales d'écoulement de la résine. Des effets d'avance-retard se créent alors au niveau du front global de résine et génèrent éventuellement des bulles.

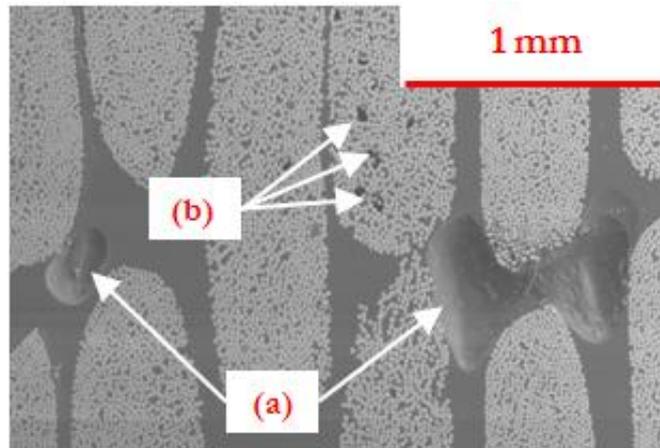


Fig.IV. 1 : (a) Macropores et (b) micropores dans une coupe perpendiculaire aux fibres dans une préforme unidirectionnelle

Soit ces bulles sont mobilisées avec l'écoulement global, soit elles restent bloquées à cause de leur interaction avec les fibres (Fig.IV. 2) ou les mèches. Dans le cas de blocage, les bulles deviennent des défauts qui peuvent entraîner une détérioration significative des propriétés mécaniques du matériau composite (Leclerc et Ruiz 2008).

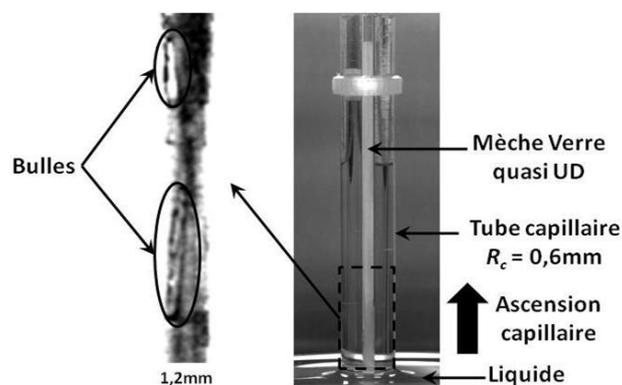


Fig.IV. 2 : Formation de bulles lors d'une remontée capillaire dans une mèche

De nombreux auteurs ont mis en avant la différence entre micropores et macropores pour expliquer la création des bulles (Labat, Bréard, et al. 2001), (Kang, Lee et Hahn 2000). En effet, dans un écoulement de résine imposé par une différence de pression élevée ou à fort débit constant, l'écoulement dans les macropores sera plus rapide que dans les micropores. Des bulles sont alors créées à l'intérieur des mèches. Si, par contre, l'écoulement dans les micropores dû à la pression capillaire est plus rapide que l'écoulement dans les macropores, alors des bulles sont générées dans les macropores.

Ce mécanisme d'avance-retard entre micropores et macropores est très souvent mis en avant pour expliquer l'apparition de bulles dans les matériaux composites.

La structure des macropores joue un rôle prépondérant sur l'écoulement du fluide à l'intérieur de la préforme. Localement, les écoulements dans les macropores ralentissent, accélèrent, se croisent ou se divisent.

Le travail présenté ici est axé sur l'influence de l'arrangement des macropores par rapport à la formation de bulles dans un écoulement au sein d'une préforme et, de manière plus générale, s'intéresse à la compréhension des mécanismes physiques de formation des bulles dans les préformes pour matériaux composites.

Dans cette partie, nous avons fait le choix d'observer la formation de bulles basée sur l'interaction des écoulements dans deux tubes capillaires convergents appelé aussi « réseau en T ». Dans la suite, les deux capillaires modélisent deux pores et leur point de convergence représente la jonction de ces deux pores (Fig.IV. 3). Cela pourrait par exemple modéliser l'intersection d'un « fish-eye » et d'un interpli (Shneider, Edelmann et Tiltmann 2004) formé par la couture ou le point de rencontre entre l'espace entre deux fils de trame et de chaîne d'un pli tissé avec l'interpli. Plusieurs études faisant appel à des techniques variées ont été entreprises pour visualiser l'apparition et le mouvement des bulles dans les préformes fibreuses (Labat, Bréard, et al. 2001), (Odenberger, Andersson et Lundstrom 2004) mais celles-ci demeurent délicates du fait de la présence des fibres. L'utilisation de capillaires permet de s'exonérer des difficultés rencontrées lors de la visualisation in-situ des écoulements dans les préformes fibreuses (Fig.IV. 3). Dans ce modèle les pressions et les débits dans les deux branches du T sont à priori indépendants. Dans un cas concret, les écoulements dans les deux branches de cette connexion élémentaire dépendent de l'écoulement dans la globalité de la matrice.

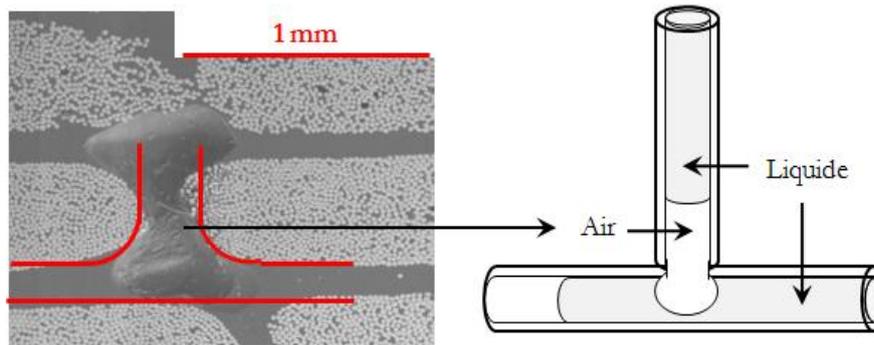


Fig.IV. 3 : Modélisation simple de la convergence de deux macropores par un tube en T

Plusieurs études ont été réalisées sur la formation et le mouvement des bulles dans un liquide au repos ou en mouvement. Cependant les résultats restent difficiles à interpréter pour plusieurs raisons : nombreuses bulles, écoulements turbulents, transferts thermiques et massiques en ébullition, angles de contact dynamiques difficiles à déterminer, etc. De ce fait, l'étude peut être simplifiée en utilisant des réseaux modélisant la compétition des écoulements dans des porosités convergentes.

IV.2 Bibliographie

IV.2.1 Généralités

Grâce aux développements des micro-réseaux dans plusieurs domaines, la compréhension des écoulements à l'échelle micro et nanoscopique a nettement progressé durant la dernière décennie. En effet, à une échelle microscopique, des phénomènes physiques habituellement négligeables deviennent importants. Ces phénomènes jouant un rôle à faible échelle sont, entre autre, liés aux propriétés physico-chimiques des phases en contact. Dans la technologie microchimique par exemple, les interactions entre deux fluides immiscibles et leur transport dans des canaux microscopiques sont un sujet d'actualité.

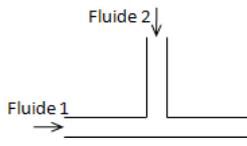
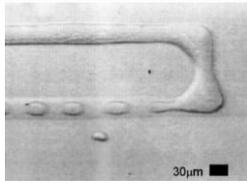
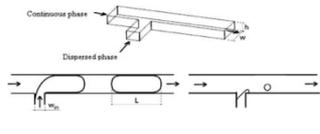
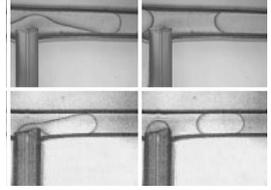
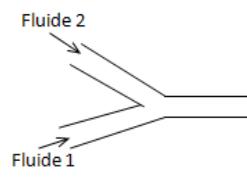
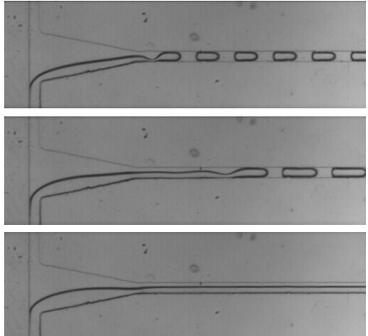
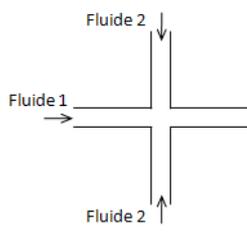
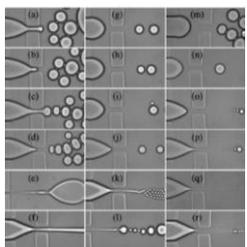
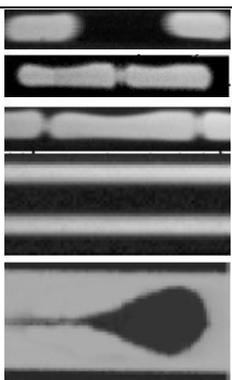
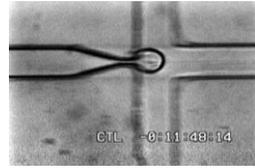
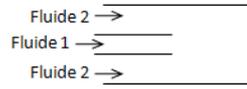
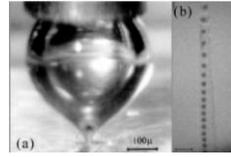
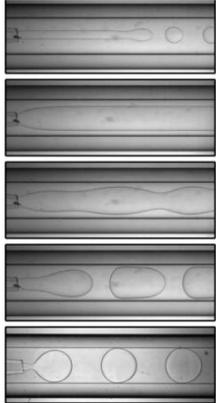
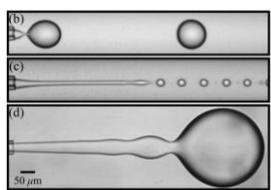
Les écoulements diphasiques dans des microcanaux ont fait l'objet de plusieurs études pour des applications différentes permettant généralement la création des gouttes ou des bulles monodispersées par l'interaction de deux fluides immiscibles (Thorsen, et al. 2001), (Gañán-Calvo et Gordillo 2001), (Baroud et Willaime 2004). Certaines études ont démontré que différentes formes de gouttes (gouttelettes, perles, lamelles...) peuvent être obtenues en fonction des régimes des écoulements imposés dans ces canaux (Dreyfus, Tabeling et Willaime 2003), (Anna, Bontoux et Stone 2003), (Baroud et Willaime 2004), (Guillot et Colin, Stability of parallel flows in microchannel after a T-junction 2005), (Guillot, Colin et Utada, et al. 2007). D'autres travaux se

sont intéressés, quant à eux, à la caractérisation dimensionnelle des gouttes ou des bulles mono-dispersées dans un écoulement continu de fluide (Garstecki, et al. 2004), (Xu, et al. 2005), (Garstecki, Fuerstman et Stone 2006), (J. Xu, et al. 2006), (Utada, et al. 2007), (de Menech, et al. 2008), (J. H. Xu, et al. 2008), (Fu, et al. 2010), (van Steijn, Kleijn et Kreutzer 2010). Récemment, quelques papiers (Baroud, Gallaire et Dangla 2010), (Zhao et Middelberg 2011) ont résumés l'ensemble de ces travaux en décrivant quelques réseaux microfluidiques utilisés dans l'ensemble de la littérature. Ces études se sont focalisées sur les caractéristiques physiques d'une goutte/bulle dans un écoulement de Taylor tels que les régimes de transition, la vitesse de la bulle, l'épaisseur du film et les pertes de charges (Kreutzer, et al. 2005), (Baroud, et al. 2010).

La production de gouttelettes/bulles dans les microcanaux peut être obtenue par trois principaux mécanismes physiques :

- i) Ecoulements convergents (Cross-Flowing Streams), où les bulles sont obtenues en faisant converger deux fluides immiscibles. Pour cette configuration, les jonctions en T sont les plus souvent utilisées (Thorsen et al. 2001, Garstecki et al. 2006, Christopher et al. 2008, Xu et al. 2008, Fu et al. 2010, van Steijn et al. 2010).
- ii) Ecoulements bi-convergents (Microfluidic Flow Focusing Devices), la phase continue, qui s'écoule dans deux microcanaux, cisaille la phase discontinue dans une constriction créant un écoulement élongationnel (Anna et Stone 2003, Dreyfus et al. 2003, Baroud et Willaime 2004).
- iii) Ecoulements coaxiaux (Co-Flowing Streams), dans lesquels les détachements des bulles sont dus aux écoulements annulaires dans un système d'injection coaxial (Gañán-Calvo 2001, Guillot et al. 2007, Utada et al. 2007).

Quelques exemples de ces mécanismes sont présentés dans la Tab.IV. 1

	T		 <p>Thorsen (2001)</p>	 <p>Garstecki et al (2004)</p>	 <p>Xu et al (2008)</p>
<i>i</i>	Y		 <p>Guillot et Colin (2005)</p>		
<i>ii</i>	+		 <p>S. Anna et H. A. Stone (2003)</p>	 <p>Dreyfus et al (2003)</p>	 <p>Baroud et Willaime (2004)</p>
<i>iii</i>	/ /		 <p>A. M. Gañán-Calvo (2001)</p>	 <p>Guillot et al (2007)</p>	 <p>Utada et al (2007)</p>

Tab.IV. 1 : Quelques systèmes microfluidiques issus de la littérature permettant la création des bulles mono dispersées : i) Cross-Flowing Streams, ii) MFFD et iii) Co-Flowing Streams

IV.2.2 Régimes des bulles dans un T

Plusieurs études se sont intéressées aux régimes des écoulements et leurs effets sur les formes et les tailles des bulles créées dans un réseau en T (Garstecki et al. 2006, De Menech et al. 2008, Xu et al. 2008, Christopher et al. 2008, van Steijn et al. 2010). Certains montages de ces études sont présentés Tab.IV. 1.

Deux principaux régimes, dans lesquels les bulles se forment, peuvent être distingués :

- un régime de force de tension de surface (Garstecki et al. 2006, de Menech et al. 2008, Xu et al. 2008) : la force de traînée qui cisaille la phase gaz est plus faible que la force de tension de surface ($10^{-4} < Ca < 10^{-2}$). Par conséquent, la phase gazeuse s'étend dans le liquide en écoulement (Q_1) donnant ainsi naissance à de longues bulles qui se détachent par l'équilibre de Laplace. La croissance de la bulle se passent en deux phases : une phase de remplissage où le gaz (Q_2) pénètre dans l'écoulement continu jusqu'à ce qu'il l'obstrue puis, une phase de restriction du col, où l'écoulement continu cisaille l'interface jusqu'au détachement de la bulle. Durant la période de remplissage, la taille de la bulle ne dépend pas des conditions d'injection mais elle est plutôt influencée par le ratio des largeurs des deux canaux (van Steijn et al. 2010). Au cours de la période de restriction du col, la taille de la bulle augmente linéairement en fonction du ratio des débits injectés.
- un régime de force de traînée du liquide (petites bulles ou gouttelettes) (Thorsen et al. 2001, de Menech et al. 2008, Xu et al. 2008, Fu et al. 2010) : la force de traînée est plus importante que la force de tension de surface. Les bulles sont cisillées avant l'équilibre de Laplace. Ce régime est obtenu pour $Ca \geq 10^{-2}$ et les bulles se détachent avant d'obstruer complètement l'écoulement. La longueur caractéristique de la bulle est alors inférieure à la largeur du canal et dépend du ratio des viscosités des phases ainsi que de la vitesse de cisaillement de la phase continue.

Une fois détachées, ces bulles s'écoulent dans le canal principal formant ainsi un écoulement segmenté appelé aussi « train de bulles ».

IV.2.3 Transport des bulles dans un tube capillaire

Plusieurs études se sont intéressées au mouvement relatif d'une bulle par rapport à celui d'un liquide dans des tubes modèles. Les observations montrent que les bulles se déplacent plus rapidement que le liquide et que la vitesse relative d'une bulle est proportionnelle au nombre capillaire $Ca^* = \eta U_b / \gamma_L$, où η est la viscosité dynamique du liquide, U_b , la vitesse de la bulle et γ_L , la tension de surface du liquide (Fairbrother et Stubbs 1935). En effet, en régime quasi-stationnaire et à bas nombre de Reynolds, les forces visqueuses et les forces de tension de surface jouent des rôles antagonistes dans ce régime. Il en résulte que, pour les vitesses des bulles, dans un écoulement de liquide, la lubrification due au film mince déposé par le liquide sur la paroi du capillaire est importante. La dynamique des films liquides minces est dominée par la friction visqueuse et donc bien décrite par l'approximation de lubrification.

Cette hypothèse de lubrification, appelée aussi théorie LLD (Landau et Levich 1942), (Derjaguin 1943), a été développée pour un mouvement de liquide sur une surface libre et montre que l'épaisseur du film déposé sur la surface solide est fonction de Ca^* et proportionnelle à la longueur capillaire (κ^{-1}). Cette théorie a été développée à partir d'une relation basée sur la continuité entre le ménisque dynamique et le ménisque statique. Par conséquent, la théorie LLD est seulement valable lorsque le ménisque dynamique dévie faiblement du ménisque statique, autrement dit pour : $Ca^* \ll 1$. Expérimentalement, il a été démontré que la théorie LLD reste une bonne approche pour : $Ca^* < 10^{-2}$ (Bretherton, The motion of long bubbles in tubes 1961). D'autres études expérimentales sur le mouvement des bulles dans des capillaires de section circulaire et sur l'influence de la longueur de la bulle sur l'épaisseur du film lubrifiant ont été menées avec des liquides visqueux s'écoulant à faibles vitesses pour un domaine de Ca^* plus large (G. I. Taylor 1961), (Schwartz, Princen et Kiss 1986). Les résultats obtenus montrent que l'épaisseur du film augmente avec le nombre capillaire Ca^* et ne dépasse pas une valeur limite de l'ordre de $0,34R_c$ et que la vitesse de la bulle n'excède pas 2,27 fois la vitesse du liquide, soit une vitesse maximale relative de bulle de 0,56 (Taylor 1961). Les études menées sur la vitesse relative de la bulle montrent que cette dernière atteint une valeur asymptotique maximale pour un Ca^* qui tend vers 1. En effet, Cox (Cox 1962) a proposé une résolution numérique du problème de l'épaisseur du film donnant une valeur limite de la vitesse relative de bulle égale à 0,6 qui est assez proche de la valeur trouvée par Taylor (1961). Ce résultat a été confirmé par Thulasidas et al. (Thulasidas, Abraham et Cerro 1995) qui trouvent une valeur limite expérimentale de 0,58.

Dans le cas pratique, l'épaisseur du film lubrifiant n'est pas souvent mesurée directement mais déduite de la vitesse relative de la bulle. Cependant, des essais de mesure directe de l'épaisseur dans des tubes de section circulaire ou rectangulaire ont été tentés avec une technique

conductimétrique (Marchessault et Mason 1960) ou par des observations directes (Han et Shikazono 2009). L'épaisseur du film reste mal contrôlée pour des tubes de section rectangulaire où les coins rendent les mesures sensibles (Thulasidas et al., 1995).

D'autres effets tels que les effets inertiels (caractérisés par le nombre de Weber We) peuvent aussi influencer l'épaisseur du film et peuvent être étudiées en utilisant par exemple des liquides à faible viscosité se déplaçant à des vitesses élevées (Aussillous et Quéré 2000).

IV.3 Dispositif expérimental

Cette partie est d'abord consacrée à la caractérisation des liquides utilisés puis à la description du protocole expérimental. Ensuite, les régimes d'écoulement dans le réseau T et le mécanisme de création de bulles sont analysés.

IV.3.1 Liquides utilisés

Trois liquides différents caractérisés dans le chapitre I sont utilisés pour les expérimentations : deux huiles silicones de la gamme Rhodorsil (47V100 et 47V1000) et un mélange de glycérol 98% et d'eau avec une proportion en volume de 85% pour le glycérol et de 15% pour l'eau.

Le choix d'utiliser deux huiles silicones permet d'étudier l'influence de la viscosité dynamique sur le mécanisme de création et de transport des bulles. Le mélange glycérol/eau a une viscosité dynamique ($\eta = 0,12$ Pa.s) proche de celle de la silicone 47V100 ($\eta = 0,11$ Pa.s), ce qui permet d'étudier l'influence de la tension de surface qui est approximativement doublée.

IV.3.2 Protocole expérimental

Le dispositif expérimental est présenté par la Fig.IV. 4. Un schéma du montage simplifié est représenté sur la Fig.IV. 5.

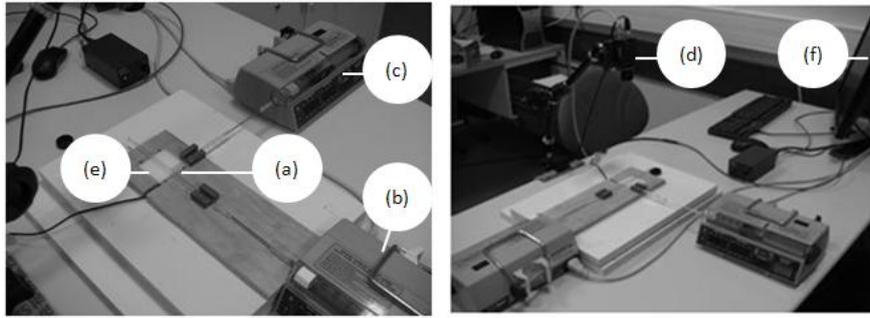


Fig.IV. 4 : Dispositif expérimental

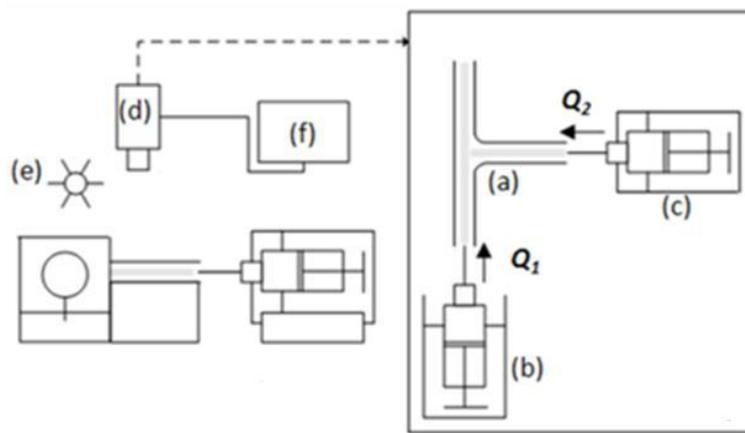


Fig.IV. 5 : Schéma du montage de génération de train de bulles dans un T

Le montage utilise deux capillaires cylindriques qui se rejoignent en un angle droit, aussi appelés capillaires « en T » (a). Le choix d'une section cylindrique pour les tubes capillaires permet de s'affranchir des effets de coins observés pour des sections angulaires (Bico et Quéré, Rise of liquids and bubbles in angular capillary tubes 2002). En effet, les langues de liquide formées dans les coins restent expérimentalement délicates à quantifier.

Deux rayons distincts $R_c = 1,0$ mm et 0,5 mm sont respectivement utilisés pour deux montages en T et donc distincts. Notons que ces rayons sont inférieurs aux longueurs capillaires κ^{-1} caractéristiques des liquides utilisés (pour les huiles silicone, $\kappa^{-1} \approx 1,49$ mm et pour le mélange glycérol/eau, $\kappa^{-1} \approx 1,98$ mm). Les liquides sont injectés par deux pousses seringue (b) et (c), ce qui permet d'imposer des débits constants dans chaque tube capillaire allant de $0,028$ $\text{mm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ à 283 $\text{mm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ avant l'intersection. Q_1 est le débit volumique imposé par (b) dans la section principale du « T » et Q_2 est le débit volumique injecté par (c) dans l'autre section. Les phases de croissance, de détachement et de mouvement des bulles sont filmées à l'aide d'une caméra numérique monochrome Dalsa Génie-M1024-1/3 (d) qui permet d'obtenir de 15 à 25 images par seconde. Les images sont extraites avec une résolution de 1024×768 pixels. Un

éclairage en lumière rouge grâce à des LED 660 nm (e) est utilisé pour une meilleure visualisation. Des corrections optiques sont prises en compte pour les valeurs extraites des positions des fronts de bulles et de liquides en écoulement dans les tubes capillaires. Ces corrections sont détaillées dans l'Annexe 2.

Les contours des bulles et les fronts des liquides sont détectés par traitement d'images à l'aide du logiciel Aphelion 3.2 sur le poste de traitement (f). Avant chaque essai, les tubes capillaires sont rincés à l'eau distillée et à l'éthanol, puis séchés à l'air comprimé filtré.

IV.3.3 Caractérisation de l'écoulement

Les écoulements de fluides sont généralement décrits par de nombreux paramètres liés aux différents phénomènes physiques en jeu. Cependant, dans des canaux très petits, les effets de la tension de surface et de la viscosité sont prédominants. Nous évaluons dans cette partie les nombres adimensionnels relatifs à l'écoulement dans le canal principal définis dans le chapitre II et permettant de comparer les différents effets présents lors des écoulements imposés dans le T. L'étude est réalisée à température constante (25°C). Il est important de rappeler qu'une variation de la température peut influencer les effets de la tension de surface (chapitre I), ce qui peut être évalué à l'aide du nombre de Marangoni Ma .

Les expressions et les limites expérimentales des nombres adimensionnels caractéristiques des écoulements étudiés sont donnés dans la Tab.IV. 2.

Nombres adimensionnels	Expression	Domaine
Nombre de Reynolds Re_1	$2\rho U_1 R_c / \eta$	$1,34.10^{-4} \leq Re_1 \leq 1,62.10^{-1}$
Nombre capillaire Ca_1	$\eta U_1 / \gamma_L$	$1,30.10^{-4} \leq Ca_1 \leq 1,90.10^{-1}$
Nombre de Bond Bo	$\rho g R_c^2 / \gamma_L$	$1,10.10^{-1} \leq Bo \leq 4,52.10^{-1}$
Nombre de Froude Fr_1	$U_1^2 / (2gR_c)$	$1,32.10^{-7} \leq Fr_1 \leq 2,04.10^{-2}$
Nombre de Weber We_1	$2\rho U_1^2 R_c / \gamma_L$	$1,34.10^{-7} \leq We_1 \leq 9,20.10^{-3}$

Tab.IV. 2 : Nombres adimensionnels caractéristiques des écoulements dans le T

Par conséquent, l'influence relative des différentes forces peut être classée dans l'ordre croissant suivant : forces inertielles, forces gravitationnelles, forces visqueuses et forces de

tension de surface. Les écoulements caractéristiques des expérimentations se font donc dans un régime visco-capillaire.

IV.3.4 Formation des bulles

Plusieurs modèles dynamiques ont été proposés pour prédire la croissance et le détachement d'une bulle en proche paroi (Klausner, et al. 1993), (Thomcroft, Klausner et Mei 2001). Des difficultés restent, cependant, à relever sur la quantification des forces agissantes sur la bulle lors de sa croissance, son détachement et son mouvement.

Pour un liquide au repos, le détachement d'une bulle injectée se fait lorsque la force de flottabilité est supérieure à la force capillaire. Sur une paroi et en présence d'un écoulement horizontal, la croissance et le détachement d'une bulle est caractérisée par quatre étapes (Fig.IV. 6) :

(a) un régime stationnaire caractérisé par une croissance rapide de la bulle au voisinage de son site de nucléation, (b) une phase de glissement durant laquelle le volume de la bulle augmente très lentement, (c) une étape intermédiaire à l'approche du détachement où apparaît un col de détachement et finalement (d) le détachement de la bulle.

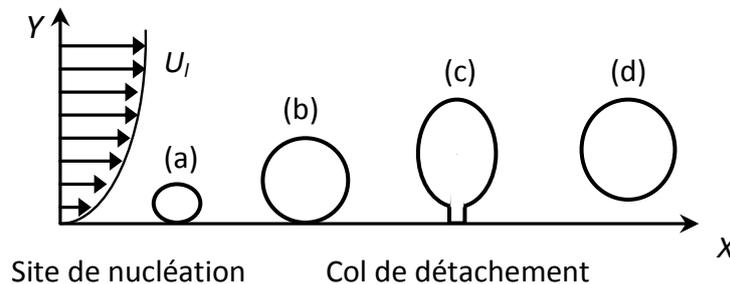


Fig.IV. 6 : Modèle de Klausner et al. (1993) : Croissance et détachement d'une bulle sur une paroi en présence d'un écoulement horizontal

Les deux forces essentielles dans la phase de croissance de la bulle sont la force de tension de surface F_S qui permet à la bulle de rester collée sur la paroi solide et la force de traînée F_T du liquide en écoulement qui tend à la cisailer pour l'arracher de la paroi (Fig.IV. 7). Klausner et al. (1993) montre que lorsqu'une bulle est attachée à son site de nucléation, elle croît de façon asymétrique avec un angle θ_i lié à l'inclinaison de la bulle en croissance (Fig.IV. 7).

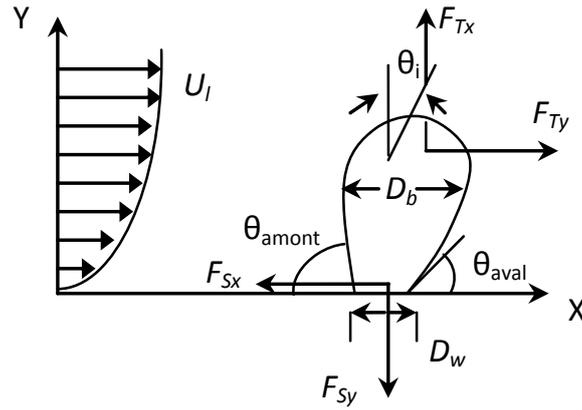


Fig.IV. 7 : Croissance d'une bulle sur une paroi en présence d'un écoulement horizontal de liquide : F_{Tx} et F_{Ty} sont respectivement les forces de trainée suivant les directions X et Y , F_{Sx} et F_{Sy} respectivement les forces de tension de surface suivant X et Y (d'après Klausner et al., 1993)

Pour cette étude, les bulles sont créées par un effet d'avance-retard en imposant deux débits transversaux différents Q_1 et Q_2 . La Fig.IV. 8 représente un exemple des étapes de formation de bulle pour un débit $Q_1 = 0,83 \text{ mm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. La phase gazeuse qui est poussée par l'écoulement (Q_2) pénètre dans l'écoulement principal (Q_1). Durant la phase de croissance (Fig.IV. 8 i et ii), une compétition entre la force de cisaillement de l'interface et la force permettant son injection dans l'écoulement a lieu. La bulle commence à immerger et croître jusqu'à un certain temps t ($t = 1600 \text{ ms}$ sur la Fig.IV. 8). Avant son détachement, un col se forme (Fig.IV. 8 ii). Après détachement, la bulle est par la suite transportée par l'écoulement (Fig.IV. 8 iii). Le temps entre la formation du col et le détachement pour cet exemple est très court ($\approx 70 \text{ ms}$) soit environ 4% du temps de formation de la bulle. Cependant, ce temps peut augmenter ou diminuer en fonction des débits Q_1 et Q_2 imposés.

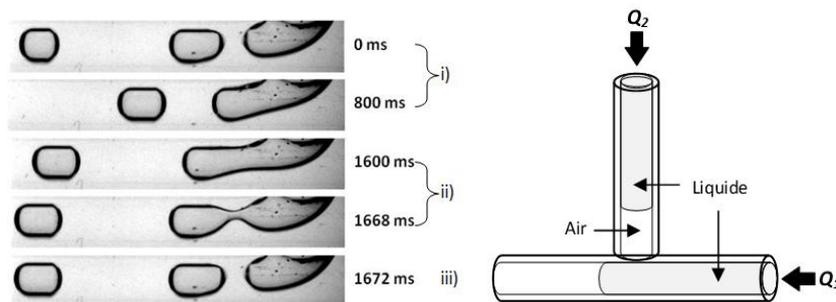


Fig.IV. 8 : Mécanisme de création de bulles par effet d'avance-retard : i) début de croissance, ii) formation du col de détachement et iii) détachement de la bulle

IV.4 Résultats

Les dimensions géométriques utiles et caractéristiques de l'étude expérimentale pour les deux régimes décrits dans la section IV.2.2 sont schématisées sur la Fig.IV. 9.

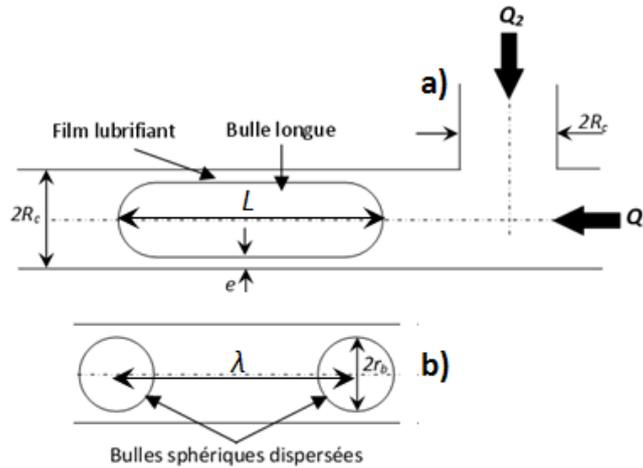


Fig.IV. 9 : Grandeurs géométriques liés à l'étude expérimentale : (a) longue bulle (régime de tension de surface) et (b) bulles sphériques (régime de traînée)

Les longueurs des bulles (L) sont mesurées en fonction du ratio des débits de gaz (Q_2) et du liquide injecté (Q_1). Les distances entre deux bulles successives (λ) sont déterminées pour chaque manipulation. Des diagrammes de formes et de tailles de bulles sont proposés et comparés à ceux obtenus dans la littérature. Les vitesses des bulles ont été déterminées expérimentalement puis comparées aux modèles basés sur les approximations de lubrification (film d'épaisseur e).

IV.4.1 Longueur d'une bulle

Pour un régime des forces de tension de surface ($Ca < 10^{-2}$), un modèle quantitatif permettant de prédire la longueur d'une goutte d'eau dans une huile en écoulement dans une jonction rectangulaire en T a été proposé par Garstecki et al. (2006).

La longueur normalisée d'une goutte est donnée par :

$$\frac{L}{W} = 1 + \alpha \frac{Q_2}{Q_1} \quad \text{Eq.IV. 1}$$

avec L , la longueur de la goutte, W , la largeur du conduit principal et α , un facteur géométrique dépendant de la largeur des deux canaux formant le T (ratio de la largeur du conduit 2 par la largeur du conduit 1).

Dans le cas d'un conduit cylindrique, la largeur W du conduit peut être remplacée par le diamètre du tube $2R_c$.

L'évolution des longueurs normalisées des bulles $L/2R_c$ en fonction du ratio des débits Q_2/Q_1 est reportée sur la Fig.IV. 10. La longueur normalisée augmente en fonction de Q_2/Q_1 pour les deux différents régimes. En effet, pour un débit de cisaillement du liquide Q_1 fixe, une augmentation du débit de gaz injecté Q_2 entraîne une augmentation de la longueur de bulle. De même, pour Q_2 fixe, une diminution de Q_1 se traduit par une réduction de la force de cisaillement et donc une injection de gaz facilitée et finalement une augmentation de la longueur de bulle.

Deux lois d'évolution des longueurs en fonction des rapports Q_2/Q_1 sont obtenues selon les régimes d'écoulement dans lesquels les bulles sont créées (M. Ben Abdelwahed, Y. Wielhorski, et al. 2011). Pour le régime des forces de tension de surface, où les bulles obtenues sont longues, la variation de $L/2R_c$ est quasiment linéaire en fonction de Q_2/Q_1 . A l'autre extrême, dans le cas d'un important cisaillement, les bulles générées sont sphériques ($L/2R_c < 1$) et $L/2R_c$ évolue avec une loi de puissance en fonction de Q_2/Q_1 .

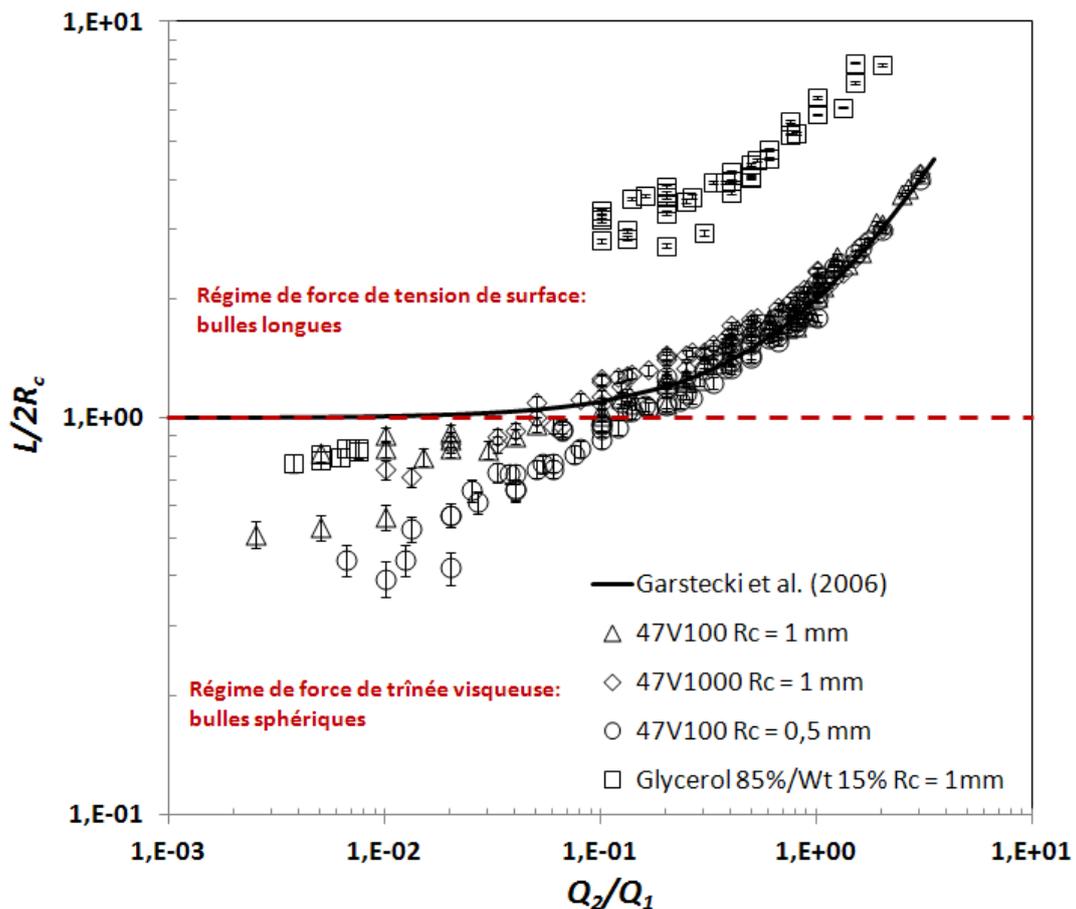


Fig.IV. 10 : Evolution de la longueur normalisée de bulle ($L/2R_c$) en fonction du ratio des débits Q_2/Q_1 (échelle logarithmique)

Les résultats des mesures des longueurs des bulles dans le régime des forces de tension de surface sont donnés sur la Fig.IV. 11 où elles sont comparées au modèle de Garstecki adapté (Garstecki et al. (2006)) (Eq.IV. 1). L'évolution de $L/2R_c$ en fonction de Q_2/Q_1 suit donc une loi linéaire de la forme :

$$\frac{L}{2R_c} = \beta + \alpha \frac{Q_2}{Q_1} \quad \text{Eq.IV. 2}$$

avec α et β , les coefficients obtenus expérimentalement par les courbes des tendances linéaires.

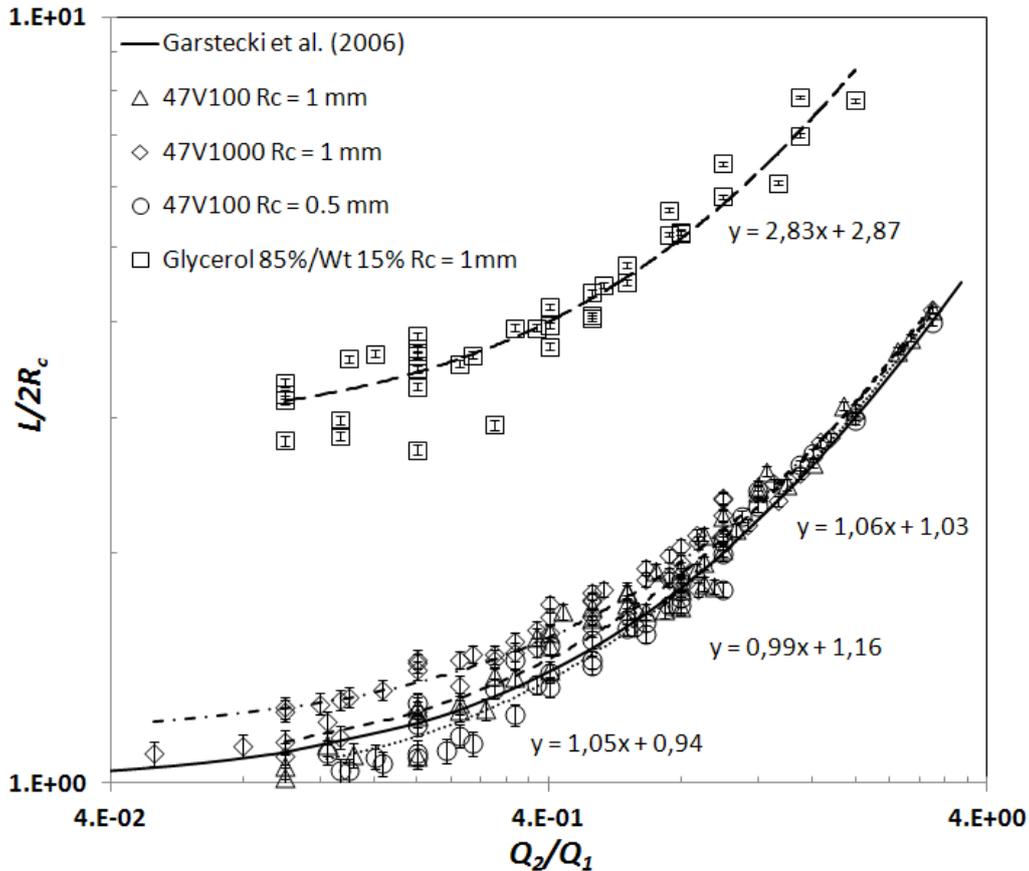


Fig.IV. 11 : Evolution de la longueur normalisée de bulle en fonction du ratio des débits Q_2/Q_1 dans le régime de force de tension de surface (échelle logarithmique)

Pour les huiles silicones 47V100 et 47V1000 mouillantes, le modèle linéaire de Garstecki (Garstecki et al. 2006) où $\alpha = \beta = 1$ reste une bonne approximation de la longueur de bulle formée dans un réseau de conduits cylindriques pour le régime de tension de surface. Les valeurs des coefficients α et β sont cependant supérieures à celles prévues par le modèle de Garstecki pour le cas du mélange glycérol/eau ($\alpha \approx \beta \approx 3$). En effet, la courbure du ménisque est plus élevée dans ce cas avec un angle apparent statique proche de 90° . Ceci met en évidence l'influence du mouillage sur la taille des bulles (M. Ben Abdelwahed, Y. Wielhorski, et al.,

Characterisation of bubbles formed in a cylindrical T-shaped junction device 2012). Pour le mélange glycérol/eau partiellement mouillant, les bulles obtenues sont 3 fois plus grandes. Le système liquide-bulle est moins dissipatif dans ce cas, dans la mesure où seule la dissipation due à la friction de la ligne de contact triple doit être considérée. Or, cette ligne est plus mobile, ce qui explique une augmentation de la taille de la bulle. Concernant le système dans le cas mouillant, cette friction est négligeable parce qu'un film de pré-mouillage se forme à l'interface solide liquide. Par conséquent, la dissipation visqueuse dans ce film est importante et assure plus de stabilité énergétique au système.

Pour le régime de cisaillement du liquide, les résultats obtenus des longueurs des bulles sont reportés sur la Fig.IV. 12. L'évolution de $L/2R_c$ en fonction de Q_2/Q_1 peut s'écrire sous la forme d'une loi de puissance :

$$\frac{L}{2R_c} = A \left(\frac{Q_2}{Q_1} \right)^B \quad \text{Eq.IV. 3}$$

avec A et B , les coefficients obtenus expérimentalement.

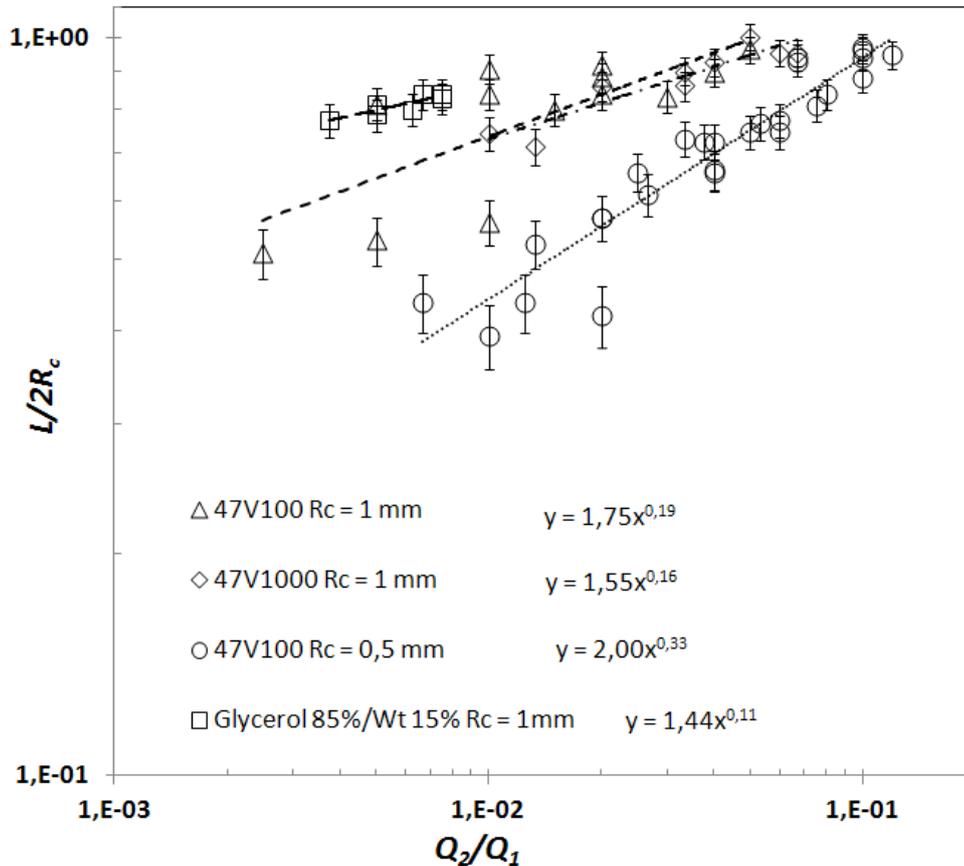


Fig.IV. 12 : Evolution de la longueur normalisée de bulle en fonction du ratio des débits Q_2/Q_1 dans le régime de cisaillement (échelle logarithmique)

Dans ce régime gouverné par les forces de cisaillement, l'évolution de la longueur de la bulle est différente des deux régimes précédents. En effet, $L/2R_c$ varie en loi de puissance (Eq.IV. 3) et les coefficients A et B dépendent des propriétés des liquides et de la géométrie des canaux (Testouri, et al. 2010). Le débit Q_1 est au moins dix fois supérieur à Q_2 permettant ainsi d'avoir un cisaillement suffisant pour couper rapidement le gaz qui a du mal à pénétrer dans l'écoulement.

Pour un ratio des débits Q_2/Q_1 fixe, si le rayon R_c diminue, la vitesse U_l du liquide en écoulement augmente, entraînant alors une croissance des forces de cisaillement. Cette croissance provoque une diminution de la longueur de la bulle. Par exemple, pour l'huile silicone 47V100, à $Q_2/Q_1 = 0,03$, les longueurs normalisées $L/2R_c$ valent 0,6 mm et 0,8 mm respectivement pour $R_c = 0,5$ mm et $R_c = 1$ mm. La limite du régime de cisaillement est atteinte pour $L/2R_c = 1$, soit expérimentalement à $Q_2/Q_1 = 0,07$ pour $R_c = 1$ mm et $Q_2/Q_1 = 0,12$ pour $R_c = 0,5$ mm. Au-delà de ces ratios des débits, la bulle n'est plus sphérique.

Les valeurs expérimentales des coefficients α , β , A et B déduites pour les différents liquides utilisés et pour chaque rayon R_c du capillaire sont résumées dans la Tab.IV. 3.

Liquides	$\theta_e \pm 2$ (°)	R_c (mm)	α	β	A	B
47V100	13	0,5	1,05±0,05	0,94±0,05	2,00±0,30	0,33±0,02
		1	1,06±0,05	1,03±0,10	1,75±0,30	0,19±0,02
47V1000	18	1	0,99±0,05	1,16±0,10	1,55±0,10	0,16±0,02
Glycérol 85%/eau 15%	89	1	2,83±0,35	2,87±0,35	1,44±0,15	0,11±0,02

Tab.IV. 3 : Valeurs expérimentales des coefficients liés aux longueurs de bulles

Dans le régime des forces de tension de surface (bulles longues), les variations du rayon capillaire R_c et de la viscosité n'entraînent pas des variations significatives sur les valeurs des coefficients α et β . Pour ces deux régimes, l'évolution de la longueur normalisée de la bulle $L/2R_c$ en fonction de Q_2/Q_1 vérifie le modèle de Garstecki ($\alpha = \beta = 1$) pour un liquide mouillant. Cependant, pour le mélange glycérol/eau partiellement mouillant, les résultats obtenus donnent des coefficients plus élevés que ceux prévus par le modèle (Ben Abdelwahed et al. 2012). Dans le régime de cisaillement, la variation du rayon capillaire modifie la force de cisaillement et par conséquent la longueur de la bulle. En effet, le coefficient B augmente avec une diminution de R_c . La comparaison des différentes courbes de la Fig.IV. 12 montre que les coefficients A et B

dépendent de la tension de surface du liquide γ_L (47V100 et Glycérol/eau) et de la viscosité dynamique η (47V100 et 47V1000).

IV.4.2 Distance entre deux bulles successives

Après avoir constaté que la fréquence des bulles créées dans le T est constante au cours d'une expérience, la distance λ entre deux bulles successives a été mesurée dans le régime des forces de tension de surface (Fig.IV. 14). Ce paramètre est important pour la compréhension de la formation des bulles dans la mesure où il permet de quantifier la quantité de gaz injecté en fonction du temps. Une simple approche géométrique permet de quantifier cette distance λ qui sépare deux bulles successives en fonction des débits Q_1 et Q_2 imposés. Cette approche consiste à déterminer le volume du liquide noté V_l entre deux bulles successives et le volume de bulle noté V_b . Ces deux volumes constituent le volume élémentaire du système liquide-bulle (Thulasidas et al. 1995). Il a été défini que la vitesse de la cellule élémentaire dépend des vitesses relatives de la bulle et du segment liquide. On suppose que le temps de croissance d'une bulle t_g est approximativement égal au temps séparant deux bulles consécutives et peut être divisé en deux temps : un temps de remplissage t_l du liquide durant lequel ce dernier peut passer dans le canal et un temps t_b correspondant à l'instant où la bulle traverse la section du canal. Le temps de remplissage du liquide peut être exprimé comme :

$$t_l = \frac{V_l}{Q_1} = \frac{V_{ob}}{Q_2} \quad \text{Eq.IV. 4}$$

où V_{ob} est le volume de la bulle quand celle-ci touche la paroi opposée de la jonction.

Le temps de passage d'une bulle à travers la section du canal est obtenu par :

$$t_b = \frac{L}{U_b} \quad \text{Eq.IV. 5}$$

où U_b est la vitesse moyenne de la bulle.

Le temps d'une bulle peut être exprimé en fonction des débits d'injection. En effet, en injectant l'Eq. IV. 2 dans l'Eq. IV. 5 et en supposant que la vitesse de la bulle est la somme des débits divisée par la section du tube, le temps de la bulle est donné par :

$$t_b = \frac{2R_c[\alpha(Q_2/Q_1) + \beta]}{(Q_1 + Q_2)/\pi R_c^2} \quad \text{Eq.IV. 6}$$

D'où

$$t_b = \frac{2\pi R_c^3}{Q_1} \cdot \frac{\alpha Q_2 + \beta Q_1}{Q_1 + Q_2} \quad \text{Eq.IV. 7}$$

Ainsi, le temps t_g séparant deux bulles consécutives s'écrit :

$$t_g = t_b + t_l = \frac{2\pi R_c^3}{Q_1} \cdot \frac{\alpha Q_2 + \beta Q_1}{Q_1 + Q_2} + \frac{V_{ob}}{Q_2} \quad \text{Eq.IV. 8}$$

Finalement, pour les $\alpha \approx \beta$ et $V_{ob} = 2\alpha\pi R_c^3$, le temps de croissance d'une bulle s'écrit :

$$t_g = M \left(\frac{1}{Q_1} + \frac{1}{Q_2} \right) \quad \text{Eq.IV. 9}$$

avec M , un paramètre géométrique égal à $2\alpha\pi R_c^3$

Pour les deux huiles silicones où $\alpha = \beta = 1$, on obtient $M_{silicone} = 2\pi R_c^3$. D'un autre côté, pour le mélange glycérol/eau ($\alpha \approx \beta \approx 3$), $M_{mélange} \approx 3M_{silicone}$.

La Fig.IV. 13 montre un bon accord entre les résultats expérimentaux obtenus et ceux prédits par l'Eq.IV. 9.

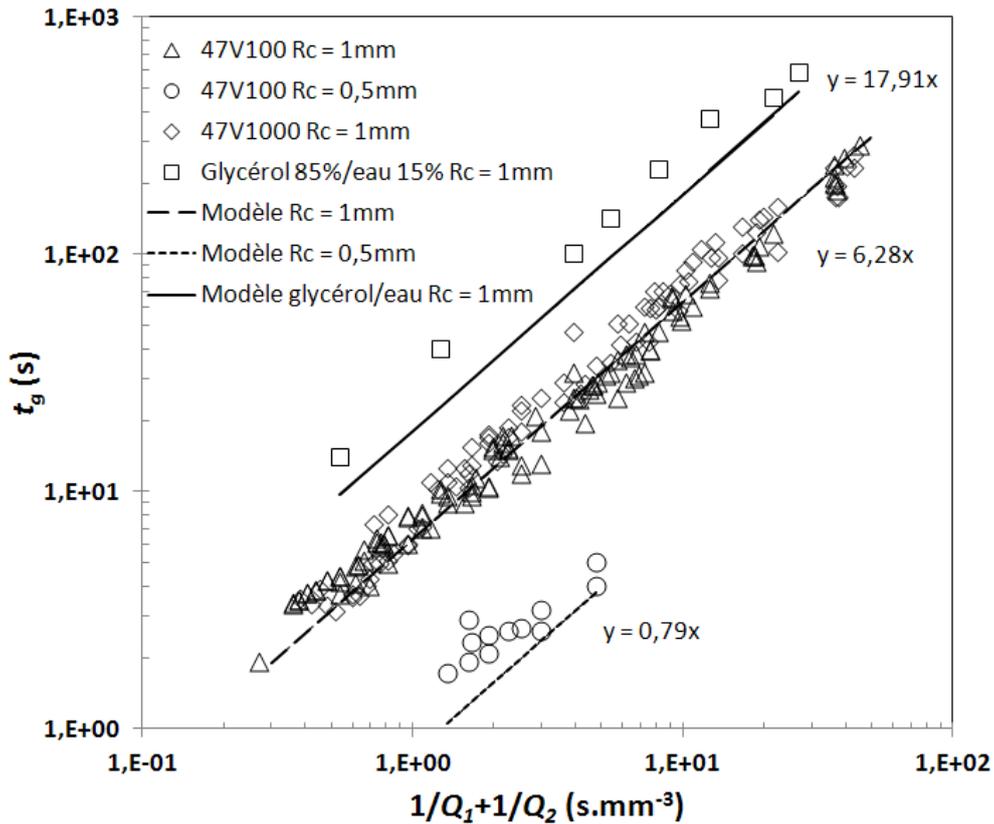


Fig.IV. 13 : Evolution du temps de croissance des bulles (échelle log) en fonction des débits imposés

La largeur λ d'une cellule alimentaire correspond à la somme de la longueur de la bulle et la longueur d'un segment liquide l_l :

$$\lambda = L + l_l \quad \text{Eq.IV. 10}$$

Or :

$$l_l = \frac{Q_1 t_l}{\pi R_c^2} \quad \text{Eq.IV. 11}$$

Selon l'Eq.IV. 4, ceci conduit à :

$$l_l = 2R_c \frac{Q_1}{Q_2} \quad \text{Eq.IV. 12}$$

Par conséquent, en injectant Eq.IV. 2 et Eq.IV. 12 dans l'Eq.IV. 10, la distance normalisée entre deux bulles successives s'écrit :

$$\frac{\lambda}{2R_c} = \alpha \frac{Q_2}{Q_1} + \beta + \frac{Q_1}{Q_2} \quad \text{Eq.IV. 13}$$

Les mesures et la prédiction par l'Eq.IV. 13 de la distance normalisée $\lambda/2R_c$ en fonction du rapport des débits Q_2/Q_1 sont présentés sur la Fig.IV. 14.

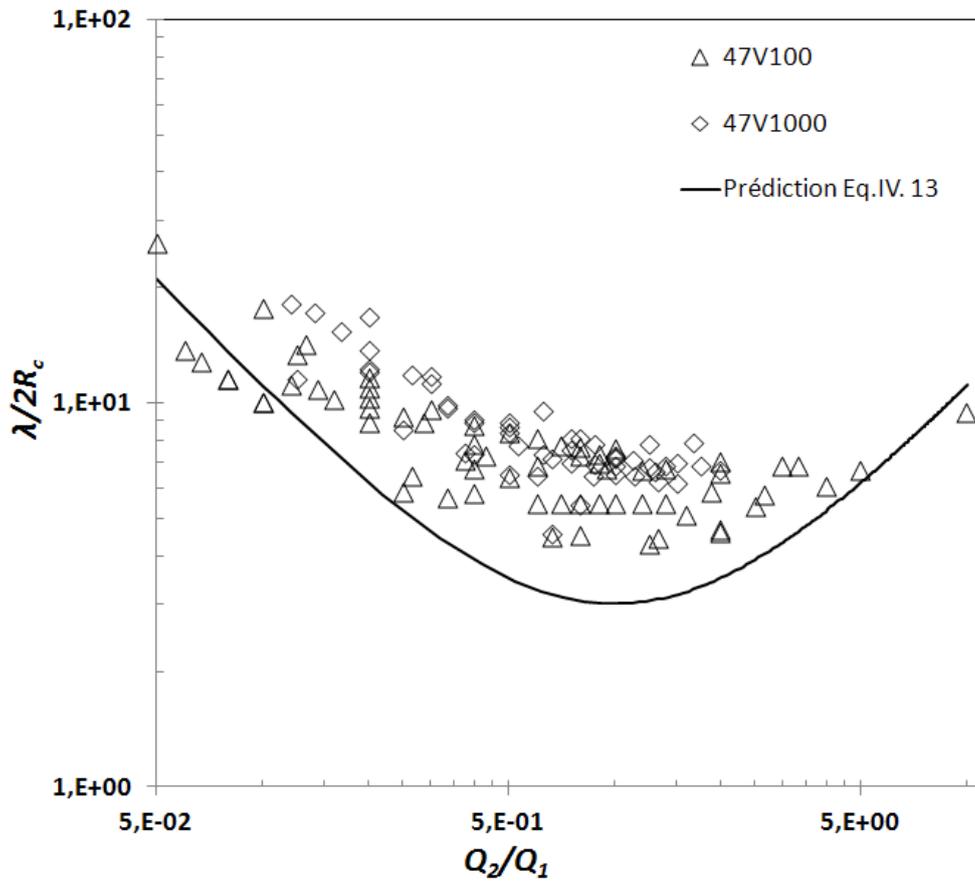


Fig.IV. 14 : Evolution de la distance normalisée entre deux bulles successives en fonction Q_2/Q_1

La Fig.IV. 14 montre un bon accord entre les distances mesurées directement et celles estimées par l'Eq.IV. 13. Néanmoins, λ est légèrement sous-estimée par le modèle. L'approche de quantification des fréquences de bulles peut être améliorée en rajoutant un terme lié à la quantité de liquide laissée sur la paroi du tube lors du passage d'une bulle (approximation de lubrification et épaisseur du film lubrifiant). Cette approche fera l'objet du paragraphe IV.4.4.

IV.4.3 Diagrammes et régimes des bulles

Dans cette partie, l'influence des différents paramètres physiques (propriétés des liquides) et géométriques (dimensions des tubes) sur les régimes et les tailles des bulles est abordée. Les limites des régimes sont déterminées à partir des modèles de longueur de bulle (Eq.IV. 3).

Les diagrammes obtenus sont représentés en fonction du nombre capillaire noté Ca_1 relatif au débit imposé Q_1 pour l'axe des ordonnées et en fonction du débit de gaz injecté Q_2 pour les axes des abscisses (Fig.IV. 15, Fig.IV. 16, Fig.IV. 17 et Fig.IV. 18). Ce choix est effectué sur la base des travaux récents de Fu et al. (2010) décrits dans le sous paragraphe IV.2.2. Les limites des régimes sont définies par les longueurs des bulles obtenues comme pour le paragraphe précédent : $L/2R_c \leq 1,0$ pour le régime de cisaillement.

Pour déterminer les limites des régimes dans chaque diagramme, le modèle de longueur normalisée de bulle (Eq.IV. 3) est utilisé.

Le nombre capillaire spécifique à partir duquel il y aura une transition d'un régime à l'autre évolue linéairement en fonction du débit d'injection de gaz Q_2 . Pour la limite entre le régime de cisaillement et le régime de forces de tension de surface, l'Eq.IV. 3 et la condition $L/2R_c = 1$ donnent :

$$\frac{Q_2}{Q_1} = \left(\frac{1}{A}\right)^{\frac{1}{B}} \quad \text{Eq.IV. 14}$$

Par conséquent la limite entre les deux régimes est définie par un nombre capillaire spécifique noté Ca_1^{TD} qui s'écrit :

$$Ca_1^{TD} = \left(\frac{1}{A}\right)^{-\frac{1}{B}} \frac{\eta}{\gamma_L} \frac{1}{\pi R_c^2} Q_2 \quad \text{Eq.IV. 15}$$

L'expression obtenue (Eq.IV. 15) pour la limite des régimes est reportée sur les diagrammes de formes des bulles (Fig.IV. 15, Fig.IV. 16 et Fig.IV. 17) : la limite entre le régime de cisaillement et le régime des forces de tension de surface (Eq.IV. 15) est illustrée par un trait continu. La Fig.IV. 15 représente le diagramme des formes des bulles et la limite de chaque régime pour la silicone 47V100 et pour un rayon capillaire $R_c = 1$ mm. Les résultats montrent la dépendance des formes, du régime du nombre capillaire Ca_1 et du débit d'injection de gaz Q_2 . Afin de comparer les diagrammes obtenus pour chaque liquide et pour deux rayons de capillaires différents, ce diagramme est pris comme référence par la suite.

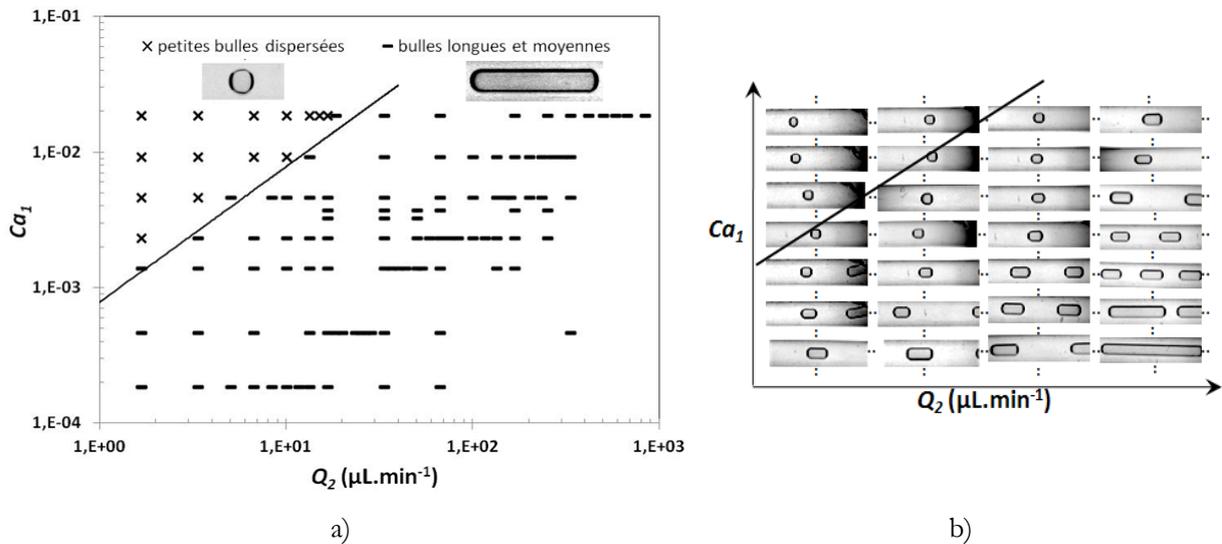


Fig.IV. 15 : Diagramme de formes des bulles pour la silicone 47V100 et un rayon capillaire $R_c = 1$ mm :
a) résultats expérimentaux, b) illustration

La Fig.IV. 16 représente le diagramme des formes des bulles et la limite entre les deux régimes pour l'huile silicone 47V1000 et pour un rayon capillaire $R_c = 1$ mm. Le diagramme obtenu comparé à celui de l'huile silicone 47V100 (Fig.IV. 15) montre l'influence de la viscosité η qui est à peu près dix fois supérieure pour la 47V1000. Pour un débit d'injection de gaz Q_2 fixe, le nombre capillaire spécifique de chaque régime est dix fois supérieur pour la 47V1000 que pour la 47V100.

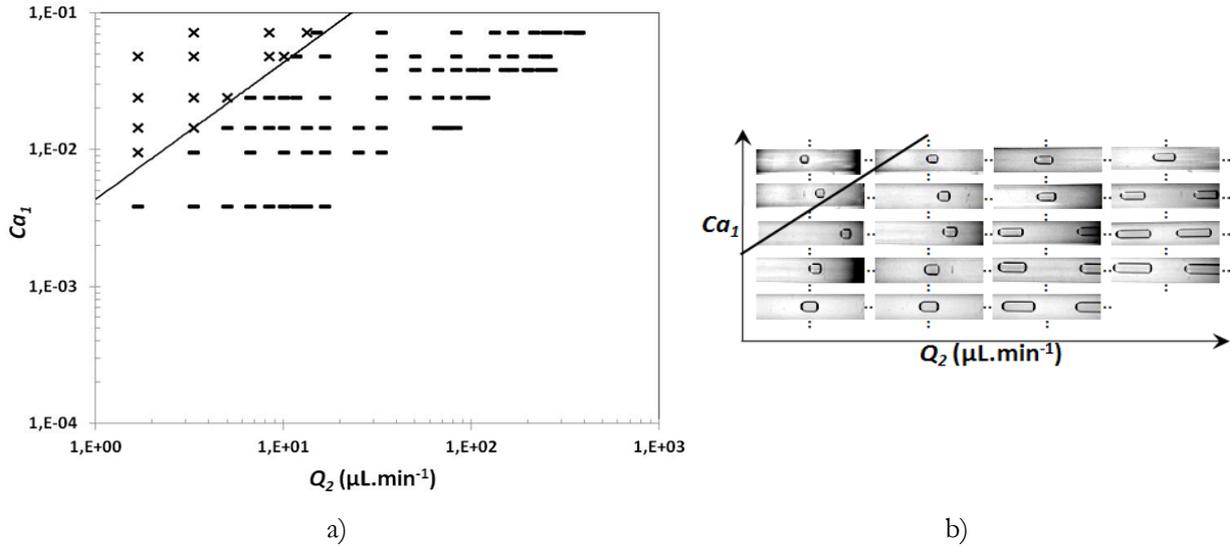


Fig.IV. 16 : Diagramme de formes des bulles pour la silicone 47V1000 et un rayon capillaire $R_c = 1$ mm :
 a) résultats expérimentaux, b) illustration

La Fig.IV. 17 représente le diagramme des formes des bulles et la limites entre les régimes pour la silicone 47V100 et pour un rayon capillaire $R_c = 0,5$ mm. Le diagramme obtenu montre l'influence du rayon du capillaire R_c . A même débit d'écoulement Q_1 , comme le rayon est divisé par deux comparé à la Fig.IV. 15, la vitesse du liquide est quatre fois supérieure. Donc, pour obtenir une même valeur de Ca_1 que pour $R_c = 1$ mm, il suffit d'imposer des débits Q_1 et Q_2 quatre fois inférieurs.

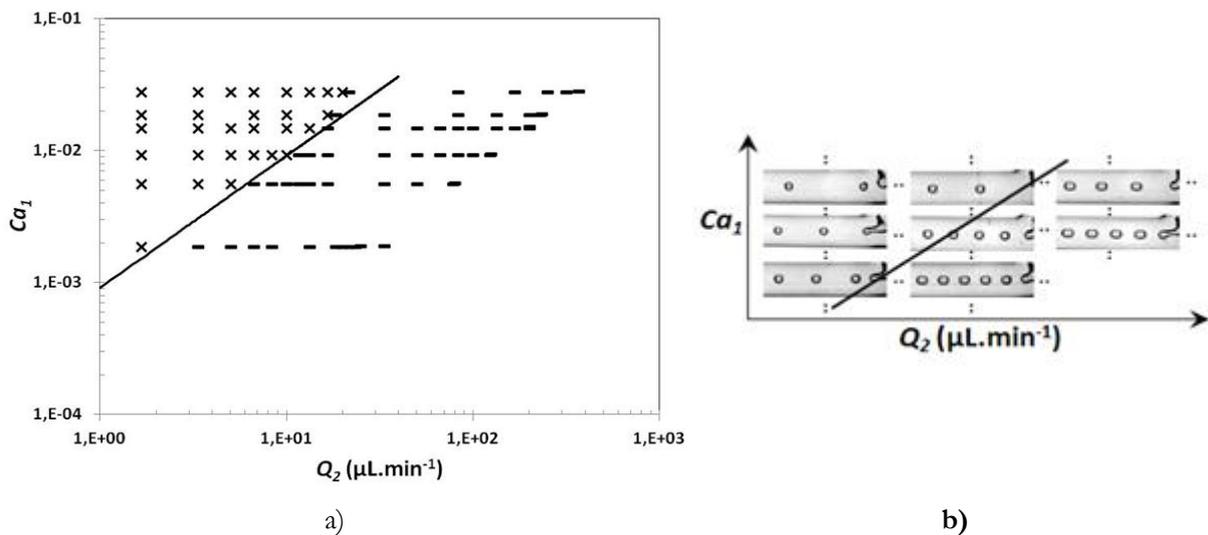


Fig.IV. 17 : Diagramme de formes des bulles pour la silicone 47V100 et un rayon capillaire $R_c = 0,5$ mm :
 a) résultats expérimentaux, b) illustration

La limite entre les régimes définie par l'Eq.IV. 15 est en accord avec les valeurs obtenues par les mesures expérimentales pour les deux huiles silicones 47V100 et 47V1000 et pour les deux rayons utilisés : $R_c = 0,5$ mm et $R_c = 1$ mm. Les diagrammes obtenus montrent que cette limite varie en fonction de la viscosité η , du rayon R_c du capillaire et donc des vitesses imposées dans le tube.

Le diagramme de formes des bulles du mélange glycérol/eau pour un rayon capillaire $R_c = 1$ mm est donné par la Fig.IV. 18.

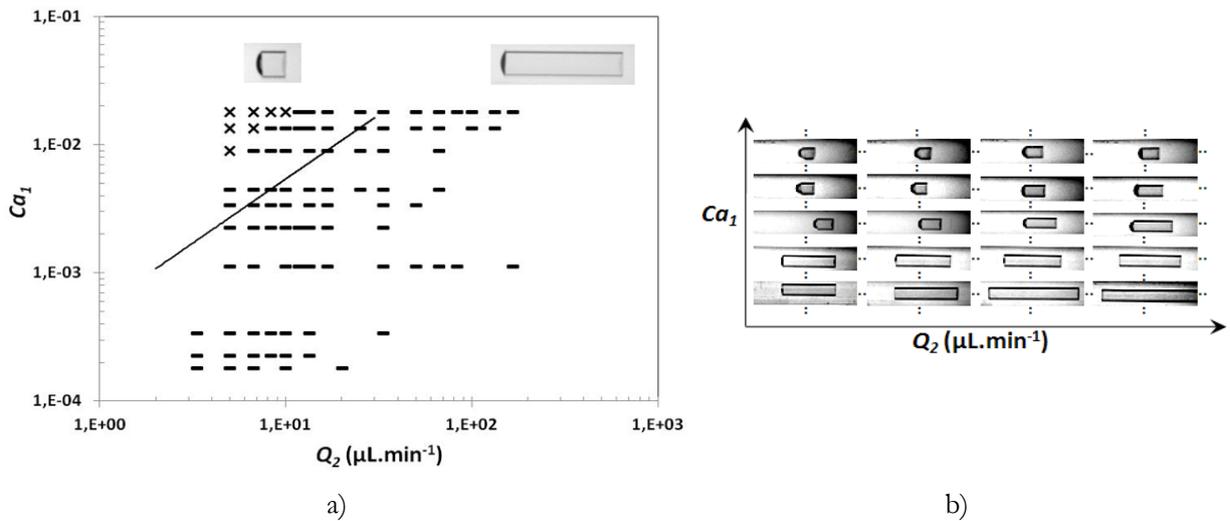


Fig.IV. 18 : Diagramme de formes des bulles pour le mélange glycérol 85%/eau 15% et un rayon capillaire $R_c = 1$ mm : a) résultats expérimentaux, b) illustration

Notons que pour le mélange glycérol/eau, il est difficile d'obtenir des bulles petites ($L/2R_c < 1,0$). La limite prédite par l'Eq.IV. 15 entre les deux régimes est en désaccord avec les résultats expérimentaux. Cette différence peut être expliquée par la difficulté de contrôler la taille de la bulle dans le régime de cisaillement d'un côté, et par le manque de données expérimentales dans ce régime d'autre part. Ceci conduit, évidemment, à une augmentation de l'incertitude sur la prédiction de limite par l'Eq.IV. 15 pour ce mélange partiellement mouillant.

IV.4.4 Transport des bulles

Les vitesses moyennes du front de liquide et des bulles ont été déduites des positions des fronts de liquide des fronts de bulles au cours du temps (Fig.IV. 19).

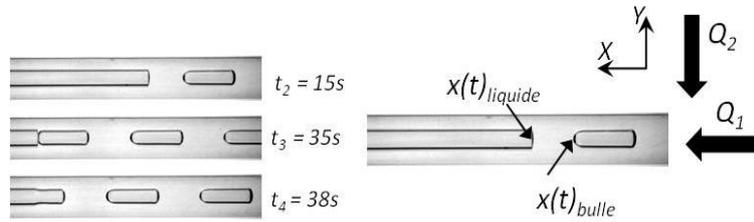


Fig.IV. 19 : Exemple de détection des positions du front du liquide et du front d’une bulle au cours du temps (huile silicone 47V1000, $R_c = 1$ mm, $Q_1 = 1,39$ mm³.s⁻¹ et $Q_2 = 1,94$ mm³.s⁻¹)

Les expériences montrent que les bulles se déplacent plus rapidement que le liquide et rattrapent donc le front de ce dernier. Un exemple de résultats obtenus est représenté par la Fig.IV. 20.

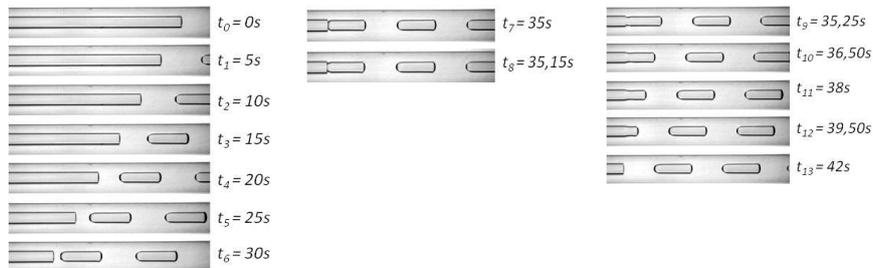
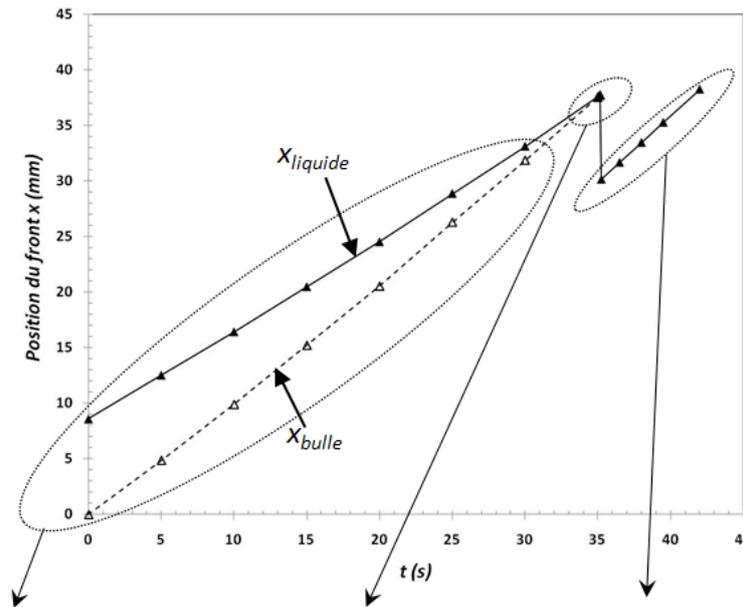


Fig.IV. 20 : Evolution des positions du front du liquide et du front d’une bulle au cours du temps (huile silicone 47V1000, $R_c = 1$ mm, $Q_1 = 1,39$ mm³.s⁻¹ et $Q_2 = 1,94$ mm³.s⁻¹)

Lors de son passage, le liquide laisse un film sur la paroi du tube (lubrification) sur lequel la bulle peut glisser (Fig.IV. 21a). La conservation du volume de liquide (Fig.IV. 21b) permet, alors, de relier l'épaisseur e du film déposé sur la paroi du tube et la vitesse relative de la bulle.

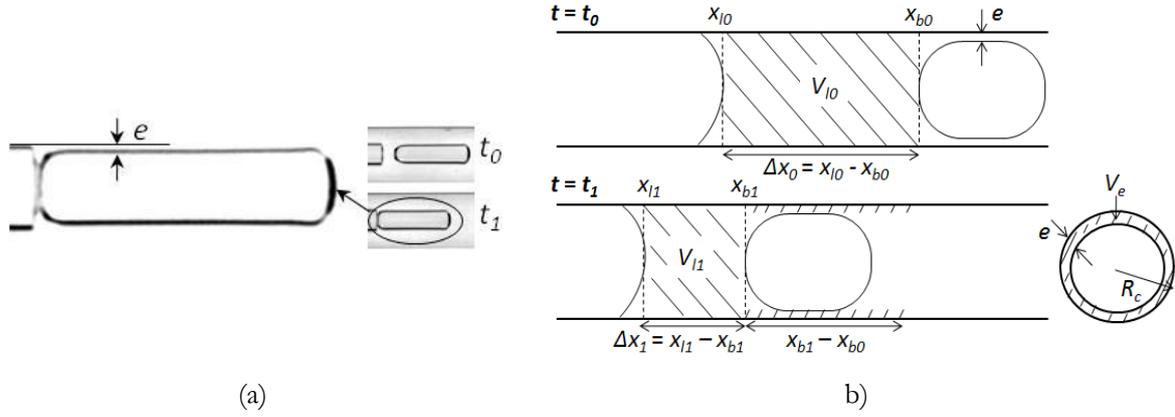


Fig.IV. 21 : Lubrification de la paroi du tube : (a) image du film mince déposé, (b) conservation du volume du liquide

Soient x_{l0} et x_{b0} respectivement les positions des fronts du liquide et de la première bulle à l'instant t_0 , x_{l1} et x_{b1} respectivement les positions à l'instant t_1 . Notons V_{l0} , V_{l1} et V_e les volumes respectifs du liquide piégé entre les fronts de liquide et de la bulle à l'instant t_0 , le liquide piégé à l'instant t_1 et le liquide correspondant à l'épaisseur e laissée sur la paroi du tube (Fig.IV. 21b).

La conservation du volume du liquide entre t_0 et t_1 permet d'écrire le volume V_e :

$$V_e = V_{l0} - V_{l1} \quad \text{Eq.IV. 16}$$

où :

$$\begin{cases} V_{l0} = \Delta x_0 \pi R_c^2 \\ V_{l1} = \Delta x_1 \pi R_c^2 \end{cases} \text{ avec } \begin{cases} \Delta x_0 = x_{l0} - x_{b0} \\ \Delta x_1 = x_{l1} - x_{b1} \end{cases} \quad \text{Eq.IV. 17}$$

L'Eq.IV. 16 et l'Eq.IV. 17 donnent :

$$V_e = (\Delta x_0 - \Delta x_1) \pi R_c^2 = [(x_{b1} - x_{b0}) - (x_{l1} - x_{l0})] \pi R_c^2 \quad \text{Eq.IV. 18}$$

Or le volume V_e est aussi donné par :

$$V_e = (x_{b1} - x_{b0}) [\pi R_c^2 - \pi (R_c - e)^2] = (x_{b1} - x_{b0}) \pi (2eR_c - e^2) \quad \text{Eq.IV. 19}$$

L'Eq.IV. 18 et l'Eq.IV. 19 impliquent :

$$[(x_{b1} - x_{b0}) - (x_{l1} - x_{l0})] \pi R_c^2 = (x_{b1} - x_{b0}) \pi (2eR_c - e^2) \quad \text{Eq.IV. 20}$$

d'où :

$$\frac{2eR_c - e^2}{R_c^2} = \frac{\Delta x_b - \Delta x_l}{\Delta x_b} \text{ avec } \begin{cases} \Delta x_b = x_{b1} - x_{b0} \\ \Delta x_l = x_{l1} - x_{l0} \end{cases} \quad \text{Eq.IV. 21}$$

Une division par $\Delta t = t_1 - t_0 \neq 0$ du numérateur et du dénominateur du second terme de l'Eq.IV. 21 permet d'obtenir :

$$\frac{2eR_c - e^2}{R_c^2} = \frac{\frac{\Delta x_b}{\Delta t} - \frac{\Delta x_l}{\Delta t}}{\frac{\Delta x_b}{\Delta t}} = \frac{U_b - U_l}{U_b} \text{ où } \begin{cases} \frac{\Delta x_b}{\Delta t} = U_b \\ \frac{\Delta x_l}{\Delta t} = U_l \end{cases} \quad \text{Eq.IV. 22}$$

soit :

$$\frac{2e}{R_c} - \left(\frac{e}{R_c}\right)^2 = \frac{U_b - U_l}{U_b} = 1 - \frac{U_l}{U_b} \quad \text{Eq.IV. 23}$$

En rajoutant 1 au premier terme et -1 au deuxième terme de l'Eq.IV.23 :

$$\left(1 - \frac{e}{R_c}\right)^2 = \frac{U_l}{U_b} \quad \text{Eq.IV. 24}$$

Finalement, la relation reliant l'épaisseur du film e et les vitesses moyennes du liquide et de la bulle s'écrit :

$$\frac{e}{R_c} = 1 - \left(\frac{U_l}{U_b}\right)^{1/2} \quad \text{Eq.IV. 25}$$

Une relation empirique a été proposée par Fairbrother et Stubbs (1935) pour la vitesse relative d'une bulle dans un tube capillaire cylindrique pour $7,5 \cdot 10^{-5} < Ca^* < 1,4 \cdot 10^{-2}$:

$$\frac{U_b - U_l}{U_b} = 1,0(Ca^*)^{1/2} \quad \text{Eq.IV. 26}$$

où $Ca^* = \eta U_b / \gamma_L$ correspond au nombre capillaire relative à la vitesse de la bulle U_b .

Bretherton (1961), partant de la théorie de LLD, a montré que, pour des faibles nombres de Reynolds et pour $10^{-5} < Ca^* < 10^{-2}$, l'épaisseur du film déposée sur la paroi d'un tube cylindrique est proportionnelle à $(Ca^*)^{2/3}$ et s'écrit :

$$\frac{e}{R_c} = 1,34(Ca^*)^{2/3} \quad \text{Eq.IV. 27}$$

Les relations données par l'Eq.IV. 26 et l'Eq.IV. 27 restent donc valables pour des faibles nombres Ca^* (dans un régime visco-capillaire). Pour des Ca^* plus élevés, Aussillous et Quéré (2000) ont proposé une interpolation pour les points expérimentaux obtenus par Taylor (1961) :

$$\frac{e}{R_c} = \frac{1,34(Ca^*)^{2/3}}{1 + 1,34 * 2,5(Ca^*)^{2/3}} \quad \text{Eq.IV. 28}$$

où le coefficient 1,34 provient de la loi de Bretherton (1961) et 2,5 est un coefficient empirique.

Afin de pouvoir comparer les vitesses relatives des bulles expérimentales et celles issues des modèles, les relations données par l'Eq.IV. 27 et l'Eq.IV. 28 sont injectées dans l'Eq.IV. 25. La Fig.IV. 22 montre le résultat de cette comparaison.

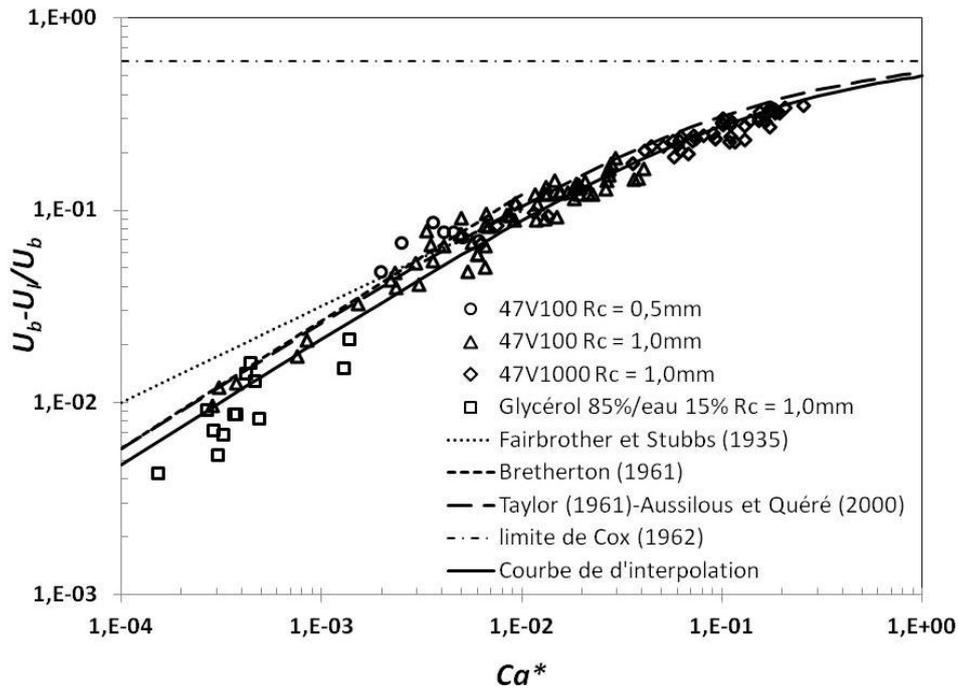


Fig.IV. 22 : Vitesses relatives des bulles en fonction du nombre capillaire Ca^*

Pour le domaine Ca^* considéré, les résultats obtenus pour les huiles silicones utilisées sont en accord avec ceux prévus par l'Eq.IV. 27 et l'Eq.IV. 28 et sont interpolés par une loi de la forme du modèle d'Aussillous-Quéré :

$$\frac{U_b - U_l}{U_b} = \frac{2,2(Ca^*)^{2/3}}{1 + 3,4(Ca^*)^{2/3}} \quad \text{Eq.IV. 29}$$

Pour un Ca^* qui tend vers 1, la courbe d'interpolation des points expérimentaux (Eq.IV. 29) tend approximativement vers une fraction de vitesse relative de bulle de 0,5 qui est légèrement en dessous de 0,6 (limite prévue par Cox (1962)).

Pour le mélange glycérol/eau, les valeurs des vitesses relatives des bulles obtenues sont différentes de celles trouvées pour les deux huiles silicones et dévient, par conséquent, des valeurs données par les différents modèles. En effet, l'hypothèse de lubrification dans ce cas ne peut plus être considérée, dans la mesure où l'épaisseur du film déposé est négligeable. Il est clair, donc, que la nature du mouillage (partiellement mouillant dans le cas du mélange glycérol/eau) est un paramètre important pour la validité des modèles de lubrification. Les forces des interactions intermoléculaires, qui sont importantes pour l'adhésion entre le liquide la paroi du tube solide, ont une influence de ce fait sur la stabilité du film. Du fait que la composante polaire de la tension de surface soit non négligeable pour le mélange glycérol-eau (constante de Hamaker positive soit une pression à l'intérieur du liquide qui est supérieure à la pression de vapeur), les surfaces liquides s'attirent entre elles réduisant, par conséquent, l'épaisseur du film déposé. Pour les huiles silicones mouillantes, ces forces sont plutôt de nature dispersive (faible composante polaire de la tension de surface), les surfaces du liquide se repoussent formant, ainsi, un film bien étalé sur la paroi du tube.

D'autres études et applications complémentaires peuvent être réalisées d'une part sur les phénomènes de transport avec l'analyse des vitesses de bulles par rapport aux vitesses d'écoulement et d'autre part sur des phénomènes de confinement dans l'espace poral.

IV.5 Comparaison aux modèles de transport de bulles dans les procédés LCM

Dans un milieu fibreux, le transport des bulles est influencé par les enchevêtrements dus à la présence des fibres et des mèches. Dès lors, le parcours de la bulle peut être perturbé par des configurations de confinement (constriction ou extension des conduits) qui engendrent des pertes locales aux niveaux des écoulements du liquide et de la bulle. Lee et al (Lee, Lee et Kang 2006), ont proposé un modèle empirique reliant la vitesse de la bulle et la vitesse de la résine donné par :

$$U_b = F_u U_l \quad \text{Eq.IV. 30}$$

avec U_b , la vitesse du vide, F_u , un facteur proportionnel reliant la vitesse de la résine et la vitesse du vide et U_l , la vitesse de la résine.

Leur relation montre que la vitesse du vide évolue exponentiellement en fonction de la vitesse de la résine et en fonction d'une vitesse critique de la résine U_{crit} à partir de laquelle le vide piégé devient mobile :

$$F_u = \begin{cases} A \left(1 - \frac{1}{2} e^{k(U_{crit}-U_l)} \right), U_l \geq U_{crit} \\ \frac{A}{2} e^{k(U_{crit}-U_r)}, U_r < U_{crit} \end{cases} \quad \text{Eq.IV. 31}$$

où A et k sont des constantes à déterminer expérimentalement.

Les résultats obtenus basés sur l'approximation de lubrification pour les vitesses relatives de bulles dans le cas du tube en T (paragraphe IV.4.4) donnent :

$$\frac{U_b}{U_l} = \frac{1 + 3,4 Ca^{*2/3}}{1 + 1,2 Ca^{*2/3}} \quad \text{Eq.IV. 32}$$

avec Ca^* , le nombre capillaire relatif à la vitesse de la bulle.

Pour la résine utilisée par Lee et al ($\gamma_L = 30 \text{ mN.m}^{-1}$ et $\eta = 0,75 \text{ Pa.s}$) et pour un même domaine du nombre capillaire, les courbes données par l' Eq.IV.31 et l'Eq.V.32 sont superposées sur la Fig.IV. 23.

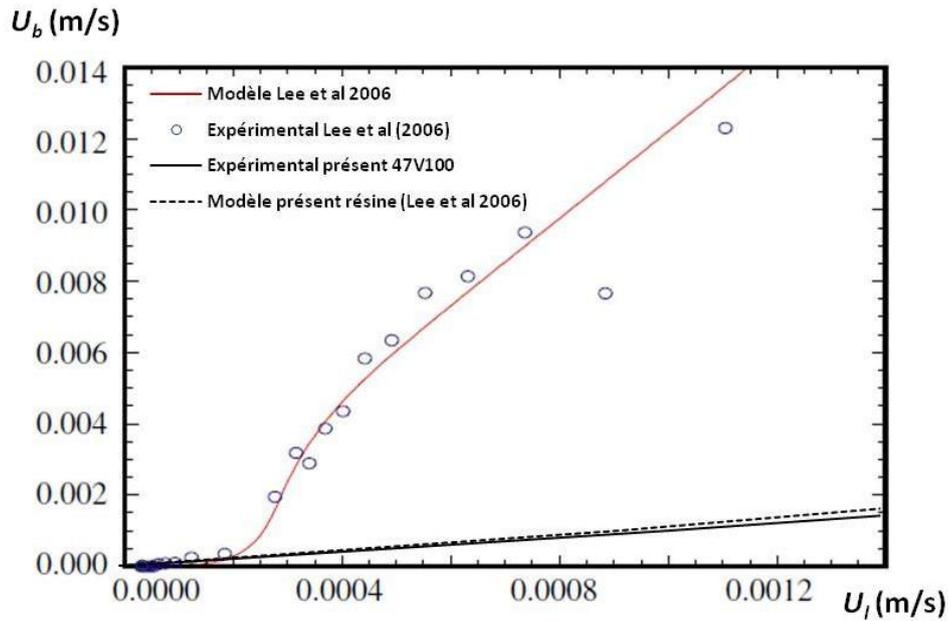


Fig.IV. 23 : Comparaison aux résultats de Lee et al (2006)

Pour des très faibles vitesses de résine ($U_l < \sim 2.10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$), les résultats prévus par le modèle basé sur l'approximation de lubrification (Eq.IV.32) sont en accord avec le modèle proposé par Lee et al (2006). Cependant, un large décalage est observé à partir d'une vitesse critique où la vitesse du vide peut être approximativement 10 fois supérieure à la vitesse de la résine. Ceci est probablement dû aux sauts de pressions provoqué par des extensions des conduits par exemple lors du passage du vide de l'espace porale microscopique (dans la mèche) vers un espace porale macroscopique (entre les mèches).

Backes et al (Backes 1997), Kang et Koelling (Kang et Koelling, Void Transport in Resin Transfer Molding 2004) ont mené une étude expérimentale sur le transport de bulles à travers des cellules cylindriques hexagonales. Selon les auteurs, la mobilité du vide définie par le ratio U_b/U_l dépend de la taille adimensionnée de la bulle notée λ et du nombre capillaire Ca relatif à la vitesse du liquide.

Il est possible de réarranger l'Eq.IV.32 en fonction du nombre capillaire $Ca = \eta U_l / \gamma_L$:

$$\frac{\frac{U_b}{U_l} - 1}{3,4 \left(\frac{U_b}{U_l}\right)^{2/3} - 1,5 \left(\frac{U_b}{U_l}\right)^{5/3}} = Ca^{2/3} \quad \text{Eq.IV. 33}$$

Les deux dernières expressions sont utilisées et donnent deux courbes qui sont superposées sur la Fig.IV. 24 avec les résultats expérimentaux de Kang et Koelling (2004).

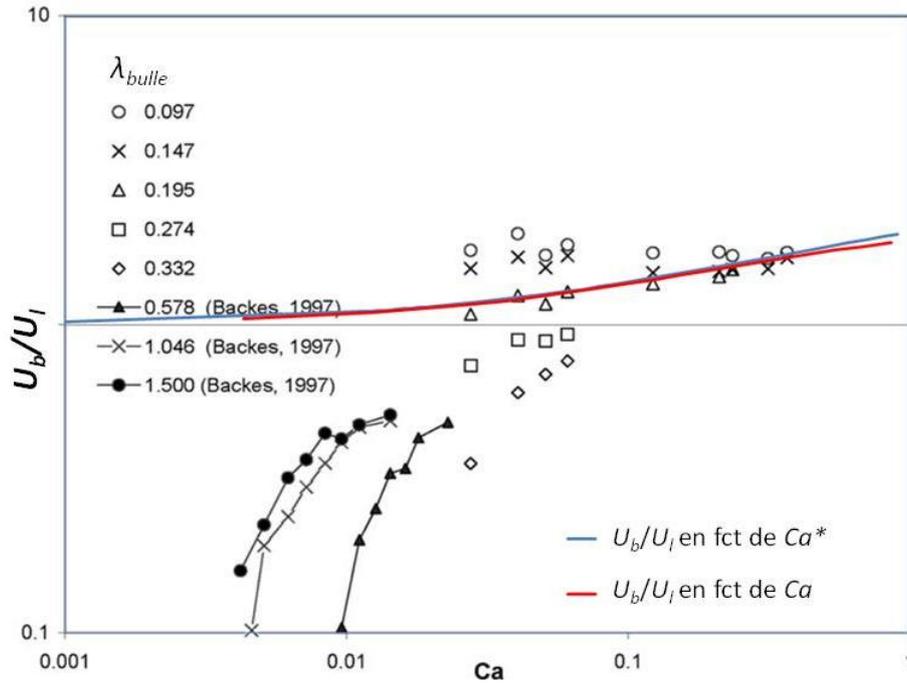


Fig.IV. 24 : Comparaison aux résultats de Kang et Koelling (2004)

Dans le tube en T, les bulles créées ont des vitesses supérieures à la vitesse du liquide, soit une mobilité $U_b/U_l > 1$. Pour cette condition (bulle plus rapide que le liquide), l'approche basée sur l'approximation de lubrification justifie la tendance observée par Kang et Koelling (2004).

L'approximation de lubrification reste une bonne approche pour décrire une partie du phénomène de transport de bulles dans les matériaux composites. En effet, d'autres conditions intégrant les confinements complexes de la préforme fibreuse et par conséquent des sauts de pressions locaux doivent être pris en compte.

IV.6 Complément : bulle dans un double T

Dans l'optique de déterminer le cheminement des bulles formées dans un T lorsque celles-ci rencontrent un nouvel obstacle géométrique, un deuxième réseau (T2) a été raccordé au premier (T1) par un manchon élastique (g). Le schéma du montage est présenté sur la Fig.IV. 25.

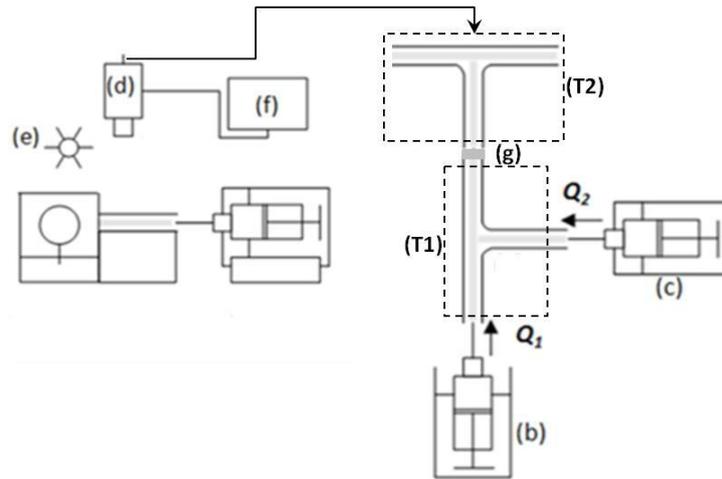


Fig.IV. 25: Schéma du montage double T

Cette configuration pourrait éventuellement modéliser un écoulement de bulle entre 3 mèches (Fig.IV. 26).

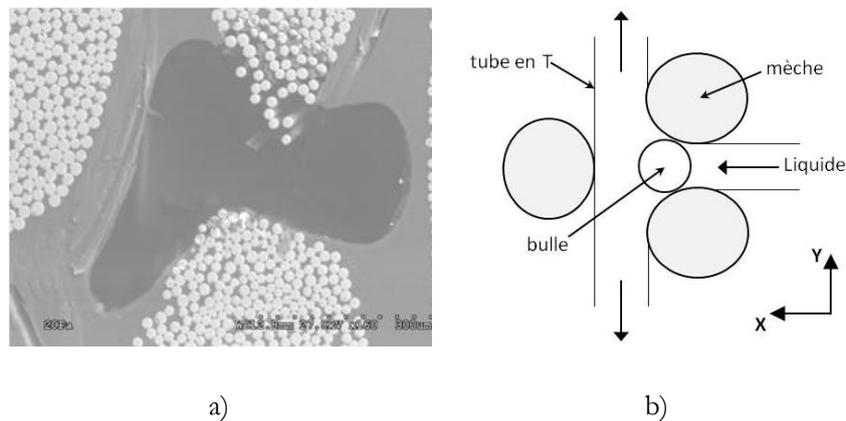


Fig.IV. 26 : a) Macrobulle piégée dans une préforme d'UD et b) modélisation dans un tube en T

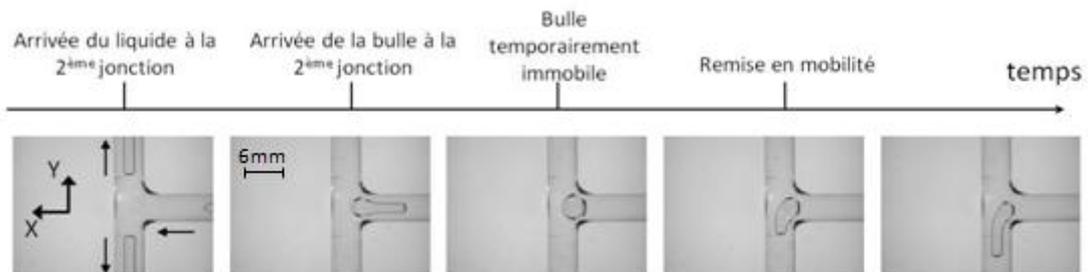


Fig.IV. 27 : Arrivée de liquide et de la bulle dans la 2^{ème} jonction

Quelques expérimentations ont été menées pour cette configuration et se sont limitées sur quelques observations. En effet, pour des faibles nombres capillaires Ca relatifs à l'écoulement du

liquide, la bulle reste bloquée au niveau de la jonction. Une augmentation du débit volumique du liquide injecté permet de donner à la bulle une mobilité plus importante.

IV.7 Conclusion

Cette étude avait pour objectif de caractériser la création (forme et longueur) et le transport (vitesse et épaisseur du film) des bulles par deux écoulements convergents et déphasés d'un même liquide dans un tube capillaire modèle en T (modélisant deux pores qui convergent).

Ce travail sur les mécanismes de création de bulles et sur leur transport à l'échelle millimétrique peut être transposé à une échelle plus faible, dans les cas où les régimes gouvernants les écoulements dans le réseau sont bien contrôlés par les nombres adimensionnels caractéristiques.

Les mesures des longueurs adimensionnelles des bulles pour les huiles silicones mouillantes sont en accord avec le modèle de Garstecki pour les bulles de tailles moyennes et les bulles longues. Cependant, pour le cas du mélange glycérol-eau (partiellement mouillant), l'évolution de la longueur en fonction du rapport des débits imposés reste linéaire mais donne des coefficients plus élevés.

La distance entre deux bulles successives a été quantifiée par une approche basée sur des considérations géométriques sur le volume d'une bulle et le volume du liquide entre deux bulles successives. Les résultats expérimentaux valident le modèle qui peut encore être optimisé par la prise en compte du volume du film lubrifiant déposé sur la paroi du tube.

Les diagrammes des régimes de bulles ont été établis expérimentalement et montrent que, pour un liquide mouillant (huiles silicones), les tailles et les formes des bulles dépendent des régimes d'écoulement imposés (tension de surface, transition ou cisaillement). Par contre, ce constat n'est pas établi pour le mélange glycérol-eau.

Les résultats obtenus sur les vitesses relatives des bulles montrent qu'elles sont gouvernées par l'approximation de lubrification et dépendent du nombre capillaire caractéristique de la vitesse moyenne de la bulle pour les huiles silicones dans le domaine du Ca^* étudié. L'épaisseur du film dépend de la nature des forces intermoléculaires et, donc, de la nature du mouillage.

Ce travail dans un simple réseau en T permet de valider certains éléments sur l'influence de la mouillabilité (en l'occurrence les interactions intermoléculaires) et des régimes d'écoulement imposés sur la création, la forme, la taille et le transport des défauts de type « bulle ». Cette étude permet d'appréhender l'influence des paramètres physiques sur la formation de bulles dans les

préformes fibreuses. Elle montre également qu'une simple configuration géométrique peut être le siège de formation de bulles. Il est donc possible de former des bulles à l'intérieur du réseau de macropores sans forcément faire appel à l'interaction micro/macropores. De plus, cette approche a permis de valider certaines applications décrivant le transport de bulles dans différentes configurations de réseaux poreux : milieu fibreux, réseau de cellules cylindriques et confinement dans un réseau en T.

Sur la base de ces résultats expérimentaux et des modèles associés, nous allons dans le chapitre qui suit poursuivre la compréhension des mécanismes physiques gouvernant les écoulements dans un réseau à double échelle de pores.

Chapitre V : modélisation de l'écoulement dans un réseau à double échelle de pores

V.1 Introduction

Lors des écoulements en milieux fibreux à double-échelle de pores, des anomalies d'imprégnation peuvent apparaître. Ce sont des volumes de vides très localisés de type « macrovides » ou « microvides ». Les défauts les plus couramment observés sont donc des vides qui pourraient s'assimiler à des bulles. Ces défauts proviennent en partie d'une compétition entre circuits d'écoulement plus ou moins privilégiés. Ces circuits résultent évidemment de l'agencement du renfort. Pour les procédés LCM, le renfort est sous sa forme définitive avant injection : fils placés UD, tissés, tressés, etc. La mise en œuvre doit préserver l'intégrité du renfort, son orientation et son positionnement tout en permettant à la matrice d'entrer en contact intime avec le renfort et en présentant peu de défauts finaux. Les conditions d'injection et les propriétés physico-chimiques du renfort et des résines peuvent permettre d'éviter la formation de défauts (micro-macro vides, zones sèches...). Plusieurs auteurs ont proposé des diagrammes de taux de vides en fonction de nombres adimensionnels (Patel et Lee 1995) intégrant les paramètres d'injection.

V.2 Remontée capillaire dans un UD de verre

Dans le but de comprendre ce qui se passe aux premiers instants d'une imprégnation capillaire dans une préforme fibreuse, c'est-à-dire dans des régimes inertiel, visco-inertiel et visqueux, nous avons commencé par observer une remontée capillaire de l'huile silicone 47V100 dans un seul pli de verre UD comprenant n mèches (Fig.V. 1).

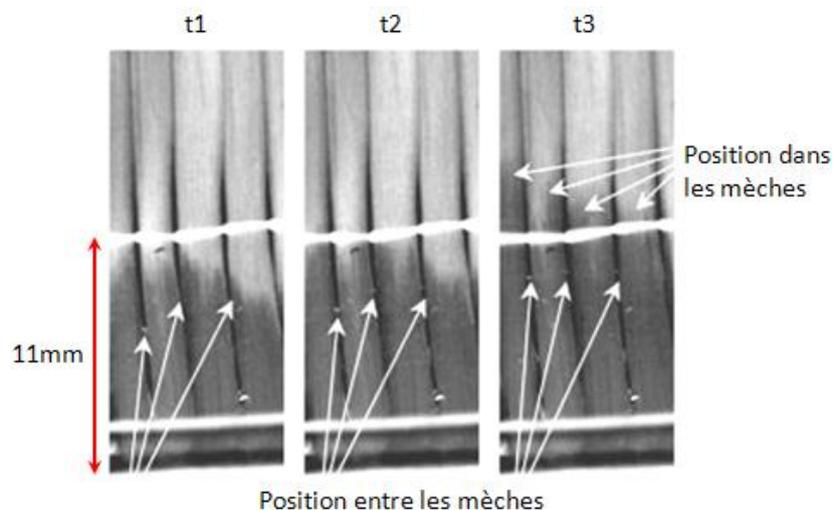


Fig.V. 1 : Ascension capillaire de l'huile silicone 47V100 dans un pli de verre UD : visualisation de l'avancée dans les micropores par rapport aux macropores

Le cas présenté ici est un type d'imprégnation dite « spontanée » car les forces mises en jeu sont principalement de type capillaire, les vitesses d'ascension étant relativement élevées aux instants initiaux. Nous tenterons de transposer l'expérience de Lucas-Washburn d'une remontée capillaire dans un tube à un pli d'UD de verre dans le but de comprendre la cinétique de l'écoulement. Prenons comme exemple un rayon de micropore de l'ordre de $1\ \mu\text{m}$, on a alors une hauteur de Jurin de plus de 4m pour une huile silicone 47V100 dans un tube cylindrique. Les régimes inertiel, visco-inertiel et visqueux décrits précédemment sont alors très rapides, de l'ordre de 10^{-4}s pour des capillaires de l'ordre du millimètre, ce qui fait que la remontée capillaire est principalement en régime visco-gravitationnel. Cependant ces ordres de grandeur sont relatifs à une remontée capillaire dans un tube et les valeurs prédites sont donc différentes par rapport à une remontée capillaire dans un pli d'UD. En effet, nos observations montrent une hauteur maximale de quelques centimètres. La hauteur d'équilibre donnée par la relation de Jurin n'est pas entièrement satisfaisante lorsque l'on tente de l'appliquer sur un réseau de mèche. De même, on constate que la cinétique de progression capillaire diminue brutalement dès les premiers instants et conserve une vitesse résiduelle durant quelques centimètres avant que le front se stabilise. En effet, concernant la double échelle de pores, la grande variabilité de leur taille (pouvant aller du micromètre au millimètre environ) et leur connectivité jouent un rôle non négligeable dans le principe d'alimentation entre micro et macropores. De plus, au sein de la mèche, la répartition de l'espace poral et de la surface totale du vide contribuent également à cette hétérogénéité géométrique à l'échelle du micropore. Les constriction alors rencontrées par le liquide engendrent localement des contre-pressions freinant ainsi l'écoulement à l'arrivée de ce rétrécissement de section.

Dans notre expérience, nous constatons que lorsque les mèches sont trop éloignées les unes des autres, la remontée capillaire est très faible et n'atteint pas le millimètre. La pression de Laplace étant plus élevée dans les mèches, ces dernières se remplissent les premières. De plus, nous pouvons faire l'hypothèse que les micropores sont alimentés par les macropores car on remarque que l'écoulement est en retard dans ces derniers que la connexion entre les deux le long des mèches est permanente. Ces observations confirment donc l'idée qu'il y a un échange entre l'écoulement dans la mèche et celui dans l'espace inter-mèches.

Par ailleurs, on observe tout de même un retour de l'écoulement des micropores vers les macropores principalement au niveau du fil de trame. En effet, ce fil transversal aux mèches a tendance à resserrer localement ces dernières agrandissant de fait les macropores. Cette constriction engendre alors une perte de charge dans la mèche ralentissant l'écoulement micro à l'approche de ce rétrécissement de section avant d'être accéléré de nouveau lorsque le fluide atteint cette constriction. Au niveau du fil de trame, on a donc une diminution de la section des pores. Ceci entraîne une accélération locale du fluide avant de ralentir de nouveau à l'approche du prochain fil de trame. Le fluide aura alors tendance à s'écouler le long du fil transverse rejoignant ainsi le macropore et pouvant ainsi bloquer une bulle d'air. En outre, plus on s'éloigne du fil de couture plus la section de la mèche augmente (effet de relaxation de la mèche) entraînant par conséquent une réduction de la section du macropore. Entre deux mèches consécutives, la section minimale du macropore se situe approximativement à la moitié de la longueur séparant deux fils de couture successifs et sa section maximale se trouve au niveau des fils de trame. L'écoulement dans la mèche est également bidimensionnel et la diminution de la distance entre deux mèches successives permet ainsi la formation d'un pont liquide entre elles raccordant leurs ménisques et piégeant alors le vide dans le macropore. La périodicité des emplacements des fils de trame engendre une périodicité dans l'étalement et le rétrécissement des mèches et des macropores. Dès lors, les écoulements peuvent être modélisés puis étudiés sur une période, i-e entre deux fils de trame consécutifs.

V.3 Modélisation de la compétition entre deux pores

Dans ce paragraphe, nous tentons de quantifier par un modèle simple le taux de vide créé lors de la convergence de deux pores en régime spontané, c'est-à-dire sans pression ou débit imposé mais seulement par écoulement visco-capillaire, et en régime forcé par pression imposée. Le gaz est supposé incompressible dans l'étude qui va suivre. Dans un premier temps, nous étudions le déphasage des écoulements apparaissant dans un réseau comprenant seulement deux canaux parallèles de même longueur mais de rayons différents se rejoignant en un point appelé « nœud » (Panfilova 2003). On suppose dans ce cas que les canaux communiquent entre eux seulement aux points de jonction. Ensuite, nous quantifions le déphasage et la création de vide à l'aide d'un modèle de canaux parallèles de rayons différents mais interagissant constamment le long de l'écoulement. Nous combinons alors les deux modèles afin de compléter les deux approches. Enfin, nous appliquons le modèle combiné à un remplissage en régime forcé. Dans toute cette

partie, on note R_M , le rayon du macrocanal et R_m , le rayon du microcanal avec comme condition triviale $R_M > R_m$.

V.3.1 Remplissage « spontané »

V.3.1.1 Connectivité aux nœuds

On modélise ici un écoulement dans un canal principal qui se scinde en deux écoulements parallèles dans deux canaux horizontaux de rayons différents. La longueur des canaux est supposée suffisamment longue pour que leur courbure soit négligeable et donc supposés totalement parallèles. Les deux canaux R_M et R_m divergent à partir d'une position initiale ($x = 0$) correspondant à la fin du canal principal puis convergent en un nœud situé à une distance $x = L$ (Fig.V. 2). Cette configuration a été proposée par Sorbie et al (Sorbie, Wu et McDougall 1994) dans le cas de l'imbibition où un fluide mouillant (eau) déplace un fluide non mouillant (huile) dans un canal se divisant en deux capillaires de rayons différents. Dans la modélisation présentée, on fait l'hypothèse qu'il n'y a pas d'échange de liquide entre les deux capillaires parallèles donc pas d'alimentation par le gros capillaire. Les seuls points de jonction sont au niveau du divergent ($x = 0$) et du convergent ($x = L$). On tente ici de décrire un modèle permettant d'évaluer la quantité d'air emprisonné par le déphasage lié à la différence des vitesses d'écoulements dans les deux capillaires.

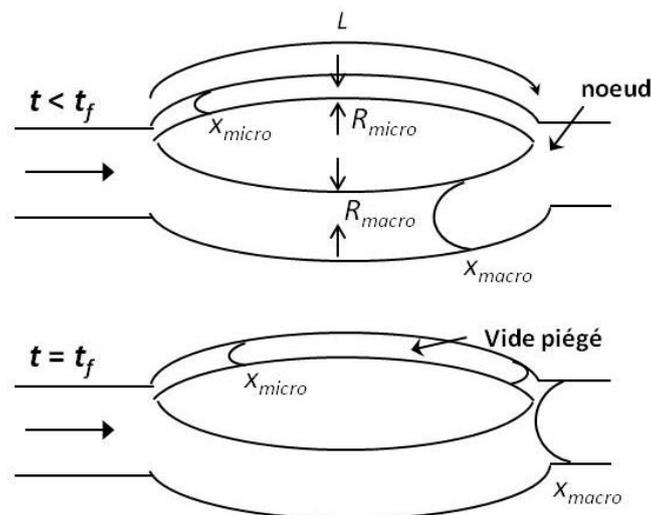


Fig.V. 2 : Modèle de connexion en un nœud (Sorbie et al, 1994).

La perte de charge visqueuse dans un tube est donnée par la loi de Poiseuille :

$$\Delta P_{\eta,i} = \frac{8\eta x}{R_i^2} \frac{dx}{dt} \quad \text{Eq.V. 1}$$

La pression capillaire est donnée par la loi de Laplace :

$$\Delta P_{c,i} = \frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{R_i} \quad \text{Eq.V. 2}$$

avec $i = m$ pour symboliser le microcanal et $i = M$ pour le macrocanal.

Pour une imprégnation capillaire, en négligeant la longueur d'entrée qui précède le nœud, les effets gravitationnels et le démarrage inertiel, la position du front de liquide dans le canal est donnée par le modèle de Washburn :

$$x_i(t) = \sqrt{\frac{R_i \gamma_L \cos \theta_e}{2\eta} t} \quad \text{Eq.V. 3}$$

D'après cette loi, la position du front est proportionnelle à $\sqrt{R_i}$. Par conséquent, à un temps donné, le liquide aura parcouru une plus grande distance dans le macrocanal que dans le microcanal. On considère alors que l'écoulement dans le macrocanal, qui est plus rapide, atteint le nœud en $x = L$ à l'instant t_{fL} . Ce temps caractéristique est déduit de l'Eq.V. 3 et vaut :

$$t_{fL} = \frac{2\eta L^2}{R_M \gamma_L \cos \theta_e} \quad \text{Eq.V. 4}$$

En injectant Eq.V.4 dans la relation de Washburn (Eq.V.3) pour le microcanal, on obtient la position du liquide dans le microcanal x_m à l'instant t_{fL} :

$$x_m(t_{fL}) = \sqrt{\frac{R_m}{R_M}} L \quad \text{Eq.V. 5}$$

Par conséquent, on peut en déduire la longueur du vide piégé dans le microcanal Δx_m :

$$\Delta x_m(t_{fL}) = x_M(t_{fL}) - x_m(t_{fL}) = L \left(1 - \sqrt{\frac{R_m}{R_M}} \right) \quad \text{Eq.V. 6}$$

Cette longueur dépend de la longueur des deux canaux, qui est ici la même, et du ratio des rayons micro/macro. Pour deux tubes de même rayon, le liquide arrive au nœud en même temps, et donc il n'y aura pas de vide piégé $\Delta x_m(t_f) = 0$.

Le microvide formé peut être assimilé à un cylindre de longueur Δx_m et de rayon égal à R_m , si l'on suppose que $\Delta x_m > 2R_m$.

Le tout étant rapporté à un volume total approximé égal à $L\pi(R_m^2 + R_M^2)$, le taux de microvide piégé s'écrit :

$$V_m = \frac{\alpha^2(1 - \sqrt{\alpha})}{1 + \alpha^2} \quad \text{Eq.V. 7}$$

avec $\alpha = \frac{R_m}{R_M}$, représentant le rapport des rayons.

Tout d'abord, on constate que même si la longueur du microvide créé $\Delta x_m(t_{fL})$, dépend de la longueur des canaux, le taux de vide rapporté au volume total des deux canaux ne dépend que du rapport des rayons α . L'évolution du taux de microvide est représentée en fonction du paramètre α sur la Fig.V. 3. Cette analyse ne reste cependant valable que si la longueur d'entrée jusqu'au nœud est nulle.

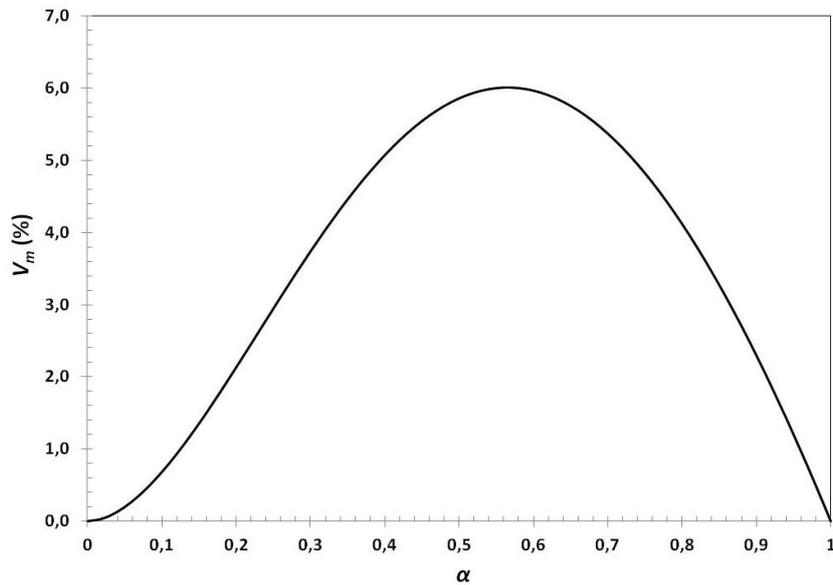


Fig.V. 3 : Evolution du taux de vide créé dans le microcanal en fonction du ratio des rayons

La Fig.V.3 montre que le taux de vide admet un maximum d'environ 6% à $\alpha \approx 0,56$. Il apparaît que $V_m \rightarrow 0$ quand $\alpha \rightarrow 0$ donc quand $R_M \gg R_m$. Ceci est dû au fait que le volume du microvide créé est très faible devant le volume total des deux canaux bien qu'important devant le volume du microcanal. De même, $V_m \rightarrow 0$ quand $\alpha \rightarrow 1$ car le volume du microvide piégé sera alors très faible devant le volume du microcanal et donc par rapport au volume total. Cette configuration permet alors de créer du vide dans le microcanal grâce à un écoulement dans le macrocanal qui est toujours en avance. Cependant, elle présente l'inconvénient de ne pas engendrer de vide dans le macrocanal. Le modèle qui va suivre aura donc comme objectif la possibilité de générer des macrovides.

V.3.1.2 Connectivité parallèle : principe d'alimentation

Supposons maintenant que les deux canaux sont partiellement interconnectés sur toute leur longueur. Cette configuration permet d'introduire le principe d'alimentation du microcanal par le macrocanal. Ce schéma proposé par Bico (2000) est représentée sur la Fig.V. 4.

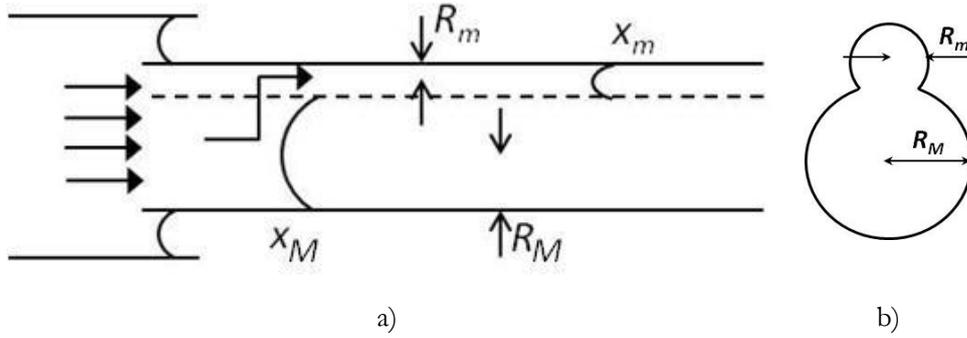


Fig.V. 4 : Modèle d'interconnexion parallèle : a) vu de face des deux tubes interconnectés ; b) coupe transversale (Bico, 2000)

De même que précédemment, en équilibrant la perte de charge visqueuse à une position x donnée (Eq.V.1) et la pression de Laplace (Eq.V.2) dans le macrocanal, la loi de mouvement est donnée par le modèle de Washburn :

$$x_M(t) = \left(\frac{R_M \gamma_L \cos \theta_e}{2\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} \quad \text{Eq.V. 8}$$

Dans le microcanal, la perte de charge visqueuse s'écrit :

$$\Delta P_m = \frac{8\eta \Delta x}{R_m^2} \frac{d(x_M + \Delta x)}{dt} \quad \text{Eq.V. 9}$$

De plus, comme la pression de Laplace responsable de la progression capillaire est déduite de la différence de courbures entre les deux ménisques, on obtient :

$$\Delta P_c = 2\gamma_L \cos \theta_e \left(\frac{1}{R_m} - \frac{1}{R_M} \right) \quad \text{Eq.V. 10}$$

L'équilibre entre la dissipation visqueuse et la pression de Laplace dans le microcanal donne le décalage Δx entre les deux fronts tel que :

$$\Delta x(t) = \left(\frac{(R_M - R_m)^2 R_m^2 \gamma_L \cos \theta_e}{R_M^3 2\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} \quad \text{Eq.V. 11}$$

En admettant que R_M est nettement supérieur à R_m , on obtient une forme approchée du décalage :

$$\Delta x(t) \approx \left(\frac{R_m^2 \gamma_L \cos \theta_e}{R_M 2\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} \quad \text{Eq.V. 12}$$

Par conséquent, l'évolution temporelle de l'écoulement dans le microcanal est de la forme :

$$x_m(t) = x_M(t) + \Delta x(t) \quad \text{Eq.V. 13}$$

d'où :

$$x_m(t) \approx \frac{R_M + R_m}{R_M^{1/2}} \left(\frac{\gamma_L \cos \theta_e}{2\eta} t \right)^{1/2} \quad \text{Eq.V. 14}$$

Contrairement à des tubes seulement connectés au niveau des nœuds, l'aspiration est plus importante dans les capillaires les plus petits. Ce phénomène permet d'atténuer la dissipation visqueuse dans les petits canaux, assurant ainsi une cinétique de progression du liquide plus rapide dans le microcanal. L'alimentation du capillaire le plus petit par le plus gros étant permanente, l'écoulement dans le microcanal est toujours en avance par rapport à celui du macrocanal. Ainsi, en considérant les écoulements à un instant t_{fl} , correspondant au temps que met l'écoulement dans le microcanal pour parcourir une distance l , ce temps s'exprime :

$$t_{fl} = \frac{R_M}{(R_M + R_m)^2} \left(\frac{2\eta l^2}{\gamma_L \cos \theta_e} \right) \quad \text{Eq.V. 15}$$

En injectant ensuite Eq.V.15 dans Eq.V.12, la longueur de vide piégé dans le macrocanal est donnée par :

$$\Delta x_M(t_{fl}) \approx l \frac{R_m}{R_M + R_m} = \frac{\alpha l}{1 + \alpha} \quad \text{Eq.V. 16}$$

Donc en supposant le macrovide comme étant cylindrique et de volume $\pi R_M^2 \Delta x_M$ et en prenant un volume total des canaux égal à $l\pi(R_m^2 + R_M^2)$, le taux volumique de macrovide s'exprime comme suit :

$$V_M = \frac{\alpha}{(1 + \alpha)(1 + \alpha^2)} \quad \text{Eq.V. 17}$$

L'évolution de V_M en fonction de α est reportée sur la Fig.V. 5.

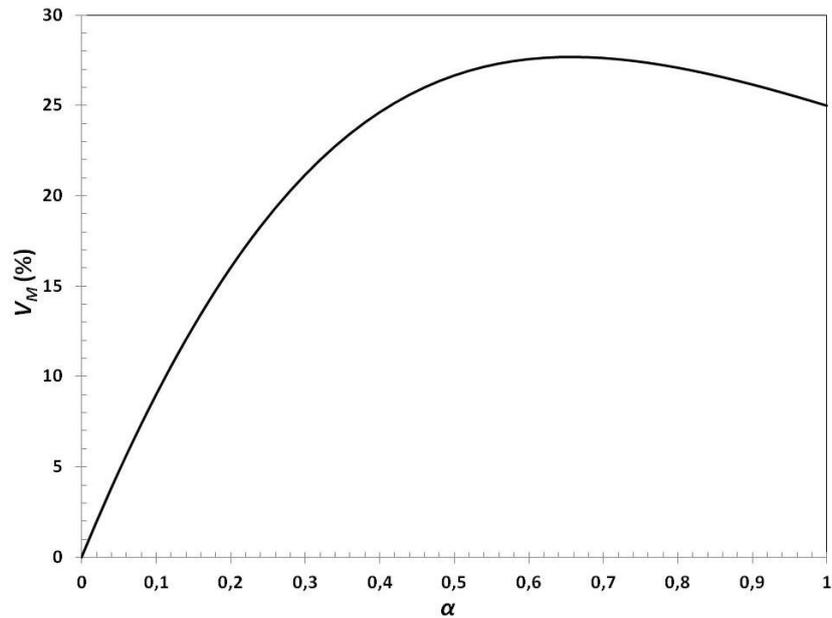


Fig.V. 5 : Evolution du taux de macrovide créé dans le macrocanal en fonction du ratio des rayons

Ce modèle est intéressant dans la mesure où il permet de prendre en compte l'effet de la connectivité des pores à partir du principe dit « d'alimentation ». Il permet, par conséquent, de créer du vide dans le macrocanal (macrovide). Cependant, l'objectif est d'avoir un modèle permettant à la fois de générer du vide aussi bien dans le macrocanal que dans le microcanal. La partie qui va suivre propose un modèle construit à partir des deux modèles décrits en les combinant.

V.3.1.3 Modèle combiné « connectivité-décalage-recouvrement »

Notre première approche de connectivité aux nœuds ne prenant pas en compte le critère d'alimentation apporte l'inconvénient de déphaser toujours les macropores par rapport aux micropores. De même, l'hypothèse d'alimentation, bien qu'ayant l'avantage de faire communiquer les canaux, déphase cette fois-ci toujours le micropore par rapport au macropore. C'est pourquoi nous avons essayé d'utiliser un modèle combiné séparé en deux phases employant successivement le modèle d'alimentation sur une longueur l (1^{ère} phase) et le modèle de connectivité aux nœuds (2nd phase) sur une longueur L . A la fin de la seconde phase, deux cas de figure peuvent avoir lieu : soit l'écoulement dans le microcanal est en avance créant ainsi une macrobulle ; soit l'écoulement dans le macrocanal est en avance, engendrant alors une microbulle.

Le schéma du modèle combiné est représenté Fig. V.6 :

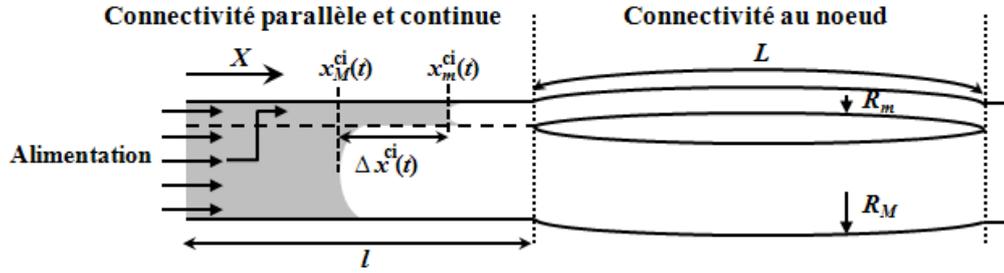


Fig.V. 6 : Modèle combiné (alimentation-connectivité)

Récapitulons tout d'abord les hypothèses du modèle combiné. On considère une alimentation constante du microcanal par le macrocanal sur la longueur d'alimentation l , ce qui permet à l'écoulement dans le microcanal d'arriver au niveau du divergent avant celui dans le macrocanal. Ensuite, de $x = l$ à $x = L + l$, nous appliquons le modèle de Washburn où le fluide s'écoule plus rapidement dans le macrocanal. On peut noter l'importance des longueurs des canaux car si le déphasage du microcanal est trop important à l'entrée du divergent, il se peut que l'écoulement dans le macrocanal ne puisse pas rattraper celui dans le microcanal créant ainsi une macrobulle (Fig.V.7).

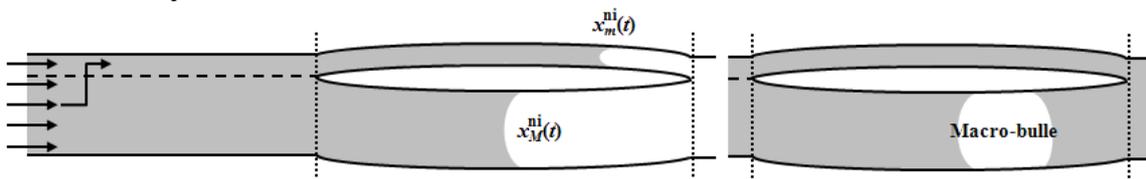


Fig.V. 7 : Modèle combiné : Front micro en avance, formation d'une macrobulle

Par contre, si le déphasage initial est assez faible, l'écoulement dans le macrocanal rattrapera plus facilement celui dans le microcanal créant par ainsi une microbulle (Fig.V.8).

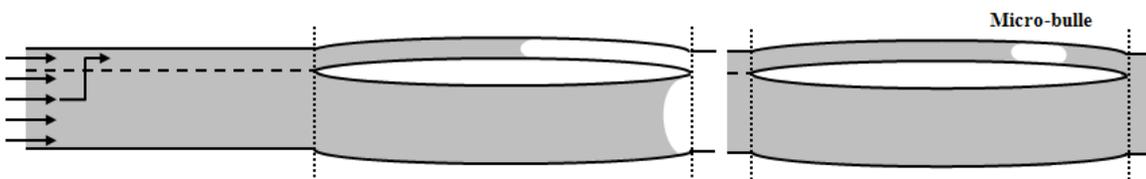


Fig.V. 8 : Modèle combiné : Front macro en avance, formation d'une microbulle

On pose dans le développement qui suit t_{fl} , le temps que met l'écoulement le plus rapide à parcourir la première partie de longueur l et t_{fL} , le temps que met l'écoulement le plus rapide à parcourir la seconde partie de longueur L . Nous proposons maintenant le développement analytique permettant de quantifier le taux de vide.

- 1^{ère} phase : pour $t \in [0, t_{fl}]$, les lois de mouvement décrivant les écoulements dans le macrocanal et dans le microcanal sont données respectivement par Eq.V.8 et Eq.V.14.

A $t = t_{fl}$, l'écoulement dans le microcanal arrive au niveau du divergent à $x = l$ avant celui dans le macrocanal grâce à son alimentation par ce dernier. Il vient alors d'après l'Eq.V.16 que la position du front dans le microcanal sera en avance par rapport au macrocanal d'une quantité :

$$\Delta x(t_{fl}) \approx l \frac{R_m}{R_M + R_m} = \frac{\alpha l}{1 + \alpha} \quad \text{Eq.V. 18}$$

Or, lorsque l'écoulement dans le microcanal arrive à $x_m(t_{fl}) = l$, le front dans le macrocanal n'est qu'à la position :

$$x_M(t_{fl}) = l - \Delta x(t_{fl}) = \frac{l}{1 + \alpha} \quad \text{Eq.V. 19}$$

Ceci constitue la fin de la première phase représentant l'alimentation du microcanal par le macrocanal.

- 2nd phase : pour $t \in [t_{fl}, t_{fL}]$, les écoulements sont donnés par la loi de Washburn dans les deux canaux. Les évolutions temporelles des fronts des deux écoulements s'expriment alors

- dans le microcanal, par :

$$x_m(t) = \left(\frac{R_m \gamma_L \cos \theta_e}{2\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} + x_m(t_{fl}) \quad \text{Eq.V. 20}$$

- et dans le macrocanal, par :

$$x_M(t) = \left(\frac{R_M \gamma_L \cos \theta_e}{2\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} + x_M(t_{fl}) \quad \text{Eq.V. 21}$$

avec $x_M(t_{fl}) = \frac{l}{1+\alpha}$ et $x_m(t_{fl}) = l$

Deux cas sont alors possibles : soit l'écoulement dans le macrocanal arrive en premier au niveau de la connexion en $x = L + l$, soit l'écoulement dans le microcanal l'atteint en premier.

- 1^{er} cas : création de microvide car l'écoulement dans le macrocanal rattrape celui dans le microcanal, en avance à la fin de la 1^{ère} phase, et arrive donc en premier à la position $x_M(t_{fL}) = L + l$.

D'après l'Eq.V.21, il vient que :

$$t_{fL} = \frac{2\eta \left(L + \frac{l\alpha}{1+\alpha} \right)^2}{R_M \gamma_L \cos \theta_e} \quad \text{Eq.V. 22}$$

En injectant ensuite, Eq.V.22 dans Eq.V.20, la position dans le microcanal est donnée par :

$$x_m(t_{fL}) = L\sqrt{\alpha} + l \left(1 + \frac{\alpha\sqrt{\alpha}}{1+\alpha} \right) \quad \text{Eq.V. 23}$$

La longueur du vide piégé dans le microcanal est déduite :

$$\Delta x_m(t_{fL}) = x_M(t_{fL}) - x_m(t_{fL}) = L + l - x_m(t_{fL}) \quad \text{Eq.V. 24}$$

$$\Delta x_m(t_{fL}) = L(1 - \sqrt{\alpha}) - l \frac{\alpha\sqrt{\alpha}}{1+\alpha} \quad \text{Eq.V. 25}$$

Le microvide est assimilé à un cylindre de volume $\pi R_m^2 \Delta x_m$. Le volume total des canaux valant $(L + l)\pi(R_m^2 + R_M^2)$, le taux de vide piégé dans le microcanal est tel que :

$$V_m = \frac{\alpha^2 \left(L(1 - \sqrt{\alpha}) - l \frac{\alpha\sqrt{\alpha}}{1+\alpha} \right)}{(L + l)(1 + \alpha^2)} \quad \text{Eq.V. 26}$$

Si $l = 0$, c'est-à-dire en négligeant l'alimentation, l'Eq.V.7 est retrouvée.

- 2^{ème} cas : création de macrovide car l'écoulement dans le microcanal est toujours en avance par rapport à celui dans le macrocanal et arrive donc en premier à la position $x_m(t_{fL}) = L + l$.

D'après l'Eq.V.20 :

$$t_{fL} = \frac{2\eta L^2}{R_m \gamma_L \cos \theta_e} \quad \text{Eq.V. 27}$$

d'où en injectant, Eq.V.27 dans Eq.V.21 :

$$x_M(t_{fL}) = \left(\frac{R_M}{R_m}\right)^{1/2} L + \frac{l}{1 + \alpha} \quad \text{Eq.V. 28}$$

soit :

$$x_M(t_{fL}) = \frac{L}{\sqrt{\alpha}} + \frac{l}{1 + \alpha} \quad \text{Eq.V. 29}$$

La longueur du vide piégé dans le macrocanal est déduite :

$$\Delta x_M(t_{fL}) = x_m(t_{fL}) - x_M(t_{fL}) = L + l - x_M(t_{fL}) \quad \text{Eq.V. 30}$$

$$\Delta x_M(t_{fL}) = L \left(1 - \frac{1}{\sqrt{\alpha}}\right) + \frac{\alpha l}{1 + \alpha} \quad \text{Eq.V. 31}$$

En assimilant, le macrovide à un cylindre de volume $\pi R_M^2 \Delta x_M$ et en approximant le volume total des canaux par $(L + l)\pi(R_m^2 + R_M^2)$, le taux de vide piégé dans le macrocanal s'écrit alors :

$$V_M = \frac{L \left(1 - \frac{1}{\sqrt{\alpha}}\right) + \frac{\alpha l}{1 + \alpha}}{(L + l)(1 + \alpha^2)} \quad \text{Eq.V. 32}$$

On observe que si l'on prend $L = 0$ dans l'expression précédente, c'est-à-dire en considérant seulement l'alimentation du microcanal par le macrocanal, on retrouve bien l'équation Eq.V.17.

V.3.1.4 Interprétation du modèle combiné

Le modèle combiné décrit précédemment présente la possibilité de créer des microvides ou des macrovides en modifiant les longueurs des canaux. En effet, l'augmentation de la longueur d'alimentation l permet de favoriser l'écoulement dans le microcanal par rapport au macrocanal. La longueur des canaux connectés au nœud L permet, selon l'importance du déphasage précédent (généré lors de la phase d'alimentation), à l'écoulement dans le macrocanal de rattraper ou non l'écoulement dans le microcanal. Dans ce qui va suivre, nous allons tenter d'expliquer l'influence des longueurs et quantifier les taux de vide susceptibles de se former dans le modèle combiné.

***L* fixe et *l* variable**

La longueur L étant fixée à 10 mm, les évolutions des taux de vide créés en fonction du rapport des rayons α sont comparées dans le microcanal Fig.V.9 et dans le macrocanal Fig.V.10 pour l variable.

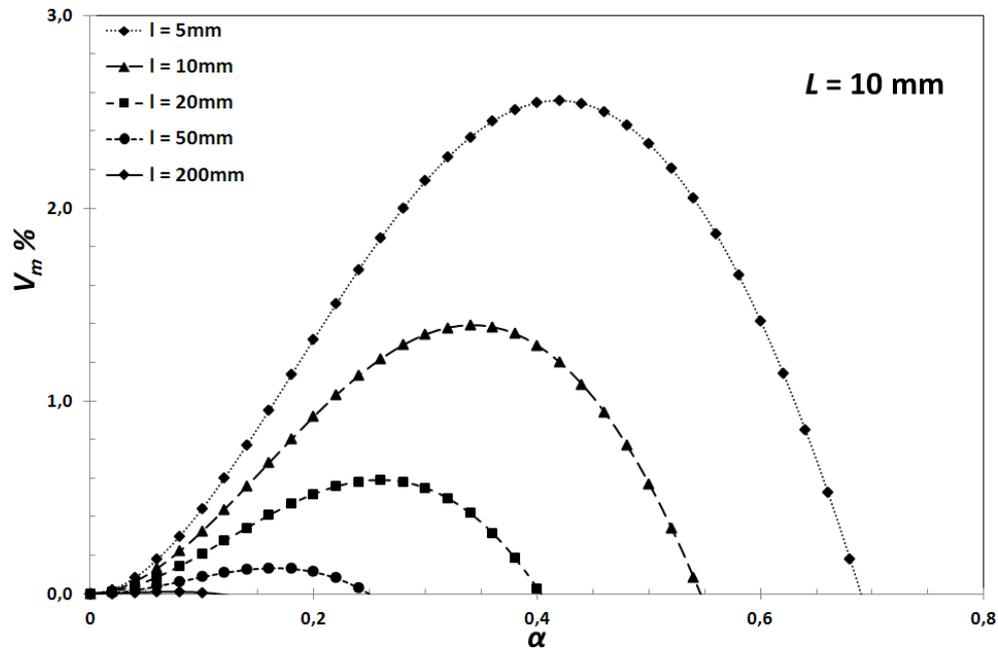


Fig.V. 9 : Evolution du taux volumique de microvides en fonction du ratio des rayons pour différentes longueurs d'alimentation et pour $L = 10$ mm

La Fig.V.9 montre que plus la longueur d'alimentation est élevée, plus le taux maximal de microvide créé est faible et n'est possible qu'entre 0 et un rapport critique des rayons α_c . En effet, plus la longueur d'alimentation est grande, plus l'avance de l'écoulement dans le microcanal est importante et donc le taux de microvide potentiel diminue. De plus, le ratio critique α_c devient de plus en plus faible lorsque la longueur d'alimentation augmente. Pour $\alpha \geq \alpha_c$ (par exemple $\alpha_c \approx 0,68$ pour $l = 5$ mm), l'expression V_m n'est plus à considérer car elle devient de signe négatif. Ceci n'a évidemment pas vraiment de sens physique, néanmoins on peut l'expliquer de la façon suivante : plus la longueur d'alimentation croît, plus l'écoulement dans le microcanal est en avance par rapport à celui dans le macrocanal. Dès lors, comme L est constante, le temps d'écoulement dans le macrocanal est fixé et donc si ce dernier est trop en retard, il ne pourra plus rattraper l'écoulement du microcanal et les microvides ne pourront pas être créés. Il faut donc avoir un rayon macro nettement plus grand que le micro pour compenser ce retard et que l'écoulement dans le macrocanal puisse rattraper celui dans le microcanal et créer ainsi des

microvides. Par conséquent, au-delà de cette valeur critique, l'expression donnant le taux de microvide n'a plus de sens.

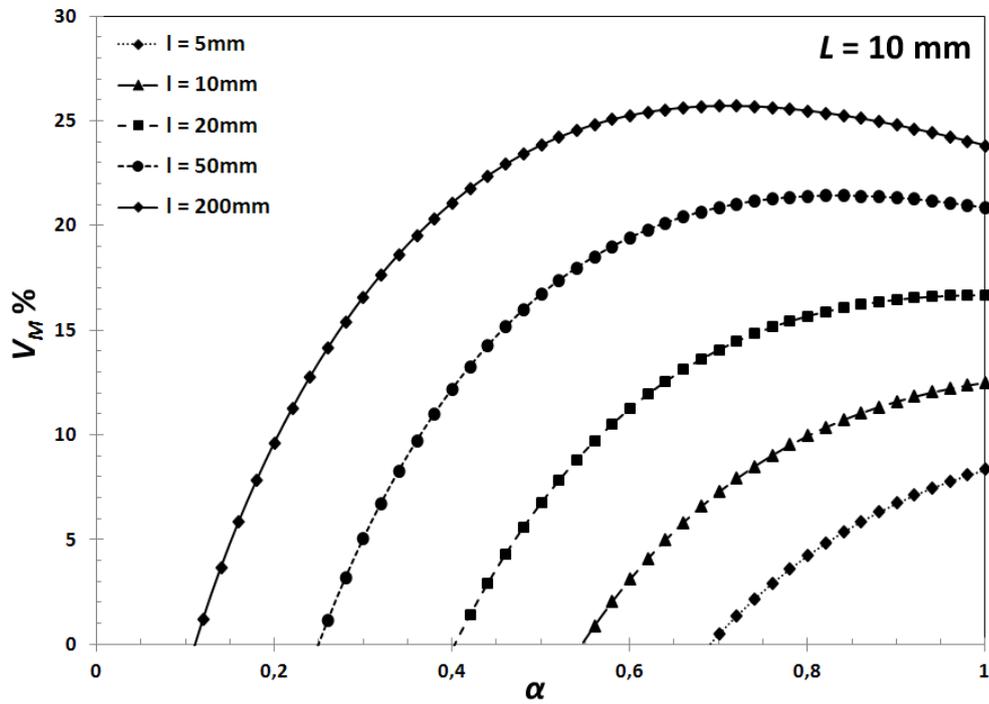


Fig.V. 10 : Evolution du taux volumique de macrovides en fonction du ratio des rayons pour différentes longueurs d'alimentation et pour $L = 10\text{ mm}$

Dans le même esprit, on constate tout d'abord sur la Fig.V.10 que le maximum de taux de macrovide est d'autant plus important que la longueur d'alimentation l est grande. En effet, plus l augmente et plus l'écoulement dans le microcanal est en avance engendrant ainsi une plus grande quantité de macrovide. La fonction V_M n'a plus de sens à partir de la même valeur de α critique pour une longueur l donnée mais cette fois-ci pour $\alpha \leq \alpha_c$.

En juxtaposant, les deux fonctions V_m et V_M sur leur domaine de validité respectif, c'est-à-dire entre $[0, \alpha_c]$ et $[\alpha_c, 1]$, la Fig.V.11 est obtenue.

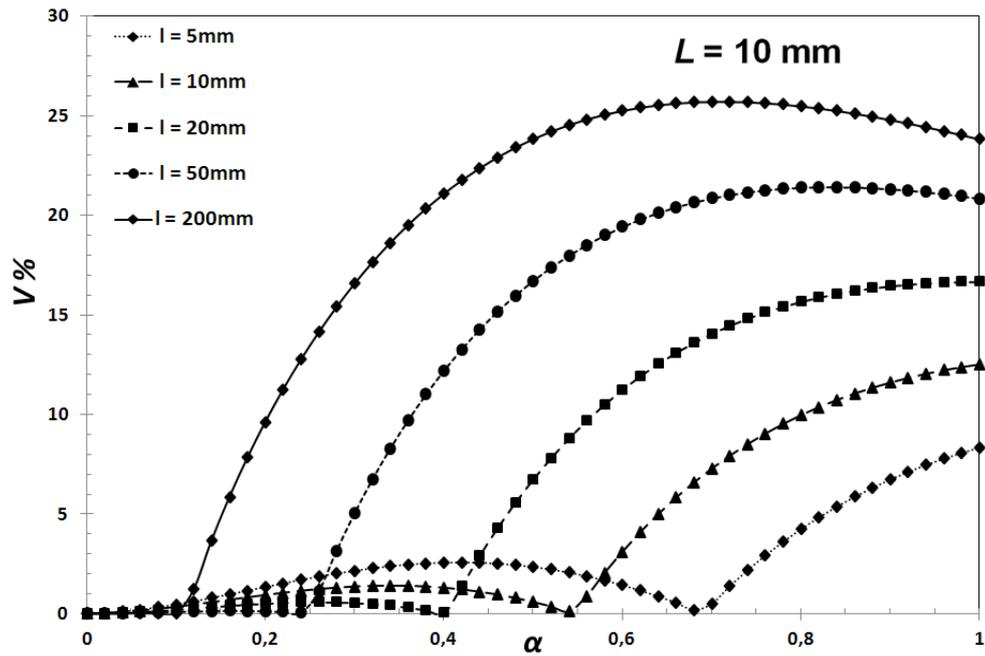


Fig.V. 11 : Juxtaposition du taux volumique de micro et macrovides en fonction du ratio des rayons pour différentes longueurs d'alimentation l et pour $L = 10\text{ mm}$

L variable et l fixe

Dans cette partie, la longueur de recouvrement varie favorisant ainsi l'écoulement dans le macrocanal et donc la création de microvide comme illustré sur les Fig.V.12-13-14.

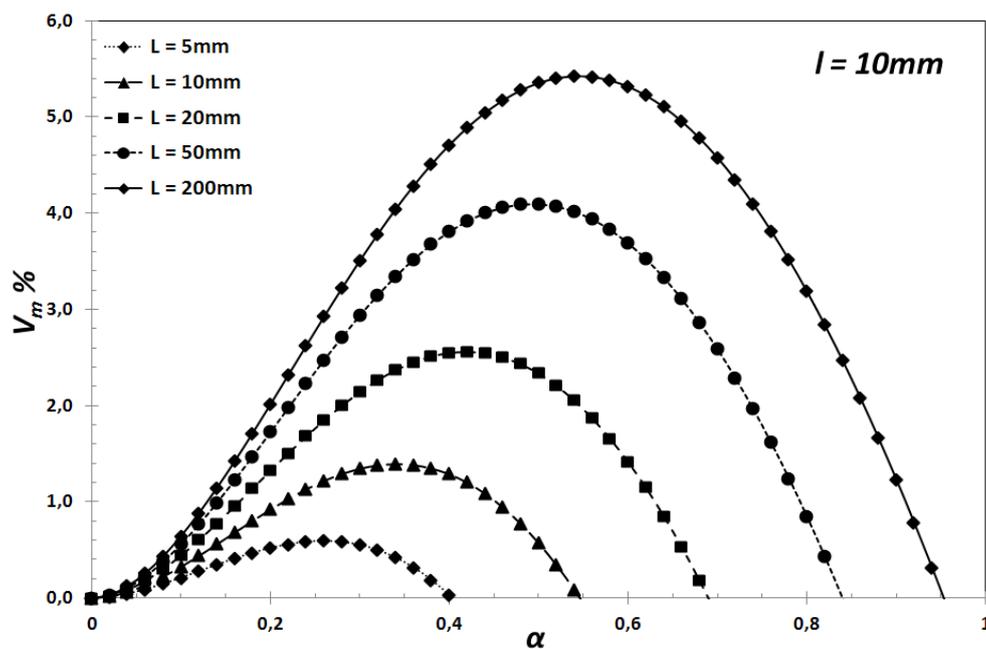


Fig.V. 12 : Evolution du taux volumique de microvides en fonction du ratio des rayons pour différentes longueurs L et pour $l = 10\text{ mm}$

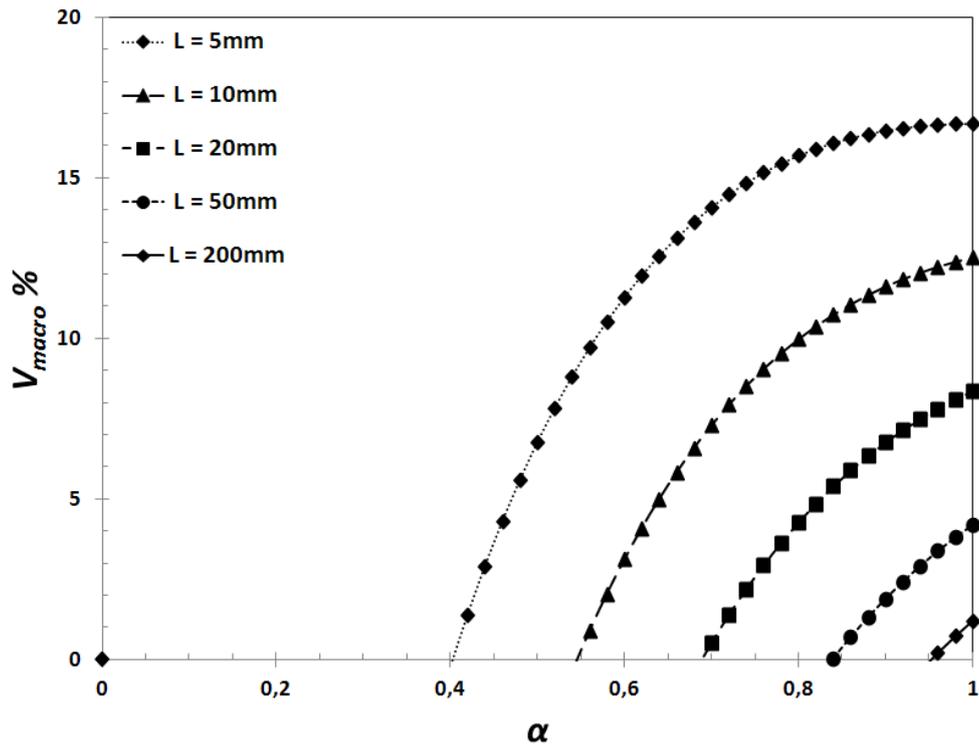


Fig.V. 13 : Evolution du taux volumique de macrovides en fonction du ratio des rayons pour différentes longueurs L et pour $l = 10 \text{ mm}$

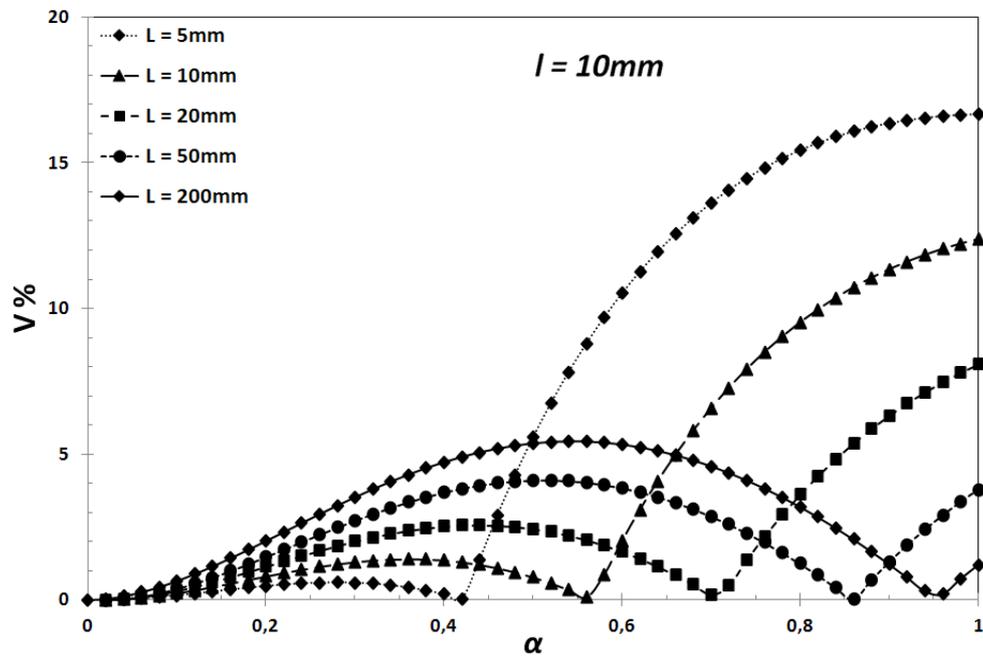


Fig.V. 14 : Juxtaposition du taux volumique de micro et macrovides en fonction du ratio des rayons pour différentes longueurs de recouvrement L et pour $l = 10 \text{ mm}$

Introduction du facteur β

Considérons qu'il existe toujours une longueur d'alimentation l , on pose alors le facteur β appelé facteur de connectivité tel que :

$$\beta = \frac{L}{l}$$

Les équations V.26 et V.32 deviennent :

$$V_m(\alpha, \beta) = \frac{\alpha^2 \left(\beta(1 - \sqrt{\alpha}) - \frac{\alpha\sqrt{\alpha}}{1 + \alpha} \right)}{(1 + \beta)(1 + \alpha^2)} \quad \text{Eq.V. 33}$$

$$V_M(\alpha, \beta) = \frac{\beta \left(1 - \frac{1}{\sqrt{\alpha}} \right) + \frac{\alpha}{1 + \alpha}}{(1 + \beta)(1 + \alpha^2)} \quad \text{Eq.V. 34}$$

Il est alors possible de représenter les diagrammes des taux de vide en fonction de α pour différents facteurs β (Fig.V.15-16-17).

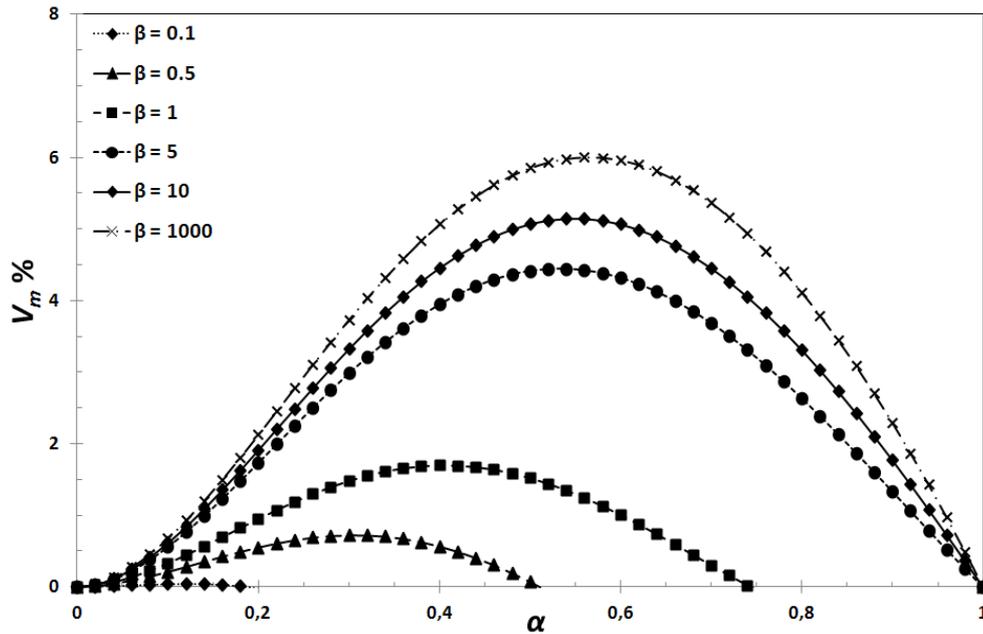


Fig.V. 15 : Evolution du taux volumique de microvides en fonction de α pour différents β

La Fig.V.15 montre que la courbe représentant le taux de vide dans le microcanal V_m tend vers une courbe limite (ici donnée par $\beta = 1000$), ce qui signifie que la longueur de connectivité l est très faible par rapport L et par conséquent que le déphasage dans le macrocanal est très important par rapport au microcanal. Il n'y aura donc de création de microvide que pour des valeurs de β élevées.

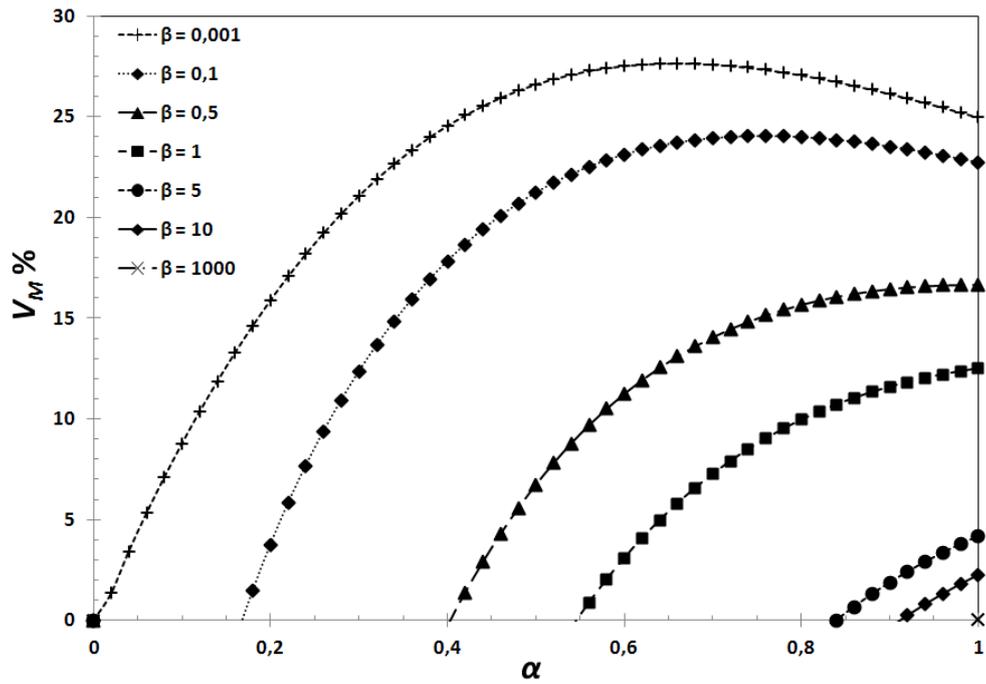


Fig.V. 16 : Evolution du taux volumique de macrovides en fonction de α pour différents β

A l'inverse, la Fig.V.16 représentant les évolutions des taux de vide dans le macrocanal V_M admet un maximum pour des faibles valeurs de β (par exemple 10^{-3}). En effet, dans ce cas, la longueur d'alimentation est cette fois-ci très grande et par conséquent engendre principalement du vide dans le macrocanal.

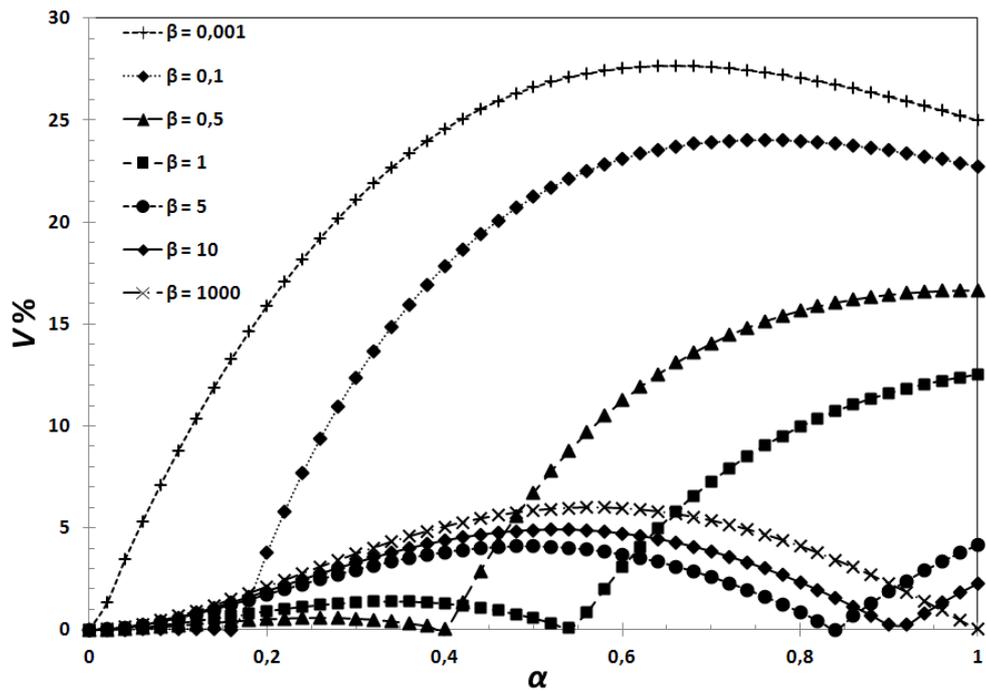


Fig.V. 17 : Juxtaposition des évolutions du taux volumique de microvides et macrovides en fonction de α pour différents β

La Fig.V.17 représente les évolutions des macro et microvides en fonction des paramètres α et β en montrant les courbes limites pour $\beta = 10^{-3}$ (que du macrovide) et $\beta = 10^3$ (que du microvide). Les maxima atteints sont respectivement d'environ 27,65% pour un ratio $\alpha_m = 0,66$ et 6% $\alpha_m = 0,56$.

V.3.2 Remplissage à pression imposée P_i

En supposant que la longueur d'entrée jusqu'au nœud est nulle et que le remplissage se fait de manière forcée avec une pression imposée P_i , le bilan des pressions appliquées à un tube cylindrique, en négligeant le terme inertiel pour des temps très courts, s'écrit :

$$\frac{8\eta}{R_{m,M}^2} x \dot{x} = P_i + \frac{2 \gamma_L \cos \theta_e}{R_{m,M}} \quad \text{Eq.V. 35}$$

$$x(t) = \left(\frac{P_i R_{m,M}^2 + 2 R_{m,M} \gamma_L \cos \theta_e}{4\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} \quad \text{Eq.V. 36}$$

Pour une pression imposée nulle, on retrouve bien l'équation classique de Washburn (en régime spontané). Par ailleurs, plus le rayon du capillaire est faible, plus le terme $P_i R_{m,M}^2$ est négligeable. En d'autres termes, l'influence de la pression d'entrée est d'autant plus importante que le rayon du capillaire est grand. Ceci est corroboré par le fait qu'à pression constante, la force de poussée à l'entrée du canal est plus importante pour un rayon plus grand (Fig.V.18).

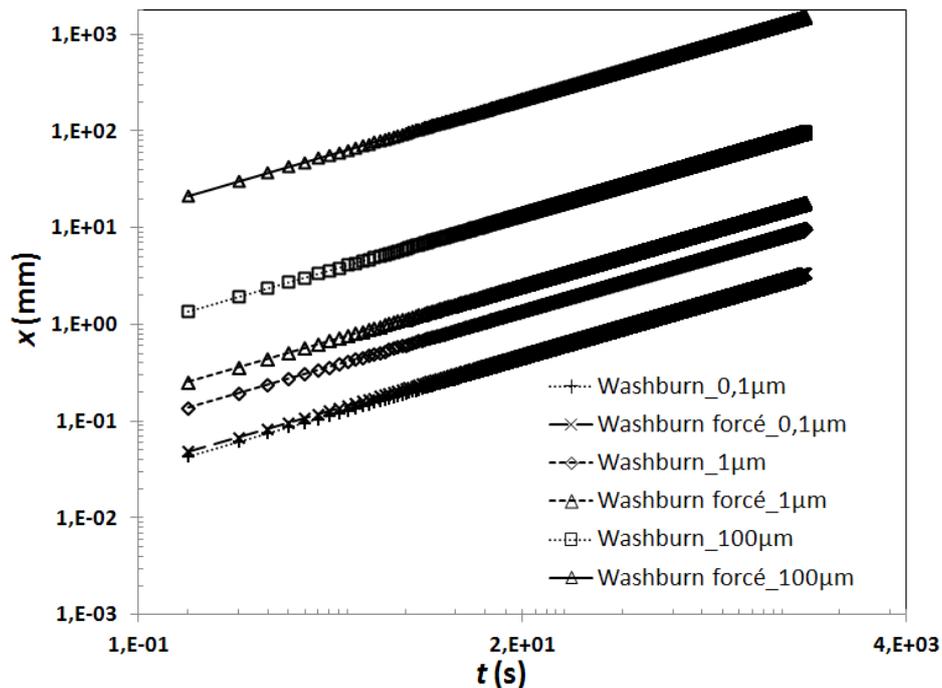


Fig.V. 18 : Effet de la pression imposée pour différents rayons de tube pour $P_i = 10^5$ Pa

V.3.2.1 Connectivité en un nœud

Dans le cas d'une connectivité en un nœud, la loi de Washburn modifiée, en rajoutant un terme lié à la pression imposée, est utilisée dans les deux échelles de pores :

$$x_{m,M}(t) = \left(\frac{P_i R_{m,M}^2 + 2 R_{m,M} \gamma_L \cos \theta_e}{4\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} \quad \text{Eq.V. 37}$$

L'écoulement dans le macrocanal est plus rapide et atteint le nœud en $x(t_{fL}) = L$ à un instant t_{fL} . Ce temps caractéristique est déduit de l'équation Eq.V.37 pour le macrocanal et vaut :

$$t_{fL} = \frac{4\eta L^2}{P_i R_M^2 + 2 R_M \gamma_L \cos \theta_e} \quad \text{Eq.V. 38}$$

En injectant Eq.V.38 dans Eq.V.37 pour le microcanal, la position du front liquide dans ce dernier à l'instant t_{fL} est donnée par :

$$x_m(t_{fL}) = L \left(1 - \left(\frac{P_i R_m^2 + 2 R_m \gamma_L \cos \theta_e}{P_i R_M^2 + 2 R_M \gamma_L \cos \theta_e} \right)^{1/2} \right) \quad \text{Eq.V. 39}$$

En assimilant le microvide à un cylindre de longueur Δx_m et de rayon égal à R_m , le taux de microvide piégé s'écrit :

$$V_m = \frac{\alpha^2}{1 + \alpha^2} \left(1 - \left(\frac{P_i R_m^2 + 2 R_m \gamma_L \cos \theta_e}{P_i R_M^2 + 2 R_M \gamma_L \cos \theta_e} \right)^{1/2} \right) \quad \text{Eq.V. 40}$$

Pour $P_i = 0$, l'Eq.V.7, pour un régime spontané, est obtenue. Le taux de microvide dépend des rayons micro et macro, de la tension de surface du liquide et de la pression imposée. Pour simplifier l'étude, nous fixons les rayons micro et macro respectivement à $5 \mu\text{m}$ et à $200 \mu\text{m}$, soit un rapport de rayons $\alpha = 0,025$. L'évolution du taux de microvide en fonction de la pression imposée P_i pour différentes expressions de $\gamma_L \cos \theta_e$ est représentée en échelle semi-Log sur la Fig.V.19.

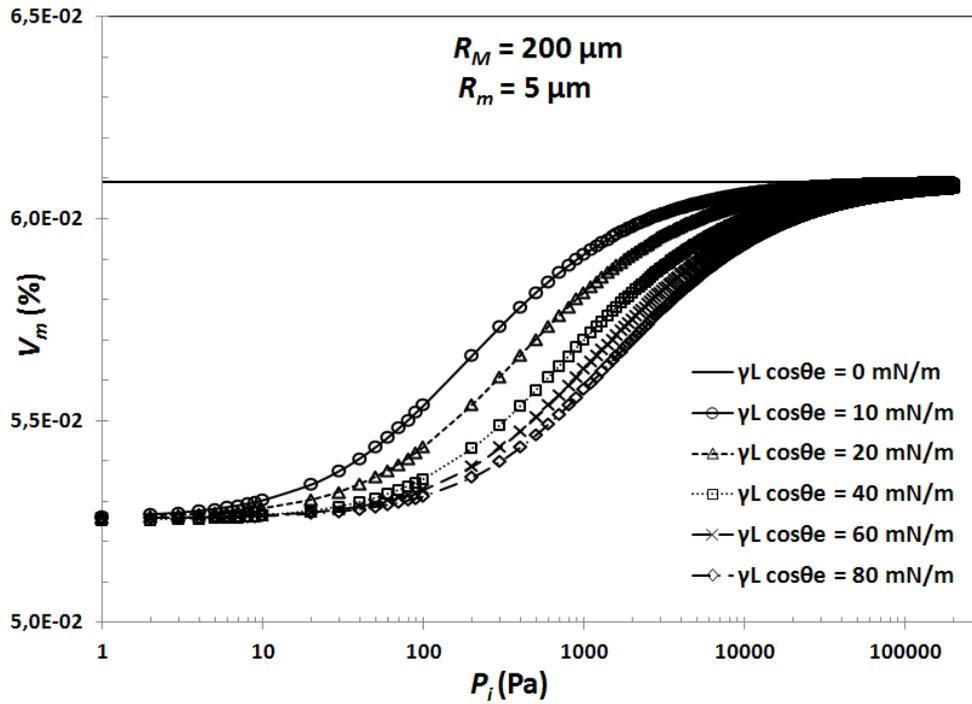


Fig.V. 19 : Taux volumique de microvide en fonction de la pression imposée pour différents $\gamma_L \cos \theta_e$

L'évolution du taux de microvide en fonction de $\gamma_L \cos \theta_e$ pour différentes pressions imposées est représentée en échelle semi-Log sur la Fig.V.20.

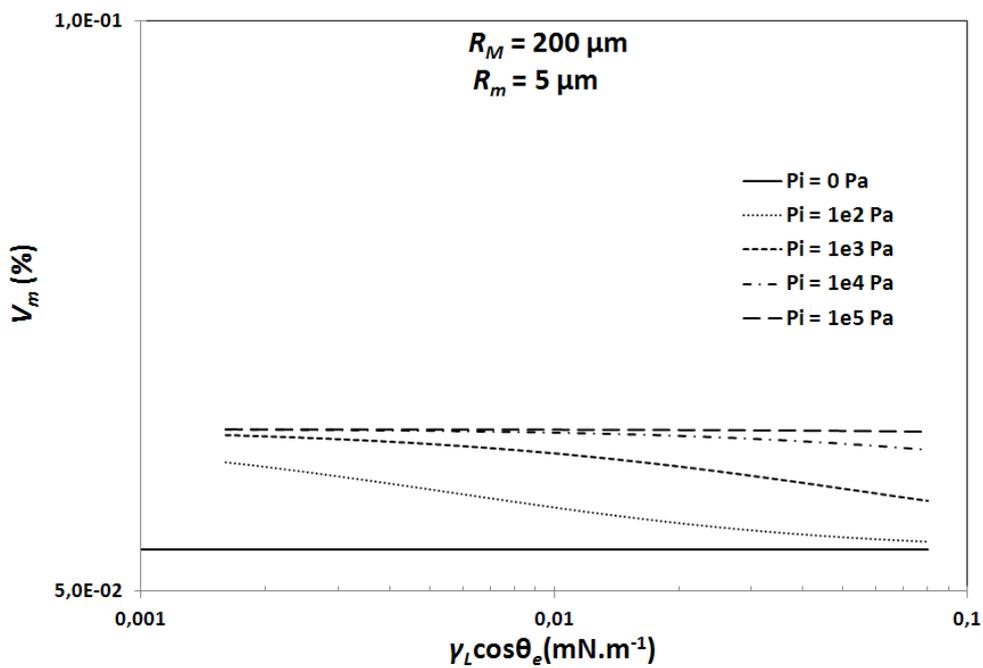


Fig.V. 20 : Taux volumique de microvide en fonction de $\gamma_L \cos \theta_e$ pour différentes pressions imposées

V.3.2.2 Connectivité parallèle

Dans le cas d'une connectivité parallèle (Fig.V.4), l'Eq.V.37 est seulement appliquée pour le macrocanal. Pour le microcanal, l'équation de mouvement est donnée en sommant les expressions de la position du front dans le macrocanal $x_M(t)$ et du déphasage $\Delta x(t)$ tous deux modifiés par l'ajout d'une pression imposée :

$$x_m(t) \approx \left[(P_i R_M^2 + 2 R_M \gamma_L \cos \theta_e)^{1/2} + \left(P_i R_m^2 + 2 \left(\frac{R_m^2}{R_M} \right) \gamma_L \cos \theta_e \right)^{1/2} \right] \left(\frac{1}{4\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} \quad \text{Eq.V. 41}$$

En prenant $P_i = 0$, l'Eq.V.14 du régime spontané est retrouvée.

Le temps t_{fl} correspondant à la position $x_m(t_{fl}) = l$ est déduit :

$$t_{fl} = \frac{4\eta l^2}{\left[(P_i R_M^2 + 2 R_M \gamma_L \cos \theta_e)^{1/2} + \left(P_i R_m^2 + 2 \left(\frac{R_m^2}{R_M} \right) \gamma_L \cos \theta_e \right)^{1/2} \right]^2} \quad \text{Eq.V. 42}$$

En injectant ensuite Eq.V.42 dans Eq.V.37 appliquée au macrocanal, la longueur de macrovide $\Delta x_M(t_{fl}) = l - x_M(t_{fl})$ s'exprime :

$$\Delta x_M(t_{fl}) \approx l \frac{\left(P_i R_m^2 + 2 \left(\frac{R_m^2}{R_M} \right) \gamma_L \cos \theta_e \right)^{1/2}}{\left(P_i R_M^2 + 2 R_M \gamma_L \cos \theta_e \right)^{1/2} + \left(P_i R_m^2 + 2 \left(\frac{R_m^2}{R_M} \right) \gamma_L \cos \theta_e \right)^{1/2}} \quad \text{Eq.V. 43}$$

Le taux de vide macro s'exprime comme suit :

$$V_M = \frac{1}{(1 + \alpha^2)} \left(\frac{\left(P_i R_m^2 + 2 \left(\frac{R_m^2}{R_M} \right) \gamma_L \cos \theta_e \right)^{1/2}}{\left(P_i R_M^2 + 2 R_M \gamma_L \cos \theta_e \right)^{1/2} + \left(P_i R_m^2 + 2 \left(\frac{R_m^2}{R_M} \right) \gamma_L \cos \theta_e \right)^{1/2}} \right) \quad \text{Eq.V. 44}$$

L'évolution de V_M en fonction de la pression imposée pour différentes expressions de $\gamma_L \cos \theta_e$ est reportée en échelle semi-Log sur la Fig.V.21.

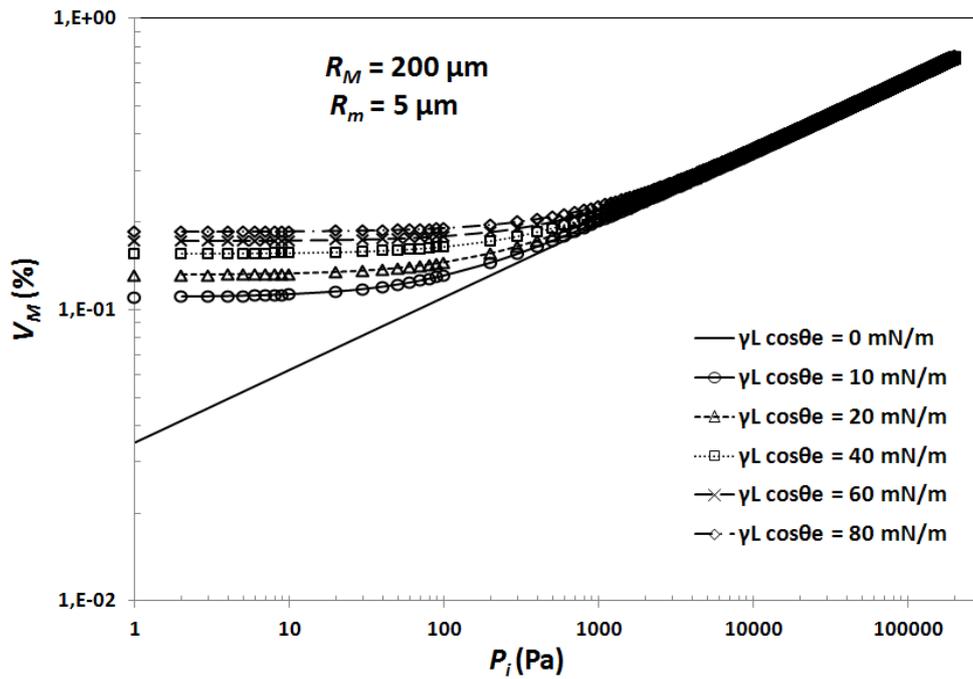


Fig.V. 21 : Taux volumique de macrovide en fonction de la pression imposée pour différents $\gamma_L \cos \theta_e$

L'évolution du taux de macrovide en fonction de $\gamma_L \cos \theta_e$ pour différentes pressions imposées est représentée en échelle semi-Log sur la Fig.V.22.

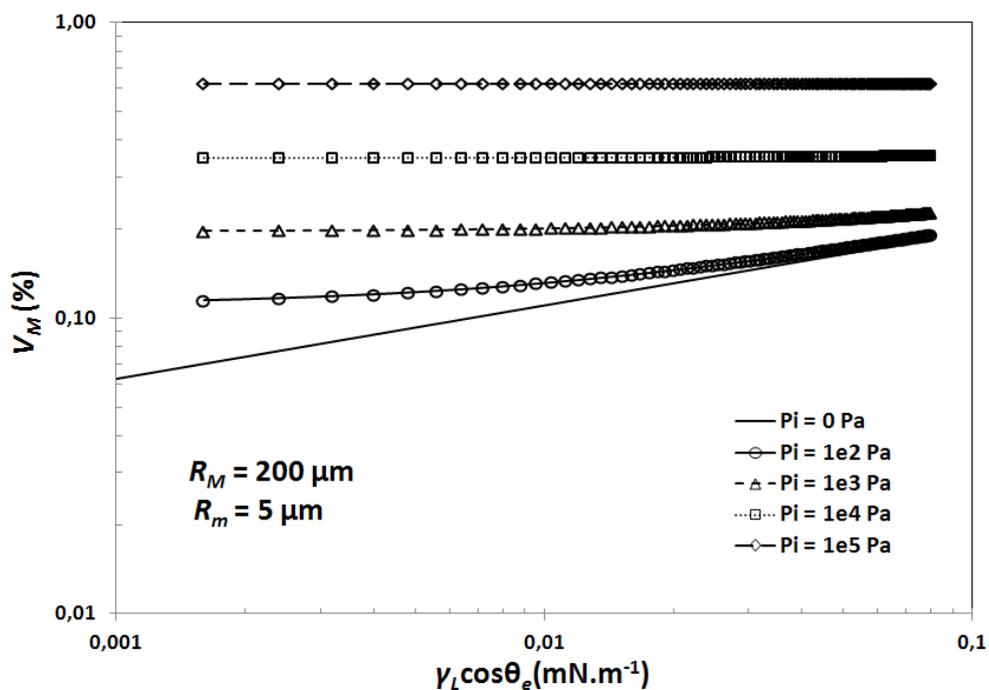


Fig.V. 22 : Taux volumique de macrovide en fonction de $\gamma_L \cos \theta_e$ pour différentes pressions imposées

V.3.2.3 Modèle combiné en régime forcé

Pour simplifier les notations, on exprime les équations dans le modèle combiné en fonction de α , β , R_m et l . Afin de faciliter les calculs pour la suite de l'étude, le liquide est supposé mouillant et l'angle de contact considéré est l'angle à l'équilibre apparent. En réalité, un angle dynamique doit être pris en compte.

- Durant la 1^{ère} phase, les écoulements sont exprimés comme suit :

- dans le macrocanal, par une loi de Washburn en régime forcé :

$$x_M(t) = \frac{1}{\alpha} \left(\frac{P_i R_m^2 + 2\alpha R_m \gamma_L \cos \theta_e}{4\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} \quad \text{Eq.V. 45}$$

- dans le microcanal, par le principe d'alimentation :

$$x_m(t) = \frac{1}{\alpha} \left(\frac{P_i \alpha^2 R_m^2 + 2\alpha(1 + \alpha)^2 R_m \gamma_L \cos \theta_e}{4\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} \quad \text{Eq.V. 46}$$

- Durant la 2nd phase, les écoulements sont exprimés :

- dans le macrocanal par :

$$x_M(t) = \frac{1}{\alpha} \left(\frac{P_i R_m^2 + 2\alpha R_m \gamma_L \cos \theta_e}{4\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} + x_M(t_{fl}) \quad \text{Eq.V. 47}$$

- dans le microcanal tel que :

$$x_m(t) = \left(\frac{P_i R_m^2 + 2 R_m \gamma_L \cos \theta_e}{4\eta} \right)^{1/2} t^{1/2} + x_m(t_{fl}) \quad \text{Eq.V. 48}$$

Contrairement au cas spontané, l'écoulement dans le microcanal n'arrive pas toujours en tête au nœud $x = l$. En effet, cela dépend des pressions imposées et ainsi l'écoulement dans le macrocanal peut être plus rapide malgré l'alimentation qui est fournie au microcanal. Il existe alors une pression P^* pour laquelle les deux écoulements arrivent en même temps au nœud $x = l$, soit $x_m(t_{fl}) = x_M(t_{fl})$. Il en résulte :

$$P^* = \frac{2\alpha^2 \gamma_L \cos \theta_e}{R_m} \left(\frac{2 + \alpha}{1 - \alpha^2} \right) \quad \text{Eq.V. 49}$$

Une fois cette pression déterminée, quatre cas différents peuvent être distingués où chacun des écoulements peut l'emporter à $x = l$ ou $x = l + L$. Pour $P_i < P^*$, on suppose que

l'écoulement dans le microcanal est en avance jusqu'à la position $x = l$ symbolisant la fin de la 1^{ère} phase. En effet, l'alimentation a favorisé un déphasage dans le microcanal. Par contre, on admet que lorsque $P_i > P^*$, l'écoulement est plus rapide dans le macrocanal car sa section est plus importante. On note alors deux possibilités pour chaque cas suivant que l'écoulement qui est en retard arrive à rattraper celui qui est en avance ou non.

- Pour $P_i < P^*$: L'écoulement dans le microcanal arrive en premier à la position $x = l$, la condition $x_m(t_{fl}) = l$ est toujours vraie.

Tout d'abord, on cherche à évaluer, durant la première phase, l'instant t_{fl} et la position du front dans le macrocanal $x_M(t_{fl})$ à cet instant.

D'après l'Eq.V.46 à $t = t_{fl}$, $x_m(t_{fl}) = l$ et l'expression de t_{fl} est obtenue :

$$t_{fl} = \frac{4\eta\alpha^2 l^2}{P_i\alpha^2 R_m^2 + 2\alpha(1+\alpha)^2 R_m \gamma_L \cos \theta_e} \quad \text{Eq.V. 50}$$

Cette expression est injectée dans l'Eq.V.45, afin d'obtenir la position du front dans le macrocanal $x_M(t_{fl})$ à la fin de la 1^{ère} phase :

$$x_M(t_{fl}) = l \left(\frac{P_i R_m + 2\alpha \gamma_L \cos \theta_e}{P_i\alpha^2 R_m^2 + 2\alpha(1+\alpha)^2 \gamma_L \cos \theta_e} \right)^{1/2} \quad \text{Eq.V. 51}$$

De là, deux cas sont possibles :

- 1^{er} cas : l'écoulement dans le macrocanal dépasse celui dans le microcanal et donc arrive en $x = l(1 + \beta)$ avant l'écoulement dans le microcanal. Des microvides sont alors créés. On cherche donc à déterminer la position du front dans le microcanal à l'instant t_{fL} .

D'après l'Eq.V.47, l'expression du temps final t_{fL} est donnée par :

$$t_{fL} = [l(1 + \beta) - x_M(t_{fl})]^2 \left(\frac{4\eta\alpha^2}{P_i R_m^2 + 2\alpha R_m \gamma_L \cos \theta_e} \right) \quad \text{Eq.V. 52}$$

Ensuite, en injectant, Eq.V.52 dans Eq.V.48, la position finale du front dans le microcanal s'écrit :

$$x_m(t_{fL}) = \alpha [l(1 + \beta) - x_M(t_{fl})] \left(\frac{P_i R_m^2 + 2 R_m \gamma_L \cos \theta_e}{P_i R_m^2 + 2\alpha R_m \gamma_L \cos \theta_e} \right)^{1/2} + x_m(t_{fl}) \quad \text{Eq.V. 53}$$

avec $x_m(t_{fl}) = l$.

La longueur du vide piégé dans le microcanal est alors donnée par :

$$\Delta x_m(t_{fL}) = x_M(t_{fL}) - x_m(t_{fL}) = l(1 + \beta) - x_m(t_{fL}) \quad \text{Eq.V. 54}$$

$$\Delta x_m(t_{fL}) = \beta l - \alpha [l(1 + \beta) - x_m(t_{fL})] \left(\frac{P_i R_m^2 + 2 R_m \gamma_L \cos \theta_e}{P_i R_m^2 + 2 \alpha R_m \gamma_L \cos \theta_e} \right)^{1/2} \quad \text{Eq.V. 55}$$

Le taux de vide piégé dans le microcanal est donné par :

$$V_m = \frac{\alpha^2}{l(1 + \beta)(1 + \alpha^2)} \Delta x_m(t_{fL}) \quad \text{Eq.V. 56}$$

- 2^{ème} cas : l'écoulement dans le microcanal conserve son avance et arrive à la position $x = l + L$ en premier. Cette configuration favorise la création de macrovide. On cherche donc à exprimer la position du front de l'écoulement dans le macrocanal à l'instant t_{fL} .

D'après Eq.V.48, le temps final t_{fL} est tel que :

$$t_{fL} = \frac{4\eta l^2 \beta^2}{P_i R_m^2 + 2 R_m \gamma_L \cos \theta_e} \quad \text{Eq.V. 57}$$

Puis, en injectant l'Eq.V.57 dans l'Eq.V.47, la position du front du macrocanal est de la forme suivante :

$$x_M(t_{fL}) = \frac{\beta l}{\alpha} \left(\frac{P_i R_m^2 + 2\alpha R_m \gamma_L \cos \theta_e}{P_i R_m^2 + 2 R_m \gamma_L \cos \theta_e} \right)^{1/2} + x_m(t_{fL}) \quad \text{Eq.V. 58}$$

avec $x_m(t_{fL})$ donnée par l'Eq.V.51

La longueur du vide piégé dans le microcanal est donnée par :

$$\Delta x_M(t_{fL}) = x_m(t_{fL}) - x_M(t_{fL}) = l(1 + \beta) - x_M(t_{fL}) \quad \text{Eq.V. 59}$$

$$\Delta x_M(t_{fL}) = l(1 + \beta) - \frac{\beta l}{\alpha} \left(\frac{P_i R_m^2 + 2\alpha R_m \gamma_L \cos \theta_e}{P_i R_m^2 + 2 R_m \gamma_L \cos \theta_e} \right)^{1/2} - x_m(t_{fL}) \quad \text{Eq.V. 60}$$

Le taux de vide piégé dans le macrocanal s'exprime comme suit :

$$V_M = \frac{1}{l(1 + \beta)(1 + \alpha^2)} \Delta x_M(t_{fL}) \quad \text{Eq.V. 61}$$

Pour $P_i > P^*$: l'écoulement dans le macrocanal arrive en premier à la position $x = l$, la condition $x_M(t_{fl}) = l$ est toujours respectée.

De même que précédemment, on cherche à évaluer, durant la première phase, l'instant t_{fl} et la position du front en retard à cet instant. On cherche alors la position dans le microcanal $x_m(t_{fl})$ et t_{fl} .

D'après l'Eq.V.45 en $t = t_{fl}$ et la condition $x_M(t_{fl}) = l$, l'expression de t_{fl} est telle que :

$$t_{fl} = \frac{4\eta\alpha^2 l^2}{P_i R_m^2 + 2\alpha R_m \gamma_L \cos \theta_e} \quad \text{Eq.V. 62}$$

En injectant ensuite cette expression dans l'Eq.V.46, la position du front dans le microcanal $x_m(t_{fl})$ à l'instant t_{fl} est donnée par :

$$x_m(t_{fl}) = l \left(\frac{P_i \alpha^2 R_m + 2\alpha(1 + \alpha)^2 \gamma_L \cos \theta_e}{P_i R_m + 2\alpha \gamma_L \cos \theta_e} \right)^{1/2} \quad \text{Eq.V. 63}$$

De là, deux autres cas sont possibles :

- 3^{ème} cas : l'écoulement dans le macrocanal conserve son avance et arrive à $x = l + L$ avant l'écoulement dans le microcanal. Dans ce cas, le microvide est piégé. On cherche alors à déterminer la position du front dans le microcanal à l'instant t_{fL} .

L'expression de t_{fL} est déterminée par l'Eq.V.47 pour $x_M(t_{fL}) = l + L$:

$$t_{fL} = \frac{4\eta\alpha^2 \beta^2 l^2}{P_i R_m^2 + 2\alpha R_m \gamma_L \cos \theta_e} = \beta^2 t_{fl} \quad \text{Eq.V. 64}$$

Enfin, en injectant l'expression de t_{fL} et l'Eq.V.63 dans l'Eq.V.48, l'expression de la position du front micro quand le front macro est à la position $l + L$ s'écrit :

$$x_m(t_{fL}) = \alpha l \left(\frac{\beta(P_i R_m + 2\gamma_L \cos \theta_e)^{1/2} + \left(P_i R_m + 2\frac{(1 + \alpha)^2}{\alpha} \gamma_L \cos \theta_e \right)^{1/2}}{(P_i R_m + 2\alpha \gamma_L \cos \theta_e)^{1/2}} \right) \quad \text{Eq.V. 65}$$

Le décalage est donné par la relation suivante :

$$\Delta x_m(t_{fL}) = l \left((1 + \beta) - \alpha \left(\frac{\beta(P_i R_m + 2 \gamma_L \cos \theta_e)^{1/2} + \left(P_i R_m + 2 \frac{(1 + \alpha)^2}{\alpha} \gamma_L \cos \theta_e \right)^{1/2}}{(P_i R_m + 2 \alpha \gamma_L \cos \theta_e)^{1/2}} \right) \right) \quad \text{Eq.V. 66}$$

Finalement, le taux de microvide est tel que :

$$V_m = \frac{\alpha^2}{l(1 + \beta)(1 + \alpha^2)} \Delta x_m(t_{fL}) \quad \text{Eq.V. 67}$$

Lorsque P_i est très grand,

$$V_m \rightarrow \frac{\alpha^2(1 - \alpha)}{(1 + \alpha^2)} \quad \text{Eq.V. 68}$$

- 4^{ème} cas : l'écoulement dans le macrocanal ne garde pas son avance et est rattrapé par celui dans le microcanal. En théorie ce cas de figure doit donc créer des macrovides. Cependant ceci est impossible dans cette configuration dans la mesure où l'écoulement dans le macrocanal est déjà en avance à $x = l$. L'application du modèle de Washburn avec la prise en compte de la pression imposée prévoit un écoulement dans le microcanal toujours en retard par rapport à celui se passant dans le macrocanal. En effet, l'expression donnant l'évolution de la position du front au cours du temps est proportionnelle d'une part au rayon du canal et d'autre part au terme en $P_i R^2$ dont l'effet est nettement plus important pour le macrocanal.

V.3.2.4 Résultats des modèles analytiques

Dans cette partie, les évolutions des taux de vide en fonction de la pression imposée P_i sont représentées pour différentes valeurs du paramètre α (Fig.V.23 et Fig.V.24) et du paramètre β (Fig.V.25 et Fig.V.26).

Influence du paramètre α

Sur la Fig.V.23, le rayon du microcanal est fixé à 10 μm , la longueur d'alimentation à 300 mm et celle de recouvrement à 0,1 mm via le paramètre β . Le rayon du macrocanal est le paramètre variant via le paramètre α . Pour des α décroissants, R_M prend implicitement les valeurs suivantes : 16, 200, 300 et 400 μm .

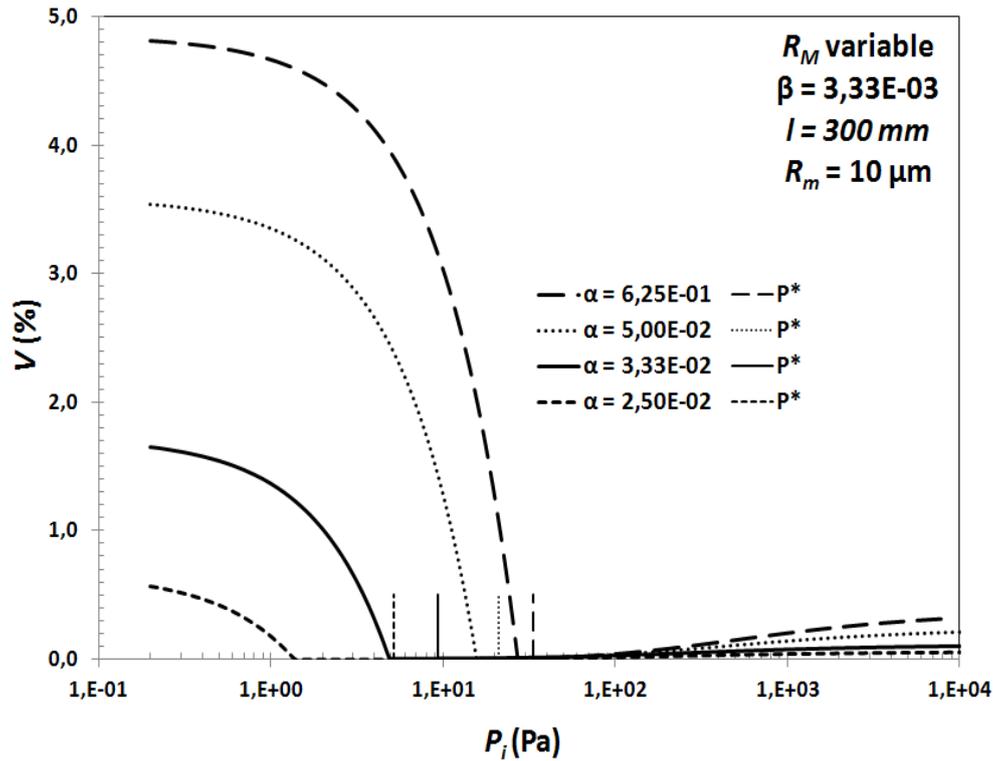


Fig.V. 23 : Représentation du taux volumique de vide en fonction de la pression imposée pour différentes valeurs de α , avec $l = 300 \text{ mm}$, $R_m = 10 \mu\text{m}$ et $\beta = 0,0033$

Pour la Fig.V.23, dans le cas où $P^* < P_i$, on peut obtenir aussi bien des macrovides que des microvides. Ces derniers apparaissent à une pression caractéristique $P_{M,m} < P_i$ symbolisant la jonction entre les cas 1 et 2. En effet, le taux de macrovide décroît avec l'augmentation de pression et atteint un minimum à $P = P_{M,m}$. En d'autres termes, cette pression traduit le fait que les écoulements arrivent en même temps à $x = l + L$. La valeur de $P_{M,m}$ diminue lorsque α diminue, i-e quand R_M augmente à R_m fixé. En effet, plus R_M augmente et moins il faut de pression pour que l'écoulement dans le macrocanal rattrape celui dans le microcanal et donc bascule sur du microvide. Par ailleurs, le taux de macrovide maximal engendré diminue à mesure que R_M augmente. Il est d'environ 4,8% pour $R_m = 10 \mu\text{m}$ et $R_M = 16 \mu\text{m}$ et d'environ 3,5% pour $R_m = 10 \mu\text{m}$ et $R_M = 200 \mu\text{m}$. Ceci est dû au fait qu'en augmentant le rayon du macrocanal, la vitesse de l'écoulement est accrue, diminuant ainsi son retard et le taux maximal de macrovide. A partir de la pression $P_{M,m}$, seul du microvide est créé.

Dans l'intervalle $[P_{M,m}, P^*]$, le taux de vide créé dans le microcanal n'augmente que très légèrement car plus on se rapproche de P^* , plus le déphasage des écoulements dans la 1^{ère} phase tend vers 0 (cf définition de P^*) et comme la longueur de recouvrement est faible, le déphasage final sera faible. On peut ajouter que l'intervalle $[P_{M,m}, P^*]$ diminue, donc que $P_{M,m} \rightarrow P^*$, lorsque le ratio α augmente ($R_M \rightarrow R_m$). Ceci traduit le fait que comme R_M diminue, il faut une pression

plus élevée pour que l'écoulement dans le macrocanal rattrape celui dans le microcanal qui était en avance à la fin de la 1^{ère} phase.

Enfin, pour $P_i > P^*$, l'expression du microvide est celle du 3^{ème} cas. Le taux de microvide augmente en fonction de la pression mais tend vers une limite ne dépendant que du paramètre α Eq.V.68.

Pour le graphique Fig.V.24, le rayon du macrocanal est fixé à 200 μm . Les longueurs d'alimentation et de recouvrement sont considérées identiques au paragraphe précédent. Le rayon du microcanal est alors le paramètre variant, prenant les valeurs suivantes : 2, 5, 10 et 20 μm .

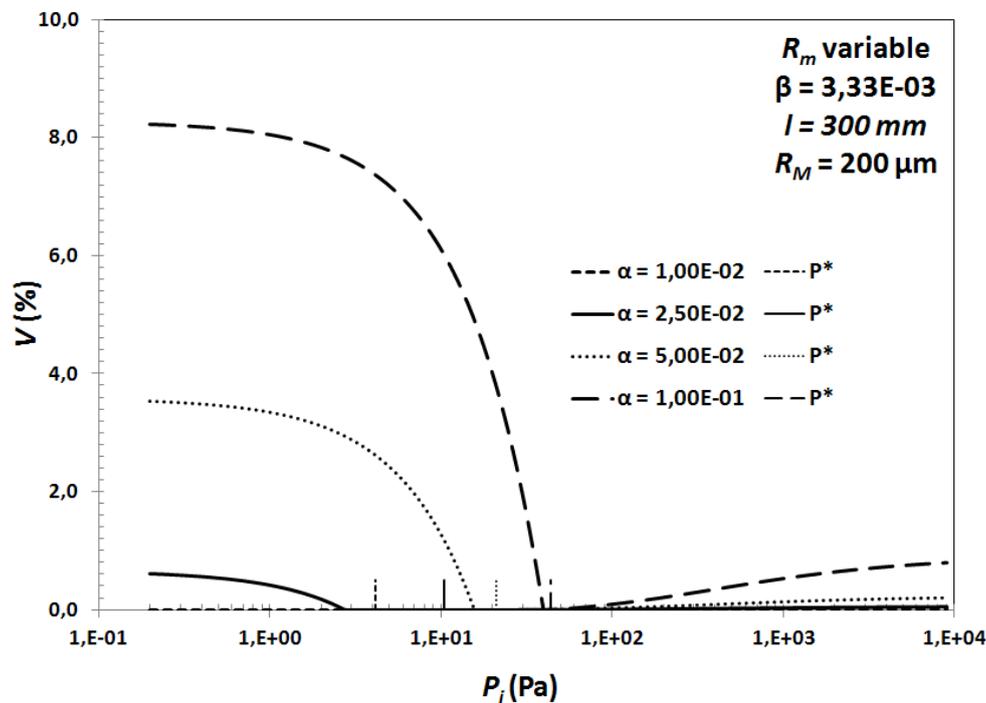


Fig.V. 24 : Représentation du taux volumique de vide en fonction de la pression imposée pour différentes valeurs de α , avec $l = 300 \text{ mm}$, $R_M = 200 \mu\text{m}$ et $\beta = 0,0033$

Le taux maximal de macrovide engendré est d'environ 3,5% pour $R_m = 10 \mu\text{m}$ et $R_M = 200 \mu\text{m}$ et de plus de 8% pour $R_m = 20 \mu\text{m}$ et $R_M = 200 \mu\text{m}$. Rappelons qu'il est d'environ 4,8% pour $R_m = 10 \mu\text{m}$ et $R_M = 16 \mu\text{m}$ (Fig.V.23). En doublant la valeur de R_m , le taux de vide est multiplié par 2,3 alors qu'en multipliant R_M par environ 12,5, le taux de vide est augmenté que d'un facteur de 1,7. Ceci montre bien que l'influence du rayon microcanal est plus importante que le rayon du macrocanal sur le taux maximal de macrovide.

Influence du paramètre β

Pour la Fig.V.25, les rayons sont fixés à $R_m = 10 \mu\text{m}$ et $R_M = 200 \mu\text{m}$ et pour une longueur d'alimentation $l = 300 \text{ mm}$. La longueur de recouvrement L est le paramètre variant dans ce cas.

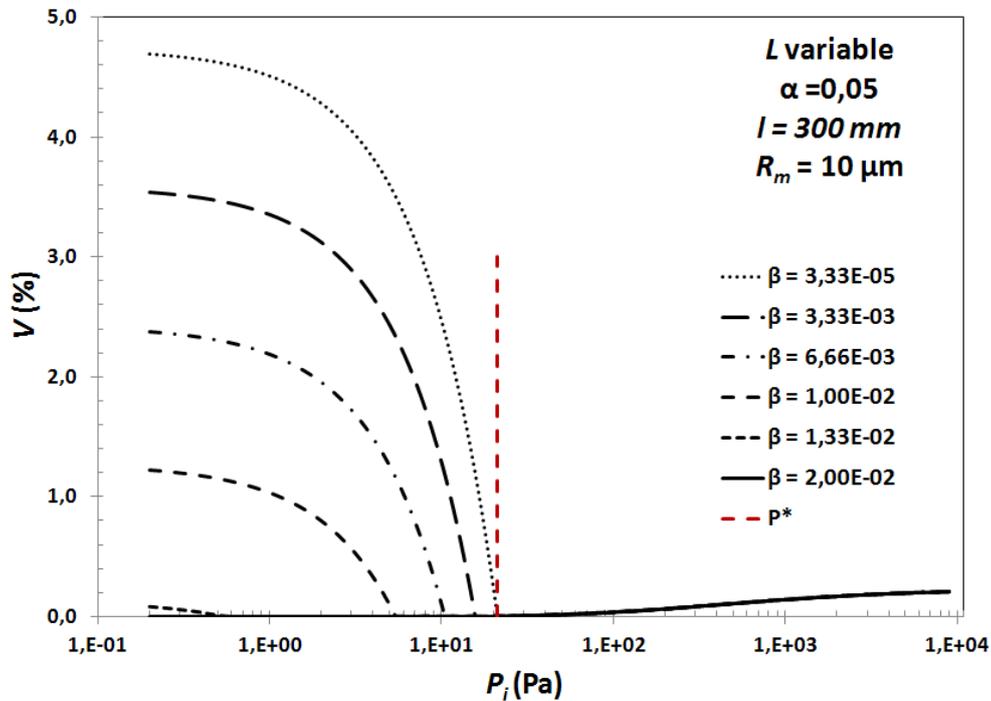


Fig.V. 25 : Représentation du taux volumique de vide en fonction de la pression imposée pour différentes valeurs de β , avec $l = 300 \text{ mm}$, $R_m = 10 \mu\text{m}$ et $\alpha = 0,05$

La Fig.V.25 montre que la pression de transition n'évolue pas en fonction de la variable β (Eq.V.49) car elle ne dépend que des paramètres R_m et α . Lorsque $P_i < P^*$, pour des valeurs de β décroissantes, c'est-à-dire pour des longueurs de recouvrement diminuant (allant de 300 mm pour $\beta = 1$ à $10 \mu\text{m}$ pour $\beta = 3,3 \cdot 10^{-5}$), les taux de macrovide sont plus élevés. En effet, l'écoulement dans le microcanal étant en avance, plus L est faible et moins l'écoulement dans le macrocanal a la possibilité de rattraper son retard. Par contre pour $\beta = 2 \cdot 10^{-2}$, i.e. une longueur de recouvrement de 6 mm , le taux de macrovide est quasiment nul car l'écoulement dans le macrocanal a eu le temps de combler son déphasage. Pour β relativement élevé ($\beta = 1$), l'allure de la courbe avant la pression de transition P^* diffère des valeurs de $\beta < 1$. En effet, on ne crée plus de macrovide mais que du microvide (1^{er} cas) pour les faibles pressions. Ceci est dû au fait que sur une telle longueur de recouvrement, l'écoulement dans le macrocanal a complètement rattrapé son retard jusqu'à recouvrir le microcanal.

Pour $P^* > P_i$, seul du microvide est engendré et il ressort que le taux converge très vite vers une valeur maximale d'environ 0,2% ne dépendant que de α (Eq.V.68). Ceci signifie que l'écoulement dans le macrocanal est constamment en avance et engendre un recouvrement rapide du microcanal piégeant ainsi un volume de vide correspondant au volume total du microcanal.

Pour la Fig.V.26, la longueur de recouvrement est fixée à $L = 10$ mm et le paramètre variant ici est la longueur d'alimentation l .

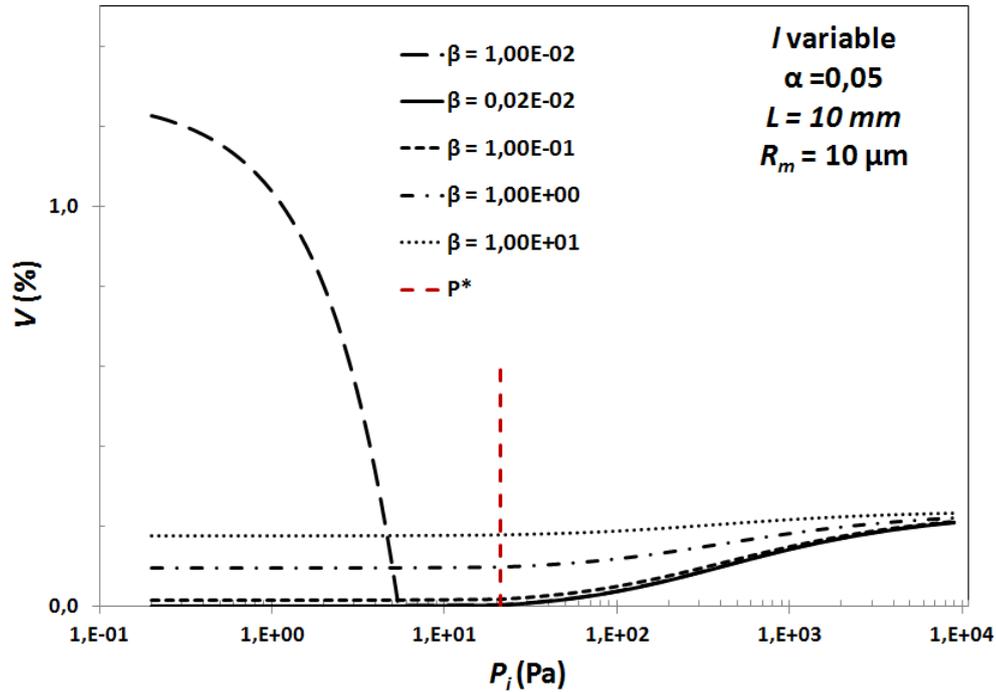


Fig.V. 26 : Représentation du taux volumique de vide en fonction de la pression imposée pour différentes valeurs de β , avec $L = 10$ mm, $R_m = 10$ μ m et $\alpha = 0,05$

La Fig.V.26 montre que, pour $P^* < P_i$, on a formation de macrovide pour $\beta = 1,0 \cdot 10^{-2}$, donc pour une importante longueur d'alimentation ($l = 1000$ mm), alors que pour $\beta = 2,0 \cdot 10^{-2}$ ($l = 500$ mm), on obtient du microvide. Il en résulte alors qu'il existe une longueur d'alimentation critique en dessous de laquelle l'écoulement dans le microcanal perd son avance engendrant ainsi du microvide. Quand $P_i \rightarrow 0$, le cas du régime spontané est retrouvé (Eq.V.33). Pour une pression donnée, le taux de vide diminue alors en fonction β avant d'augmenter et tendre vers une valeur limite qui ne dépend que de α . En effet, d'après l'Eq.V.33, quand $\beta \rightarrow \infty$,

$$V_m \rightarrow \alpha^2(1 - \sqrt{\alpha}) \quad \text{Eq.V. 69}$$

Pour $P^* > P_i$, les taux de microvide tendent vers la même valeur limite (Eq.V.68).

Finalement, il en ressort d'après modèle proposé que le taux de macrovide dépend aussi bien des rapports des longueurs (paramètre β) que des rayons des canaux alors que le taux de microvide dépend principalement des conduits.

V.4 Comparaison aux diagrammes de vide LCM

Les diagrammes de vide générés confirment les tendances en V obtenues dans le cadre des injections LCM. A titre comparatif, deux diagrammes sont représentés sur la Fig.V.27 : (a) le premier est obtenu par une étude expérimentale sur une préforme en UD de verre, (b) le deuxième est une approche basée sur le modèle de Darcy et une connectivité discrète (aux nœuds).

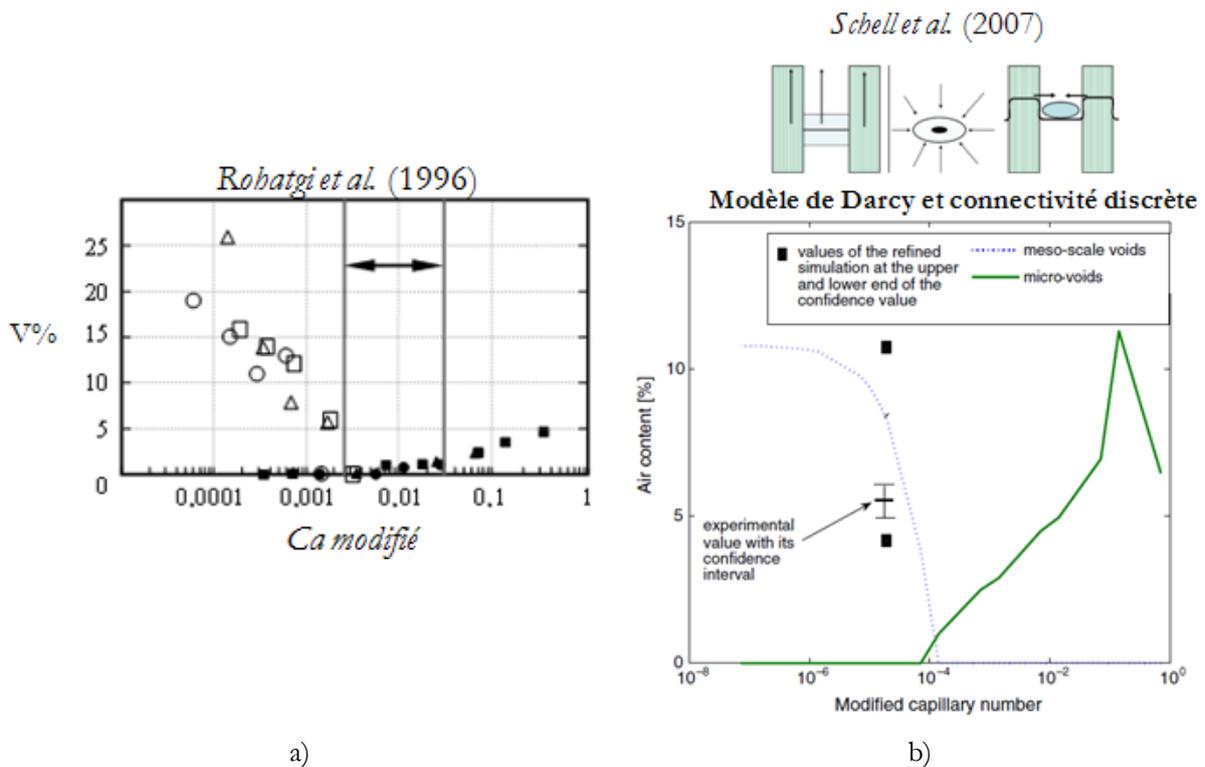


Fig.V. 27 : Diagrammes de vide LCM : a) (Rohatgi, Patel et James Lee 1996) et b) (Schell, et al. 2007)

Dans la littérature sur les diagrammes de vide des procédés LCM, le taux de vide est souvent lié à un nombre capillaire modifié relatif à une vitesse moyenne du front global du liquide et prenant en compte l'angle de contact entre la fibre et le liquide imprégnant. Cependant, les diagrammes de bulles générés grâce au modèle Washburn-Bico sont exprimés en fonction de la pression imposée dans le système. Pour une comparaison beaucoup plus concrète, une correspondance en Ca (débit imposé) reste donc à formuler.

V.5 Conclusion

La compétition entre écoulements au sein de deux pores interconnectés (alimentation et convergence) représentée par une cellule modèle a été discutée pour des régimes de remplissage spontané et à pression imposée. Le déphasage résultant est responsable de la création soit de macrovide soit de microvide. Le taux de vide obtenu dépend des paramètres géométriques tels que les longueurs d'alimentation et de recouvrement ainsi que les rayons micro et macro. Il varie aussi selon la pression imposée sauf quand celle-ci est trop élevée car le volume du microvide piégé correspondra au volume du microcanal.

Le modèle combiné associant la convergence en un nœud et l'interconnectivité permet maintenant d'envisager différentes analyses paramétriques selon des configurations géométriques et des régimes d'écoulement variés. Par exemple, nous pouvons considérer non plus un microcanal pour un macrocanal mais plusieurs microcanaux pour un macrocanal. Le vide total créé peut alors varier.

Sur cette base, il est possible de prendre en compte différents facteurs et de les comparer à certaines contributions de la littérature dans le domaine de l'imprégnation des milieux fibreux et de la mise en œuvre des composites, tels que : i) la compressibilité des vides (Lundström 1997), ii) les effets de compétition entre micro et macropores (Binetruy 1996) et iii) la dynamique d'imprégnation intégrant les effets capillaires aux conditions d'injection (Amico et Lekakou 2001), (Neacsu, Abu Obaid et Advani 2006-a), (Verrey 2006), (Gourichon et al 2008), (Lundström, Frishfelds et Jakovics 2010).

Conclusion générale et perspectives

Le travail effectué au cours de cette thèse était centré sur la formation de bulles lors des écoulements au sein de milieux fibreux à double-échelle de pores. Lors de la mise en œuvre des matériaux composites par procédés LCM, des bulles sont transportées depuis le point d'injection ou formées à l'intérieur de la résine soit chimiquement (dégagement de gaz lors de la phase de cuisson) soit physiquement à cause de phénomènes d'avance-retard dans les différents canaux d'écoulements. Dans le deuxième cas, le schéma classique proposé pour l'explication de la formation des bulles dans la préforme est basé sur la compétition entre les effets capillaires et les écoulements visqueux qui sont tous les deux différents dans les macropores et les micropores. Néanmoins, ce schéma classique n'est pas aisé à démontrer expérimentalement du fait de la difficulté d'observation des écoulements à l'intérieur d'une préforme fibreuse.

Notre approche a donc consisté à caractériser les phénomènes gouvernant l'imprégnation en adoptant des lois de remontée d'échelles dans des réseaux modèles et des milieux fibreux simplifiés.

Dans le cas pratique et à une échelle microscopique, les lois de mouillage peuvent être simplifiées par des approches macroscopiques basées sur des théories de raccord de ménisque permettant ainsi de décrire les phénomènes se passant d'une très faible échelle à une échelle plus grande. Ceci est intéressant du point de vue expérimental dans la mesure où l'étude des mécanismes d'imprégnation peut se faire à une échelle de l'ordre de ~ 1 mm au lieu d'une échelle de ~ 10 μm par exemple. Cependant, la prise en compte de cette transition d'échelle devrait être associée à une description précise des régimes gouvernant l'écoulement de liquide, ce que nous avons développé au chapitre II.

La dynamique de l'imprégnation à la fois en régime spontané et en régime forcé a été abordée par la suite. En régime spontané, deux approches sont présentées : cinétiques hydrodynamique et moléculaire. Il est montré, à partir de la dynamique de gouttes s'étalant sur un substrat lisse, que le mouillage peut être décrit suivant ces deux approches.

L'imprégnation capillaire spontanée de tubes est décrite par le modèle de Washburn. Des modifications prenant en compte les différents régimes gouvernant la dynamique de progression du liquide et intégrant les angles de contact dynamiques doivent être caractérisées afin de compléter ce modèle. Pour un régime forcé, les angles de contact dynamiques autour d'une fibre de verre sont mesurés en fonction de la vitesse imposée au liquide. Il s'avère que l'évolution des angles de contact dynamiques en fonction du nombre capillaire suit une loi de Tanner-de Gennes

modifiée prenant en compte l'angle de contact apparent à l'équilibre selon le modèle de Blake-Haynes.

Le modèle de Washburn considère le milieu poreux comme un ensemble de tubes capillaires droits et indépendants les uns des autres. Dans le cas d'une préforme fibreuse, l'agencement en fibres et en mèches permet de décrire ce milieu comme un milieu poreux hiérarchisé où les espacements entre mèches et entre fibres constituent respectivement les macropores et les micropores. Nous avons considéré un échantillon de pli d'UD de fibres de verre qui est un milieu fibreux simple. Dans un premier temps, les porosités ont été modélisées sur la base d'arrangements de fibres en réseaux triangulaire ou carré et des mèches de sections elliptiques séparées par des canaux rectangulaires. L'étude expérimentale de l'imprégnation capillaire d'un échantillon de pli d'UD montre que l'ascension est gouvernée par les micropores. En effet, le liquide va à la fois plus haut et plus vite à l'intérieur des mèches qu'à l'extérieur, contrairement au cas d'un tube capillaire simple pour lequel le modèle de Washburn prévoit une vitesse d'ascension inversement proportionnelle au diamètre du tube. Cela peut s'interpréter par l'interconnexion des pores à la fois entre micropores eux-mêmes et entre micropores et macropores.

Ce constat nous a donc amené à étudier l'ascension capillaire dans une mèche insérée dans un tube. Les valeurs expérimentales des rayons microscopiques équivalents déduits par la loi de Washburn sont comparées à ceux prévus par les arrangements modèles fibreux en réseaux réguliers et à un modèle basé sur une approche par granulométrie linéaire. Les résultats obtenus montrent une tendance similaire mais décalée de celle donnée par le libre parcours moyen microscopique. Il a été constaté visuellement que l'ascension capillaire dans une mèche insérée dans un tube n'est pas homogène et provoque l'apparition de bulles qui peuvent à leur tour influencer la progression du liquide et explique le décalage entre la caractérisation de la microporosité par granulométrie linéaire et celle déterminée par la méthode de Washburn.

Les mécanismes de formation et de transport de bulles lors de l'injection de résine dans une préforme fibreuse sont expliqués par la compétition entre les régimes d'écoulement dans les mèches et à l'extérieur des mèches. En pratique, il est difficile d'observer ces mécanismes et de les caractériser en fonction des paramètres d'injection décrits par les nombres adimensionnels. Nous avons choisi de simplifier cette compétition en réalisant l'étude dans un réseau en T modélisant deux pores convergents. La validation des lois d'échelle micro/macro dans le premier chapitre permet d'utiliser un rayon capillaire de l'ordre du mm tout en contrôlant les différents

régimes d'injection dans les tubes. Les mécanismes de création de bulles dans ce type de réseau sont abordés dans des études s'intéressant à la microfluidique. Cette approche est utilisée pour des applications telles que la microbiologie, la microchimie etc. L'avantage d'une analyse microfluidique est de pouvoir caractériser les régimes contrôlant la formation de bulles ou gouttes mono-dispersées dans des conduits modèles. Pour les matériaux composites, il est intéressant, dans un premier temps, d'identifier la cause de la formation d'une bulle localisée dans le matériau fini grâce à sa taille adimensionnée en transposant les observations et les validations établies en microfluidique.

Les résultats des expérimentations montrent qu'il est possible d'identifier les régimes responsables de la forme de bulle et sont en accord avec ce qui est observé dans les procédés LCM où des bulles longues sont obtenues pour un régime capillaire qui caractérise l'écoulement dans la mèche et des bulles de forme sphérique sont observées pour un régime de cisaillement visqueux qui peut avoir lieu dans les espacements inter-mèches.

Les diagrammes de forme et de taille de bulles obtenus montrent que les caractéristiques géométriques ne dépendent pas seulement des paramètres d'injection et la nature de mouillage entre les liquides et les surfaces solides employés. En effet, les caractéristiques des bulles sont contrôlables et plus régulières pour un liquide mouillant tandis que les lois empiriques gouvernant les tailles et les formes de ces bulles ne permettent pas de les décrire pour un mélange de glycérol-eau. Ce constat rend donc compte de l'importance des forces intermoléculaires et de la nature dispersive ou polaire qui caractérise l'adhésion entre le liquide et le solide.

Le transport des bulles formées dans le tube en T est ensuite étudié dans le chapitre IV. Dans un régime capillaire, la vitesse relative de la bulle dépend de l'épaisseur du film lubrifiant déposé sur la paroi du tube. Comme pour la taille et la forme des bulles l'approximation de lubrification dépend à la fois du régime gouvernant l'écoulement et du type des forces intermoléculaires responsables de l'adhésion.

La comparaison des résultats basés sur l'approximation de lubrification dans un simple réseau modèle et ceux proposés pour les injections LCM montre que la lubrification est une approche qui doit être considérée pour le transport de bulles dans une préforme. D'autres paramètres comme les sauts de pression locaux dus à l'arrangement complexe de la préforme sont aussi responsables du mécanisme de transport des bulles. Il est alors nécessaire de caractériser les régimes d'écoulement de la résine afin d'identifier, dans un premier temps, les paramètres gouvernant le transport puis d'en déterminer les expressions analytiques.

Les mécanismes de formation de bulles dans une préforme fibreuse peuvent être ramenés à une étude dans un réseau simple modélisant deux pores caractéristiques : microcanal et macrocanal. L'imprégnation dépend alors des conditions de remplissage liées aux dimensions des canaux et aux régimes décrivant l'écoulement dans chaque canal. On peut imaginer et discuter plusieurs configurations d'échange entre un microcanal et un macrocanal. Ces configurations présentées dans le dernier chapitre permettent de quantifier les lois d'écoulement dans différents régimes et d'estimer le taux de bulles piégées dans les deux canaux. La discussion sur le piégeage de bulles dans de telles configurations d'interconnexion et de recouvrement peuvent être projetées sur la façon de concevoir et d'agencer les fibres dans une préforme (matériau sur-mesure).

Dans le cas d'une injection LCM, la caractérisation des paramètres géométriques moyennés de la préforme fibreuse sont souvent déterminés par voie expérimentale et de plus récemment par des approches numériques. La caractérisation reste donc subjective dans la mesure où elle dépend des pentes expérimentales déduites des valeurs obtenues pour l'évolution de la position du front dans la préforme en fonction du temps (approche en régime transitoire). Les questions qu'on pourrait se poser sont : quels sont les points expérimentaux qu'il faut prendre en considération pour déterminer la pente ? Faut-il tracer cette pente pour des temps d'écoulement très courts ou relativement élevés ?

Pour répondre à ces deux questions, les études menées dans de simples réseaux modèles montrent que les régimes transitoires qui se passent aux temps courts peuvent perturber cette pente et de même pour des temps relativement longs où la pression imposée par exemple devient importante. Ceci peut donner lieu à une grande dispersion sur la mesure de la perméabilité d'une préforme fibreuse. Il est alors important d'introduire une notion de temps caractéristiques délimitant les différents régimes dans lesquels les lois gouvernant l'écoulement sont différentes. Une estimation de ces temps caractéristiques permet de minimiser les dispersions sur la valeur expérimentale de la perméabilité en complément de la prise en compte de la variabilité géométrique de la microstructure.

En général, les mécanismes d'imprégnation d'une préforme fibreuse pour matériau composite sont décrits par un ensemble de phénomènes physiques et chimiques parfois complexes et difficiles à quantifier. Cette complexité est due en grande partie à l'architecture à double échelle de pores sous laquelle se présente la préforme ainsi que la nature et de la fonctionnalisation des fibres et des matrices (ensimage etc). Le schéma classique proposé pour caractériser ces

mécanismes est basé d'une part sur leur étude dans des réseaux modèles où il est plus facile de quantifier les lois d'écoulement dans les différents régimes et d'autre part d'une transposition à l'échelle d'une préforme. Ce schéma n'est pas si simple qu'il en a l'air dans la mesure où les systèmes et les phénomènes les plus simples (étalement d'une goutte sur un substrat, relaxation de ménisque autour d'une fibre, progression capillaire dans un tube...) sont les plus durs à décrire.

Une étude basée sur une modélisation simplifiée de l'écoulement spontané ou forcé dans deux pores avec des hypothèses d'alimentation et de recouvrement permet en première approche de quantifier un taux de vide en fonction des paramètres géométriques (longueurs, rayons) et/ou d'injection (pression imposée). Cette analyse peut être optimisée en prenant en compte la compressibilité du gaz et en intégrant les conditions d'injection à débit imposé et les effets transitoires d'angle de contact. Les effets viscoélastiques pour des liquides plus complexes peuvent être pris en compte pour compléter l'étude. Par exemple, la rhéologie complexe des polymères peut influencer les écoulements. De plus, la viscosité élongationnelle serait à prendre en compte pour des composites à matrice thermoplastique lors de leur injection dans des réseaux fibreux.

Références bibliographiques

- Ablett, R. *Phil. Mag.*, 46, 1923: 244.
- Adamson, W.A. *Physical and Chemistry of Surfaces*. New York: Wiley-Interscience publication, 1990.
- Albérola, N.D., G. Merle, et K. Benzarti. «Unidirectional fibre-reinforced polymers: analytical morphology approach and mechanical modelling based on the percolation concept.» *Polymer*, 40, 1999: 315-328.
- Amico, S., et C. Lekakou. *Composites Science and Technology*, 61, 2001: 1945-1959.
- Amico, S., et C. Lekakou. «Mathematical modelling of capillary micr-flow through woven fabrics.» *Composites: Part A*, 31, 2000: 1331-1344.
- Anna, S L, N Bontoux, et H A Stone. «Formation of dispersions using "flow focusing" in microchannels.» *Applied Physics Letters* 82, 2003: 364-366.
- «Annual Book of ASTM Standars.» 2000: 1-18.
- Aussillous, P., et D. Quéré. «Quick deposition of a fluid on the wall of a tube.» *Physics of Fluids* 12, 10, 2000: 2367-2371.
- Backes, D.J. «Thèse de doctorat.» *mich. State. Univ.*, 1997.
- Baroud, C N, et H Willaime. «Multiphase flows in microfluidics.» *C.R. Physique* 5, 2004: 547-555.
- Baroud, C.N., F. Gallaire, et R. Dangla. «Dynamics of microfluidic droplets.» *Lab Chip*, 10, 2010: 2032-2045.
- Batra, S.K. *Other long vegetable fibers in Handbook of fiber chemistry*. New York: Marcel Dekker, 1998.
- Bear, J. *Dynamics of fluids in porous media*. New York: Dover Publications, 1972.
- Ben Abdelwahed, M.A., L. Bizet, et J. Bréard. «Génération d'un train de bulles par écoulement dans deux tubes capillaires convergents.» *19ème Congrès Français de Mécanique*. Marseille: AFM, 2009.
- Ben Abdelwahed, M.A., Y. Wielhorski, L. Bizet, et J. Bréard. «Characterisation of bubbles formed in a cylindrical T-shaped junction device.» *Chemical Engineering Science*, 76, 2012: 206-215.
- . «Modelling formation and transport of bubbles in convergent pores by experiments in a T-junction.» *3rd International Conference on Porous Media (Interpore)*. Bordeaux, 2011. Poster.
- Bhatia, Q. S., J. K. Chen, J. T. Koberstein, J. E. Sohn, et J. A. Emerson. «The Measurement of Polymer Surface Tension by Drop Image Processing: Application to PDMS and Comparison with Theory.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 106 (2), 1985: 353-359.
- Bico, J, U Thiele, et D. Quéré. «Wetting of textured surfaces.» *Colloids and Surfaces Part A: Physicochemical and Engineering Aspects* 206, 2002: 41-46.
- Bico, J. *Mécanismes d'imprégnation : Surfaces texturées, Bigouttes, Poreux*. Thèse de doctorat, Université de Paris 6, 2000.
- Bico, J., C. Marzolin, et D. Quéré. «Pearl drops.» *Europhys. Lett.* 47, 1999: 220-226.

- Bico, J., et D. Quéré. «Rise of liquids and bubbles in angular capillary tubes.» *Journal of Colloid and Interface Science* 247, 2002: 162-166.
- Binetruy, C. «Calcul et validation expérimentale de la perméabilité et prévision de l'imprégnation de tissus en moulage RTM.» Thèse de doctorat de l'Université ST de Lille, 1996.
- Bizet, L. Thèse de doctorat de l'Université du Havre, Le Havre, 2004.
- Bizet, L., J. Bréard, G. Bouquet, J.P. Jernot, et M. Gomina. «Serial sections through a continuous fiber-reinforced polymer composite.» *Image Anal Stereol*, 23, 2004: 167-176.
- Blake, T.D. *Dynamic contact angle and wetting kinetics*. New York: Berg JC, Wettability, Marcel Dekker, 1993.
- Blake, T.D., A. Clarke, J. De Conink, et M. de Ruijter. «Contact angle relaxation during droplet spreading: comparison between molecular kinetic theory and molecular dynamics.» *Langmuir*, 13, 1997: 2164-2166.
- Blake, T.D., et J.M. Haynes. «Kinetics of liquid/liquid displacement.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 30, 1969: 421-423.
- Bosanquet, C.H. *Philos. Mag. Ser.*, 6 44, 1923: 525-531.
- Bréard, J., A. Saouab, et G. Bouquet. «Numerical simulation of void formation in LCM.» *Composites: Part A*, 34, 2003-c: 517-523.
- Bréard, J., Y. Henzel, F. Trochu, et R. Gauvin. «Analysis of Dynamic Flows Through Porous Media. Part I: Comparison Between Saturated and Unsaturated Flows in Fibrous Reinforcements.» *Polymer Composites*, 24, 3, 2003-a: 391-407.
- Bréard, J., Y. Henzel, F. Trochu, et R. Gauvin. «Analysis of Dynamic flows Through Porous Media. Part II: Deformation of a Double-Scale Fibrous Reinforcement.» *Polymer Composites*, 24, 2003-b: 409-421.
- Bretherton, F.P. «The motion of long bubbles in tubes.» *J. Fluid Mech.* 10, 1961: 166-188.
- Cassie, A.B.D, et Baxter. *S. Trans. Faraday. Soc.* 40, 1944: 546.
- Cazabat, A.M., S. Gerdes, M.P. Valignat, et S. Villette. «Dynamics of wetting: from theory to experiment.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 5, 1997: 129-139.
- Christopher, G F, N N Noharuddin, J A Taylor, et S L Anna. «Experimental observations of the squeezing-to-dripping transition in T-sharped microfluidic junctions.» *Physical Review E* 78, 2008: 036317.
- Clarke, A., et C. Eberhardt. «The representation of reinforcing fibres in composites as 3D space curves.» *Composites Science and Technology*, 59, 1999: 1227-1237.
- Coster, M., et J.L. Chermant. «Précis d'analyse d'images.» *Presse du CNRS*, 1989.
- Cox, B.G. «On driving a viscous fluid out of a tube.» *Journal of Fluid Mechanics*, 14, 1962: 81-96.

- de Gennes, P.G. «Wetting : statics and dynamics.» *Rev. Mod. Phys.* 57, 1985: 827-863.
- de Gennes, Pierre-Gilles, Françoise Brochard-Wyart, et David Quéré. *Gouttes, bulles, perles et ondes*. Paris: Editions Belin, 2005.
- de Menech, M, P Garstecki, F Jousse, et H A Stone. «Transition from squeezing to dripping in a microfluidic T-sharped junction.» *Journal of Fluid Mechanics* 595, 2008: 141-161.
- de Ruijter, M.J., J. De Coninck, et G. Oshanin. «Droplet spreading: partial wetting regime revisited.» *Langmuir*, 15, 1999: 2209-2216.
- de Ruijter, M.J., J. De Coninck, T.D. Blake, A. Clarke, et A. Rankin. «Contact angle relaxation during the spreading of partially wetting drops.» *Langmuir*, 13, 1997: 7293-7298.
- Derjaguin, B.V. *Acta Physicochim.* 349. USSR, 20, 1943.
- DeRoeth, G. E. *Thèse de doctorat*. Massachusetts: Massachusetts Institute of Technology, 1948.
- Dettre, R.H, et R.E Johnson. «Contact angle.» *Wettability and Adhesion Adv. Chem. Ser.* 43 (Wettability and Adhesion Adv. Chem. Ser) 43, n° 136 (1964): 136.
- Dodge, F.T. «The spreading of liquid droplets on solid surfaces.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 1988: 121-155.
- Dong, M., et I Chatzis. «The imbibition and flow of a wetting liquid along the corners of square capillary tube.» *Journal of Colloid and Interface Science.* 172, 1995: 278-288.
- Dreyfus, R, P Tabeling, et H. Willaime. «Ordered and Disordered Patterns in Two-Phase Flows in Microchannels.» *Physical Review Letters* 90, 2003: 1-4.
- Dubouloz-Monnet, F., P. Mélé, et N.D. Albérola. «Glass fibre aggregates: consequences on the dynamic mechanical properties of polypropylene matrix composites.» *Composites Science and Technology*, 65, 2005: 437-443.
- Dullien, F.A.L., M.S. El-Sayed, et V.K. Batta. «Rate of Capillary Rise in Porous Media with Nonuniform Pores.» *Journal of Colloid and Interface Science.* 60, 1977: 497-506.
- Eberhardt, C., et A. Clarke. «Fibre-orientation measurements in short-glass-fibre composites. Part I: automated, high angular-resolution measurement by confocal microscopy.» *Composites Science and Technology*, 61, 2001: 1389-1400.
- Eötvös, L. *Ann. Physik*, 27, 1886: 448.
- Fairbrother, F., et A.E. Stubbs. «Studies in electro-endosmosis - VI. The "bubble tube" method of measurement .» *Journal of the Chemical Society*, 18, 1935: 237-261.
- Frenkel, J.I. *Kinetic Theory of Liquids*. Oxford: Oxford University Press, 1946.
- Fries, N., et M. Dreyer. «The transition from inertial to viscous flow in capillary rise.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 327, 2008: 125-128.

- Fu, T, Y Ma, D Funfschilling, C Zhu, et H Z Li. «Squeezing-to-dripping transition for bubble formation in a microfluidic T-junction.» *Chemical Engineering Science* 65, 2010: 3739-3748.
- Gañán-Calvo, A.M, et J.M. Gordillo. «Perfectly Monodisperse Microbubbling by Capillary Flow Focusing.» *Physical Review Letters* 87, 2001: 274501.
- Garstecki, P, M J Fuerstman, et H A and Whitesides, G M Stone. «Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T junction-scaling and mechanism of break-up.» *The Royal Society of Chemistry* 6, 2006: 437-446.
- Garstecki, P., I. Gitlin, W. DiLuzio, G.M. Whitesides, E. Kumacheva, et H.A. Stone. «Formation of monodisperse bubbles in a microfluidic flow-focusing device.» *Applied Physics Letters* 85, 2004: 164501.
- Gebart, B.R. «Permeability of unidirectional reinforcements for RTM.» *Journal of Composite Materials*, 26, 1992: 1100-1133.
- Gillespie, T. *Journal of Colloid Interfaces Science*, 13., 1958: 32-50.
- Glasstone, S., K.J. Laidler, et H.J. Eyring. *The Theory of Rate Processes*. New York: McGraw-Hill, 1941.
- Good, R.J., et C.J. van Oss. «The Modern Theory of Contact Angles and the Hydrogen Bond Components of Surface Energies.» in *Modern Approaches to Wettability*, Schrader, M.E.; Loeb, G.I., Eds. *Olenum Press, New York*, 1992: 1-27.
- Gourichon, B., M. Deléglise, C. Binétruy, et P. Krawczak. «Dynamic void content prediction during radial injection in liquid composite molding.» *Composites: Part A*, 39, 2008: 46-55.
- Guillot, P., A. Colin, A.S. Utada, et A. Adjari. «Stability of a jet in Confined Pressure-Driven Biphasic Flows at Low Reynolds Numbers.» *Physical Review Letters* 99, 2007: 104502.
- Guillot, P., et A. Colin. «Stability of parallel flows in microchannel after a T-junction.» *Physical Review E* 72, 2005.
- Han, Y., et N. Shikazono. «Measurement of the liquid thickness in micro tube slug flow.» *International Journal of Heat of Fluid Flow*, 35, 2009: 842-853.
- Hoffman, R.L. «A study of the advancing interface : I. Interface shape in liquid-gas systems.» *Journal of Colloid and Interface Science* 50, 1975: 228-241.
- Huh, C., et L.E. Scriven. «Shapes of axisymmetric fluid interfaces of unbounded extent.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 30, 1969: 323-337.
- Idel'cik, I.E. *Mémento des pertes de charge*. Editions Eyrolles, 1986.
- Kang, K., et K. Koelling. «Void Transport in Resin Transfer Molding.» *Polymer Composites*, 25, 2004: 417-432.

- Kang, K.M., W.I. Lee, et H.T. Hahn. «Formation of microvoids during resin transfer molding process.» *Composites Science and Technology*, 60., 2000: 2427-2434.
- Keh, H.J., et S.C. Shiau. «Effects of inertia on the slow motion of aerosol particles.» *Chemical Engineering Science*, 55, 2000: 4415-4421.
- Klausner, J.F., R. Mei, M.D. Bernhard, et L.Z. Zeng. «Vapor bubble detachment in forced convection boiling.» *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 36., 1993: 651-662.
- Kreutzer, M.T., F. Kapteijn, J.A. Moulijn, et J.J. Heiszwolf. «Multiphase monolith reactors: Chemical reaction engineering of segmented flow in microchannels.» *Chemical Engineering Science*, 60, 2005: 5895-5916.
- Labat, L., J. Bréard, S. Pillut-Lesavre, et G. Bouquet. «Void fraction prevision in LCM parts.» *The European Physical Journal : Applied Physics*, 16, 2001: 157-164.
- Labat, L., M. Grisel, J. Bréard, et G. Bouquet. «Original use of electrical conductivity for voids detection during injection of composite materials.» *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences Série IIB-Mécanique*; 329, 7, 2001: 529-534.
- Landau, L.D., et B. Levich. «Draging of a liquid by a moving plate.» *Acta. Physicochem. USSR* 17, 1942: 42-54.
- Laplace, P.S. *Mécanique céleste*. 1806.
- Le Grand, D. G., et G.L. Gaines. *J. Colloid Interface Sci.* 31, 1969: 162.
- Leclerc, J.S., et E. Ruiz. «Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding.» *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 39 (12), 2008: 1859-1868.
- Lee, D.H., W.I. Lee, et M.K. Kang. «Analysis and minimization of void formation during resin transfer molding process.» *Composites Science and Technology*, 66, 2006: 3281-3289.
- Leidenfrost, J.G. *De aquae communis nonnullis qualitibus tractus*. Duisburg, 1750.
- «Lexicographie.» CNRTL. CNRS Atilf. <http://www.cnrtl.fr/definition/imprégnation> (accès le mai 15, 2010).
- Lundström, S. T., V. Frishfelds, et A. Jakovics. «Bubble formation and motion in non-crimp fabrics with perturbed bundle geometry.» *Composites: Part A*, 41, 2010: 83-92.
- Lundstrom, T.S. «Measurement of void collapse during resin transfer moulding.» *Composites: Part A*, 28A, 1997: 201-214.
- Lundström, T.S. «The permeability of non-crimped stitched fabrics.» *Composite Part A*, 31, 2000: 1345-1353.
- Marangoni, C. G. M. *Ann. Phys.* 143, 1871: 377.
- Marchessault, R.N., et S.G. Mason. «Flow of entrapped bubbles through a capillary.» *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 52, 1960: 79-84.

-
- Michaud, V., et A. Mortensen. «On measuring wettability in infiltration processing.» *Scripta Materialia*, 56, 2007: 859-862.
- Moreira, J.C., et N.R. Demarquette. «Influence of Temperature, Molecular Weight and Molecular Weight Dispersity on The Surface Tension of PS, PP and PEI Experimental.» *J. App. Polym. Sci.*, 82 (8), 2001: 1907-1920.
- Mortensen, A. «Infiltration of fibrous preforms by a pure metal: part III. Capillary phenomena.» *Metall. Trans. A*, 21A, 1990: 2257-2263.
- Neacsu, V., A. Abu Obaid, et S.G. Advani. *International Journal of Multiphase Flow*, 32, 2006-a: 661-676.
- Neacsu, V., A. Abu Obaid, et S.G. Advani. «Spontaneous radial capillary impregnation across a bank of aligned micr-cylinders. Part II: Experimental investigations.» *International Journal of Multiphase Flow*, 32, 2006-b: 677-691.
- Odenberger, P.T., H.M. Andersson, et T.S. Lundstrom. «Experimental flow-front visualisation in compression moulding of SMC.» *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 35 (10), 2004: 1125-1134.
- Oliver, D.L.R., et J.N. Chung. «Flow about a fluid sphere at low to moderate Reynolds numbers.» *J. Fluid Mech.*, 177, 1987: 1-18.
- Owens, D.K., et R.C. Wendt. «Estimation of the surface free energy of polymers.» *J. Appl. Polymer Science*, 13, 1969: 1741-1747.
- Panfilova, I. «Ecoulements diphasiques en milieux poreux : Modèle de ménisque.» Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, 2003.
- Patel, N., et L. James Lee. «Effects of Fiber Mat Architecture on Void Formation and Removal in Liquid Composite Molding.» *Polymer Composites*, 16, 1995: 386-399.
- Pearce, N.L., F.J. Guild, et J. Summerscales. «An investigation into the effects of fabric architecture on the processing and properties of fibre reinforced composites produced by resin transfer moulding.» *Composites: Part A*, 29A, 1998-b: 19-27.
- Pearce, N.R.L., F.J. Guild, et S. Summerscales. «The use of automated analysis for the investigation of fabric architecture on the processing and properties of fibre-reinforced composites produced by RTM.» *Composites: Part A*, 29A, 1998-a: 829-837.
- Pezron, I., G. Bourgain, et D. Quéré. «Imbibition of Fabric.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 173, 1995: 319-327.
- Philipps, M.C., et A.C. Riddiford. «Dynamic contact angles II velocity and relaxation effects for various liquids.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 41, 1972.
-

- Pitchumani, R., et B. Ramakrishnan. «A fractal geometry model for evaluating permeabilities of porous preforms used in liquid composite molding.» *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 42, 1999: 2219-2232.
- Poser, C. I., et I. C. Sanchez. «Surface Tension Theory of Pure Liquids and Polymer Melts.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 69 (3), 1979: 539-548.
- Quéré, D. «Inertial capillarity.» *Europhys. Lett.* 39, 1997: 533-538.
- Quéré, D., et J.M. Di Meglio. «The meniscus on fibre.» *Advances in Colloid and Interface Science*, 48, 1994: 141-150.
- Ramsay, W., et L. Shields. *J. Chem. Soc., A* 184, 1893: 647.
- Rhodia. *Information technique Rhodorsilbuiles 47V*. octobre 1993.
- Rieber, G., O. Wirjadi, et P. Mitschang. «Correlation of permeability values with flow channel diameters determined by 3D-image analysis of a woven textile.» *10th Conference on Flow Processes in Composite Materials FPCM10*. Ascona, Switzerland July 11-15, 2010.
- Rohatgi, N., N. Patel, et L. James Lee. «Experimental Investigation of Flow-Induced Microvoids During Impregnation of Unidirectional Stitched Fiberglass Mat.» *Polymer Composites*, 17, 1996: 161-170.
- Rose, W., et R.W. Heins. *Journal of Colloid and Interface Science*, 17, 1962: 39.
- Samet, N., M.A Ben Abdelwahed, P. Maréchal, Y. Wielhorski, et L. Bizet. «Détection de bulles en mouvement dans un milieu fibreux par méthode ultrasonore.» *20ème Congrès Français de Mécanique*. Besançon, France, 2011.
- Samet, N., P. Maréchal, et H. Duflo. «Ultrasound monitoring of bubble motion in a fluid model.» *Proc. First EAA-Euroregio Congress of Sound and Vibration*. Ljubljana, Slovénie, 2010.
- Sauer, B.B., et W.G. Kampert. «Influence of viscosity on forced and spontaneous spreading: Wilhelmy fiber studies including practical methods for rapid viscosity measurement.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 199, 1998: 28-37.
- Schell, J.S.U., M. Deleglise, C. Binetruy, P. Krawczak, et P. Ermanni. «Numerical prediction and experimental characterisation of meso-scale-voids in liquid composite moulding.» *Composite Part A: Applied Science and Manufacturing*, 38, 2007: 2460-2470.
- Schwartz, L.W., H.M. Princen, et A.D. Kiss. «On the motion of bubbles in capillary tubes.» *Journal of Fluid Mechanics*, 172, 1986: 259-275.
- Schwartz, M.A, et S.B. Tejada. «Studies of dynamic contact angles on solids.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 38, 1972.
- Seveno, D., et J. De Coninck. «Possibility of different time scales in the capillary rise around a fiber.» *Langmuir*, 20, 2004: 737-742.

- Sharma, R., et D.S. Ross. «Kinetics of Liquid : Penetration into Periodically Constricted Capillaries.» *J. Chem. Soc. Faraday Trans. 87*, 1991: 619-624.
- Shikhmurzaev, Y.D. «Spreading of drops on solid surfaces in a quasi-static regime.» *Physics of Fluids*, 9, 1997: 266-276.
- Shneider, M., K. Edelmann, et U. Tiltmann. «Quality analysis of reinforcement structures for composites by digital image processing.» *Proceedings of the 25th Jubilee international SAMPE Europe Conference*. Paris, 2004. 267-272.
- Sorbie, K.S. ., Y.Z Wu, et S.R. McDougall. *Journal of Colloid and Interfaces Science*. 30, 1994: 3275.
- Stokes, G.G. *Mathematical and physical papers*, 1. London: Cambridge University Press, 1890.
- Szekeley, J., J. Neumann, et A.W. Chuang. «The rate of capillary penetration and the applicability of the Washburn equation.» *Journal of Colloid Interfaces Science*. 35, 1971: 273-278.
- Tanner, L.H. «The spreading of silicone oil drops on horizontal surfaces.» *J. Phys. D : Appl. Phys.* 12, 1979: 1473-1484.
- Taylor, G. I. «Deposition of a viscous fluid on the wall of a tube.» *Journal of Fluid Mechanics*, 10, 1961: 161-165.
- Testouri, A., C. Honorez, A. Barillec, D. Langevin, et W. Drenckhan. «Highly structured foams from chitosan gels.» *Macromolecules* 43, 2010: 6166-6173.
- Thomas, M., N. Boyard, L. Perez, Y. Jarny, et D. Delaunay. «Representative volume element of anisotropic unidirectional carbon-epoxy composite with high fibre volume fraction.» *Composites Science and Technology*, 68, 2008: 3184-3192.
- Thomcroft, G.E., J.F Klausner, et R. Mei. «Bubble forces and detachment models.» *Multiphase Science Technology*, 13., 2001: 35-76.
- Thorsen, T, Roberts R.W., Arnold F.H., et Quake S.R. «Dynamic Pattern Formation in a Vesicle-Generating Microfluidic Device.» *Physical Review Letters* 86, 2001: 4163-4166.
- Thulasidas, T.C., M.A. Abraham, et R.L. Cerro. «Bubble-train flow in capillaries of circular and square cross section.» *Chemical Engineering Science*, 50, 2, 1995: 183-199.
- Utada, A.S., A. Fernandez-Nieves, H.A. Stone, et D.A. Weitz. «Dripping to Jetting Transitions in Coflowing Liquid Streams.» *Physical Review Letters* 99, 2007: 094502.
- van Steijn, V., C.R. Kleijn, et M.T. Kreutzer. «Predictive model for the size of bubbles and droplets created in microfluidic T-junctions.» *Lab Chip*, 10, 2010: 2513-2518.
- Verrey, J. *Resin Transfer Molding of complex shaped composites using carbon fibre non-crimp fabrics*. Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, 2004.
- Verrey, J., V. Michaud, et J.-A.E. Manson. «Dynamic capillary effects in liquid composite moulding with non-crimp fabrics.» *Composites: Part A*, 37, 2006: 92-102.

-
- Voinov, O.V. «Hydrodynamics of wetting.» *Fluid Dyn*, 11, 1976: 714-721.
- Washburn, E.W. «The Dynamics of Capillary Flow.» *Phys. Rev.* 17, 1921: 273-283.
- Wenzel, R.N. «Resistance of solid surfaces to wetting by water.» *Ind. Eng. Chem.* 28, 1936: 988-994.
- White, L.R. «Capillary rise in Powders.» *Journal of Colloid and Interface Science.* 90, 1982: 536-538.
- Wu, S. *J. Macromol. Sci. C* 10, 1974: 1.
- Wu, S. *J. Adhesion*, 5, 1973: 39-55.
- Xu, J H, S W Li, J Tan, et G S Luo. «Correlation of droplet formation in T-junction microfluidic devices: from squeezing to dripping» *Microfluidics and Nanofluidics* 5, 2008: 711-717.
- Xu, J.H., S.W. Li, G.G. Chen, et G.S. Luo. «Formation of monodisperse microbubbles in a microfluidic device.» *AIChE Journal* 52, 2006: 2254-2259.
- Xu, S., et al. «Generation of monodisperse particles by using microfluidics: control over size, shape and composition.» *Angewandte Chemie* 117, 2005: 734-738.
- Young, T. «An Essay on the Cohesion of Fluids.» *Philos. Trans. Rev. Soc. Lond* 95, 1805: 65-87.
- Yu, B., L.J. Lee, et H. Cao. «A fractal in-plane permeability model for fabrics.» *Polymer Composites*, 23, 2002: 201-221.
- Zhao, C.X., et A.P.J. Middelberg. «Two phase microfluidic flows.» *Chemical Engineering Science*, 66, 2011: 1394-1411.
- Zhmud, B.V., F. Tiberg, et K. Hallstenson. «Dynamics of Capillary Rise.» *Journal of Colloid and Interface Science*, 228, 2000: 263-269.
- Zingraff, L., V. Michaud, P.-E. Bourban, et J.-A.E. Manson. «Resin transfer moulding of anionically polymerised polyamide 12.» *Composites: Part A*, 36, 2005: 1675-1686.
- Zisman, W. «in contact angle wettability and adhesion.» *Chemical series*, 43, 1964.

Annexes

Annexe 1 : calcul des incertitudes

Estimation des incertitudes sur la mesure de la tension de surface

La mesure de la tension de surface d'un liquide modèle par la méthode de Wilhelmy :

$$\gamma_L = \frac{mg}{p}$$

avec γ_L , la tension de surface du liquide [N.m^{-1}] ; m , la masse du ménisque de liquide [kg] ; g , l'accélération de la pesanteur [N.kg^{-1}] et p , le périmètre de contact entre la lame de platine et le liquide [m]. L'incertitude de mesure de la tension de surface est donnée par :

$$\frac{\Delta\gamma_L}{\gamma_L} = \frac{\Delta m}{m} + \frac{\Delta g}{g} + \frac{\Delta p}{p}$$

Pour les liquides modèles utilisés, les incertitudes de mesure des tensions de surface sont données dans le tableau suivant :

Liquides	γ_L [mN.m^{-1}]	$\Delta\gamma_L/\gamma_L$ [%]
Huile silicone 47V20	20,64	0,97
Huile silicone 47V100	20,75	0,96
Huile silicone 47V1000	20,92	0,95
Glycérol 98%	63,64	0,31
Mélange Glycérol 85%-eau 15%	49,84	0,40
Ethylène glycol	48,73	0,41
Formamide	58,49	0,34
Eau	72,30	0,27
n-heptane	19,91	1,00

Incertitudes sur la mesure de la tension de surface.

Estimation des incertitudes sur la mesure du rayon moyen de la fibre

Le rayon moyen b de la fibre déduit à partir de la pesée de Wilhelmy avec un liquide parfaitement mouillant (n-heptane ici) :

$$2b = \frac{F}{\pi\gamma_L} = \frac{mg}{\pi\gamma_L}$$

soit :

$$\frac{\Delta b}{b} = \frac{\Delta m}{m} + \frac{\Delta g}{g} + \frac{\Delta \gamma_L}{\gamma_L}$$

Pour les fibres utilisées, les incertitudes de mesure des diamètres moyens sont données dans le tableau suivant :

Fibres	N°	2b par pesée au K100 SF (µm)	Δb/b [%]
Verre Roving	Fibre 1	20,7	4,8
	Fibre 2	20,7	4,8
	Fibre 3	19,8	5,0
Verre UD	Fibre 1	17,7	4,5
	Fibre 2	20,9	4,8
	Fibre 3	22,6	5,3
Lin	Fibre 1	19,6	5,1
	Fibre 2	19,3	5,2
	Fibre 3	18,4	5,4

Incertitudes sur la mesure du diamètre moyen de la fibre.

Estimation des incertitudes sur la porosité de la mèche

La porosité de la mèche est donnée par :

$$\varepsilon_{micro} = 1 - \frac{m_{mèche}}{\pi R_c^2 L_{mèche} \rho_{fibre}}$$

L'incertitude sur la porosité est obtenue par :

$$\frac{\Delta \varepsilon_{micro}}{\varepsilon_{micro}} = \frac{\Delta m_{mèche}}{m_{mèche}} + \frac{\Delta L_{mèche}}{L_{mèche}}$$

ϵ_{micro}	$m_{mèche} \pm 0,005$ [g]	$L_{mèche} \pm 1$ [mm]	$\Delta\epsilon_{micro}/\epsilon_{micro}$ [%]
0,42	5,95	35,00	5,88
0,47	5,40	35,00	5,90
0,48	5,32	35,00	5,90
0,56	4,50	35,00	5,94
0,61	3,98	35,00	5,96
0,63	3,80	35,00	5,98

Incertitudes sur la mesure de la porosité de la mèche.

Estimation de l'erreur sur la mesure de la longueur de la bulle

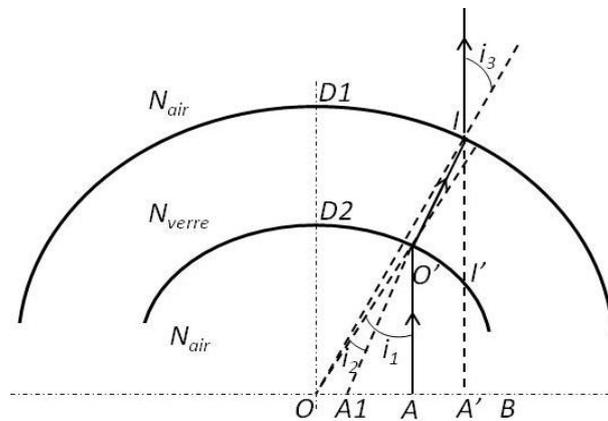
L'erreur sur la valeur de la longueur expérimentale de la bulle est de ± 1 pixel. La longueur de la bulle est déterminée à partir de la distance séparant son front avant et son front arrière avec 1 pixel équivalent à 0,05 mm soit $\Delta L = \Delta x_{avant} + \Delta x_{arrière} = \pm 0,1$ mm.

Annexe 2 : corrections optiques

Chaque fois que la lumière change de milieu, elle subit une déviation de sa direction originale. La différence entre les indices de réfraction (N) de chaque milieu traversé donne un changement de la forme et de la taille de l'objet. Considérons dans un premier temps deux milieux : le vide (air) et le verre avec des indices de réfraction respectifs $N_{air} = 1$ et $N_{verre} = 1,5$.

Calcul de l'image du diamètre intérieur du tube capillaire

Méthode de conjugaison



Réfraction du rayon incident.

Soit :

- N_{air} et N_{verre} , respectivement les indices de réfraction de l'air et du verre avec $N_{air} = 1$ et $N_{verre} = 1,5$.
- $D_e/2$, le rayon extérieur du tube avec $D_e/2 = 3.05 \text{ mm} = IO$, la distance entre le centre du tube O et le point d'incidence I
- $D_r/2$, le rayon intérieur du tube avec $D_r/2 = 1 \text{ mm} = OA$, distance entre le centre O du tube et un point A sur la paroi interne du tube
- i_2 et i_1 , respectivement l'angle incident et l'angle de réfraction de la lumière
- $D_a/2$, le rayon apparent avec $D_a/2 = OA' = OA + AA'$
- La distance $D1D2 = D_e/2 - D_r/2$

Dans le cas d'une lentille épaisse convergente et en considérant D1 le point d'intersection de la face d'entrée avec l'axe optique, les conditions de Gauss :

$$\frac{N_{verre}}{D1A1} - \frac{1}{D1A} = 2 \frac{(N_{verre} - 1)}{D_e}$$

Avec A1 l'image de A par le dioptre constitué par la face d'entrée.

$$D1A = \sqrt{OA^2 + OD1^2} = 3,21 \text{ mm}$$

d'où :

$$D1A1 = 3,15 \text{ mm}$$

En posant D2 le point d'intersection de la face de sortie avec l'axe optique, la relation de Gauss donne :

$$\frac{1}{D2A'} - \frac{N_{verre}}{D2A1} = 2 \frac{(1 - N_{verre})}{D_r}$$

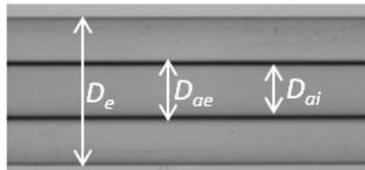
avec A', l'image de A1 par le dioptre constitué par la face de sortie.

$$OA1 = \sqrt{D1A1^2 - OD1^2} = 0,81 \text{ mm}$$

$$D2A1 = \sqrt{OD2^2 + OA1^2} = 1,28 \text{ mm}$$

soit :

$$D2A' = 1,49 \text{ mm}$$



Tube capillaire.

Le rayon apparent interne du tube est obtenu :

$$OA' = \sqrt{D2A'^2 - OD2^2} = 1,115 \text{ mm}$$

Le diamètre interne apparent est déduit :

$$D_a = 2OA' = 2,23 \text{ mm}$$

La mesure visuelle du diamètre intérieur (sur le contour externe du trait) donne :

$$D_{ae} = 2,34 \text{ mm}$$

La mesure visuelle du diamètre intérieur (sur le contour interne du trait) :

$$D_{ai} = 2,17 \text{ mm}$$

Méthode de Snell-Descartes

$$N_{\text{verre}} \cdot \sin(i_1) = N_{\text{air}} \cdot \sin(i_2)$$

or

$$\sin(i_2) = \frac{OA_1}{OI} = \frac{1}{3,05}$$

$$i_2 = 19,14^\circ$$

soit :

$$\sin(i_1) = \frac{N_{\text{air}}}{N_{\text{verre}}} \sin(i_2)$$

$$i_1 = 12,62^\circ$$

Dans le triangle IBA (hypothèse : rectangle au point B) :

$$\cos(i_1) = \frac{IB}{IA}$$

$$IA = \frac{IB}{\cos(i_1)} = 2,05 \text{ mm}$$

Dans le triangle rectangle IAA' :

$$\sin(i_2 - i_1) = \frac{AA'}{IA}$$

$$AA' = 0,23 \text{ mm}$$

Finalement :

$$D_a = D_r + 2AA' = 2,46 \text{ mm}$$

Calcul de l'image réfractée d'une bille calibrée

Cette partie s'intéresse à l'étude expérimentale des dimensions d'une bille en acier dans un tube capillaire en verre vide et lors d'un écoulement de liquide.

Calcul de l'image réfractée d'une bille calibrée en acier dans un tube capillaire en verre vide

L'angle incident i_1 est donné par :

$$\sin(i_1) = \frac{O'A}{O'I} = \frac{1}{1,4} = 0,428$$

$$i_1 = 28,15^\circ$$

L'angle réfléchi i_2 est obtenu par la loi de Snell-Descartes :

$$\sin(i_2) = \frac{N_{\text{air}}}{N_{\text{verre}}} \sin(i_1) = 0,285$$

$$i_2 = 18,4^\circ$$

Le rayon apparent $O'A'$:

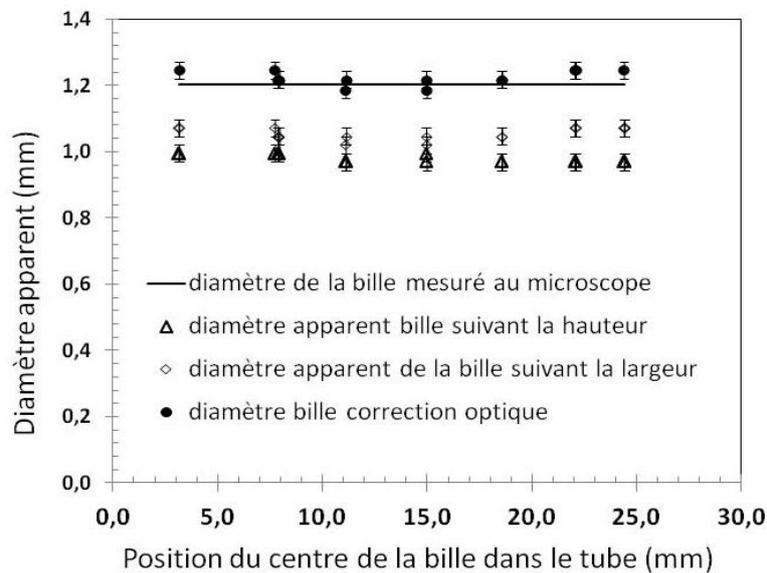
$$\sin(i_1 - i_2) = \frac{O'A'}{O'I'}$$

$$O'A' = 0,52 \text{ mm}$$

d'où la correction optique (grossissement) :

$$G = \frac{O'A'}{O'A} = \frac{0,52}{0,6} = 0,86$$

Les diamètres apparents déterminés visuellement sont divisés par le coefficient G . La prise en compte de cette correction optique donne une bonne cohérence avec les valeurs déterminées visuellement comme le montre le graphe présenté ci-dessous :



Diamètres apparents mesurés et corrigés pour une bille calibrée dans un capillaire vide.

Calcul de l'image réfractée d'une bille calibrée en acier dans un tube en verre en présence de l'huile silicone 47V1000

Soit $N_{\text{verre}} = N_{47V1000} = N = 1,5$.

Lors de l'écoulement le centre de la bille est supposé se déplacer suivant l'axe du tube capillaire ($O = O'$). Le même raisonnement (formule de conjugaison) est repris dans ce cas. L'application de la deuxième formule (par rapport à la surface de sortie) donne :

$$\frac{1}{D2A'} - \frac{N}{D2A} = \frac{1 - N}{\frac{D_r}{2}}$$

avec $D2$, le point d'intersection de la face de sortie avec l'axe optique et A' l'image de $A1$ par le dioptre constitué par la face de sortie.

$$D2A = \sqrt{OD2^2 + OA^2} = 1,167 \text{ mm}$$

$$D2A' = 1,283 \text{ mm}$$

$$OA' = \sqrt{D2A'^2 - OD2^2} = 0,8 \text{ mm}$$

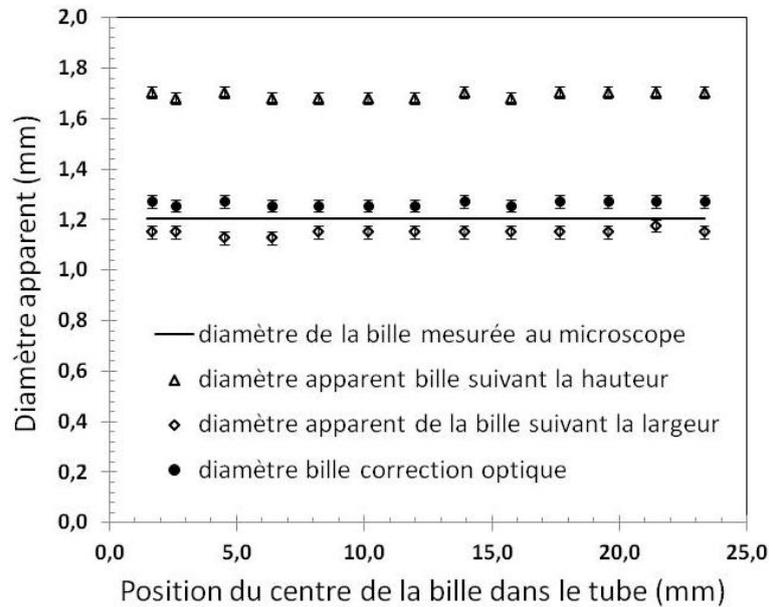
Le diamètre apparent de la bille est donné par :

$$D_a = 2OA' = 1,6 \text{ mm}$$

d'où la correction optique (rétrécissement) :

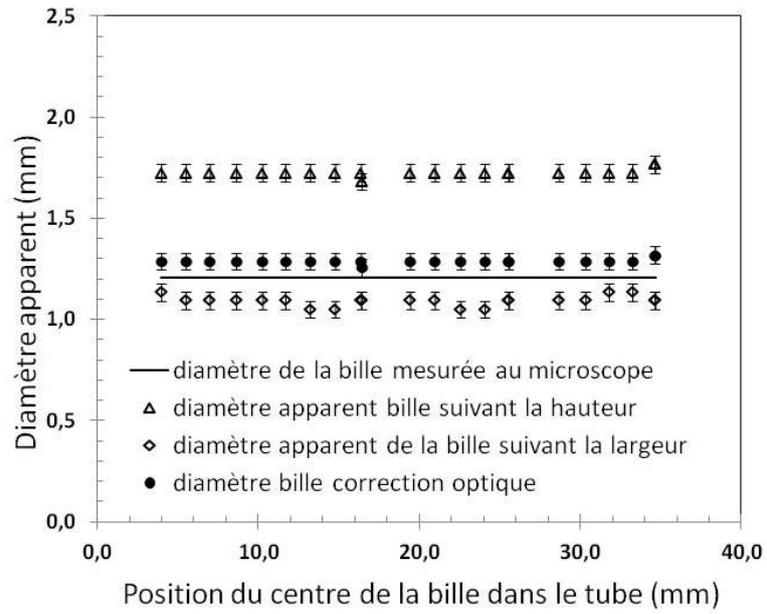
$$g = \frac{O'A'}{O'A} = \frac{0,8}{0,6} = 1,33$$

Les diamètres apparents déterminés visuellement sont divisés par le coefficient g . La prise en compte de cette correction optique donne une bonne cohérence avec les valeurs déterminées visuellement comme le montre le graphe présenté ci-dessous :



Diamètres apparents mesurés et corrigés pour une bille calibrée dans un capillaire rempli par l'huile silicone 47V1000.

Le même raisonnement et le même constat sont observés pour le cas de Glycérol 98% :



Diamètres apparents mesurés et corrigés pour une bille calibrée dans un capillaire rempli par le glycérol 98%.

Résumé :

L'objectif de ce travail est de contribuer à l'amélioration des mécanismes d'imprégnation d'un renfort fibreux par une résine polymère dans les procédés de mise en œuvre de matériaux composites de type LCM (Liquid Composite Molding). Les études théoriques et expérimentales réalisées se sont focalisées sur les anomalies d'imprégnation pouvant apparaître lors des écoulements. Les défauts couramment observés sont des vides pouvant s'assimiler à des bulles et provenant, en partie, d'une compétition entre les régimes gouvernant les écoulements intra-mèche et inter-mèches. L'analyse de la formation et du transport des bulles au sein d'une structure fibreuse demeure délicate à réaliser du fait de l'architecture complexe de la préforme.

Afin de s'exonérer des difficultés rencontrées lors de la visualisation au sein du renfort et pour répondre à cette problématique de vide créé, nous avons fait le choix d'étudier les mécanismes d'imprégnation ainsi que la formation et le transport de bulles dans des réseaux modèles. Une analyse multi-échelles a été adoptée pour nos expérimentations faisant appel à une approche micro et millifluidique où les forces de mouillabilité sont prépondérantes. Les résultats obtenus montrent, dans un premier temps, l'influence de ces forces dans les mécanismes de génération et de transport de bulles et permet de justifier certaines observations proposées dans ce sujet. Un modèle simple basé sur des configurations d'inter-connectivités micropore/macropore a été proposé. Ce modèle permet d'envisager différentes analyses paramétriques selon des configurations géométriques et des régimes d'écoulement variés. Sur cette base, il est possible de prendre en compte différents facteurs et de les comparer à certaines contributions de la littérature dans le domaine de l'imprégnation des milieux fibreux et de la mise en œuvre des composites.

Mots clés : Mécanismes d'imprégnation / Procédés LCM / Régimes d'écoulement / Bulles / Réseaux Modèles/ Millifluidique / Mouillabilité / Inter-connectivités / Macropore /Micropore

Abstract:

The aim of this work is to contribute in improving fibrous preforms impregnation for Liquid Composite Molding (LCM) processes. Theoretical and experimental investigations were focused on void that may be appearing during resin injection. Voids or bubbles are mainly formed due to the flow competition inside and outside the yarns. However, the experimental characterization of void formation and transport through the flow inside a fibrous media remains delicate.

Since the direct visualization of the liquid flow and the entrapped bubbles in a practical material is uneasy, we use model networks to study the formation of bubbles and their transport. For our experimental studies, a multi-scales approach was adopted considering microfluidic and millifluidic analysis where wetting forces are significant. The obtained results show the influence of those forces on the bubble formation and transport mechanism. A simple model taking into account the interconnectivities between micropore and macropore was suggested. Several geometrical configurations and different flow regimes could be considered by the proposed model. Finally, using this simplified approach it can be possible to compare the forecast results and those obtained in the range of fibrous media impregnation and composites elaboration.

Key words: Impregnation mechanism / LCM processes / Flow regimes / Bubbles/ Model networks / Millifluidic / Wetting / Interconnectivity / Macropore /Micropore