

# Écoulement d'un fluide à seuil dans un milieu poreux Johan Paiola

## ▶ To cite this version:

Johan Paiola. Écoulement d'un fluide à seuil dans un milieu poreux. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université Paris Saclay (COmUE), 2017. Français. NNT: 2017SACLS031. tel-01563941

# HAL Id: tel-01563941 https://theses.hal.science/tel-01563941

Submitted on 18 Jul2017

**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.





NNT: 2017SACLS031

# Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay préparée à l'Université Paris-Sud

École doctorale n°579 Sciences Mécaniques et Énergétiques, Matériaux et Géosciences Spécialité de doctorat : Mécanique des fluides

par

# M. JOHAN PAIOLA

Écoulement d'un fluide à seuil dans un milieu poreux

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 25 janvier 2017.

Composition du Jury :

М.	Sébastien Manneville	Professeur	(Président du jury)
		Laboratoire de Physique ENS Lyon	
Mme	Azita Ahmadi	Professeur	(Rapporteur)
		ENSAM	
М.	Philippe Coussot	Professeur	(Rapporteur)
		IFSTTAR	
Mme	Brigitte Pansu	Professeur	(Examinatrice)
		LPS Université Paris Sud	
М.	YANNICK PEYSSON	Ingénieur	(Examinateur)
		IFPEN	
М.	Harold Auradou	Directeur de recherche	(Directeur de thèse)
		Laboratoire du FAST	
М.	HUGUES BODIGUEL	Professeur	(Directeur de thèse)
		Grenoble-INP	



ÉCOLE DOCTORALE Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG)

Titre : Écoulement d'un fluide à seuil dans un milieu poreux

Mots clefs : fluide à seuil, vitesse de glissement, thixotropie, milieu poreux, carte de vitesse

Résumé : Solides élastiques au repos, les fluides à seuil s'écoulent comme un liquide au-delà d'une certaine contrainte. Plusieurs applications industrielles concernent l'écoulement de ces fluides dans des milieux poreux. On peut citer par exemple les émulsions dans le processus de récupération du pétrole, les opérations de cimentation dans le sol, ou le nettoyage d'un sol contaminé par une boue. Pour ces applications, il est nécessaire de connaître la pression nécessaire pour un débit voulu à la sortie du milieu poreux. Dans de tels cas, l'écoulement est perturbé par la complexité de la géométrie. Les modèles développés pour décrire la loi de Darcy supposent une loi rhéologique appliquée localement, mais ces modèles décrivent mal ce type d'écoulement. De plus, des effets complexes peuvent s'ajouter comme le glissement à la paroi ou la thixotropie. Dans cette thèse, nous étudions l'écoulement de carbopol (ETD 2050) à travers différentes géométries. Tout d'abord au rhéomètre, nous montrons que le fluide, sous certaines conditions, correspond bien à un fluide à seuil modèle. Nous démontrons que le protocole expérimental utilisé est très important et qu'un comportement thixotropique peut apparaître s'il n'est pas respecté. Ce comportement apparaît notamment lorsque le fluide reste sous le seuil, l'impact augmentant avec le temps d'attente. Ensuite, nous comparons la loi d'écoulement obtenue au rhéomètre à l'écoulement dans un canal droit obtenu par microfabrication. Nous montrons alors l'importance du glissement proche du seuil et ses conséquences sur la loi d'écoulement. Enfin nous étudions l'écoulement du carbopol dans un milieu poreux. Le milieu poreux de 5x5cm est obtenu par microfabrication. La largeur moyenne des canaux est égale à celle du canal droit. Nous avons développé une nouvelle méthode de mesure des champs de vitesse. Nous montrons l'apparition d'une chenalisation de l'écoulement à travers quelques canaux du milieu poreux. Nous comparons ensuite la loi d'écoulement du milieu poreux à celle obtenue dans le canal droit. On remarque que la vitesse d'écoulement est plus faible dans le milieu poreux que dans le canal droit.

#### Title : Flow of a yield stress fluid in a porous medium

Keywords : Yield stress fluid, slip velocity, thixotropy, porous media, velocity mapping

Abstract : Elastic solids at rest, yield stress fluids flow like a liquid beyond a certain stress. Many industrial applications required the flow of these fluids in porous media, for example: the emulsion flow in oil recovery processes, the cementing operations in the ground, or the cleaning of sludge in a contaminated soil. For many applications, it could be interesting to know the pressure required for a desired flow rate. In such cases, the flow behavior of the fluid is complicated by the complexity of the geometry. The models developed to describe Darcy's law assume a rheological law applied locally, but these models poorly describe this type of flow. Furthermore, complex effects can be added like the wall slip or the thixotropy. In this thesis, we study the flow of carbopol (ETD 2050) through different geometries. First we show that the fluid, for some conditions, corresponds to model yield stress fluids. The experimental protocol used is very important and a thixotropic behavior can appear

if it is not respected. This behavior appears especially when the fluid remains below the yield stress, the impact increases with the waiting time. We then compare the flow law obtained by rheometer in a straight channel obtained by microfabrication. We show the importance of the wall slip near the yield stress and the impact on the flow law. Finally, using a new method to measure the velocity fields developed during this thesis, we study the flow of carbopol in a porous medium. This porous medium of 5x5cm is obtained by microfabrication. The mean width of the channels is equivalent to the one of the straight channel. We show the emergence of a channeling flow through some channels of the porous medium. We then compare the flow law of the porous medium to the one obtained in the straight channel. It can be observed that the flow rate is lower in the porous medium than in the straight channel.



# Remerciements

Ces quelques heures de soutenance viennent d'achever ces quatre années de thèses. Quatre années passées dans deux laboratoires : le laboratoire du FAST à Orsay et le LOF à Pessac. Quatre années qui ont vu défiler, pour moi, les déménagements, les rencontres, les conférences et les voyages. Comme on me l'a fait remarquer lors de ma soutenance, cela représente environ dix pour cent de ma vie actuelle et je souhaite donc remercier toutes les personnes qui les ont traversées avec moi.

Je souhaite en tout premier lieu remercier mes deux directeurs de thèse Harold Auradou et Hugues Bodiguel. Harold, merci de m'avoir pris tout d'abord comme stagiaire, puis comme thésard. Tu m'as permis de vivre une expérience unique dans deux laboratoires. J'ai appris énormément de choses auprès de toi. Merci aussi d'avoir toujours été aussi pointilleux pour la préparation de mes différentes présentations orales. Merci à toi Hugues pour la confiance et pour la liberté que tu m'as données durant cette thèse, nous n'avons sans doute pas eu tous les résultats escomptés, mais je suis quand même content d'avoir pu ouvrir autant de portes sur mon sujet. Je te remercie aussi pour ta sincérité et pour le temps que tu m'as consacré, particulièrement les soirs vers 18/19h, quand je passais pour te poser une dernière question et que tu acceptais d'y répondre en divergeant bien souvent. J'y ai appris énormément. La soirée où l'on a mis en place la méthode d'analyse d'image restera pour moi inoubliable.

Je souhaite remercier mon jury, Azita Ahmadi et Philippe Coussot pour avoir accepté d'être rapporteurs de mon manuscrit, Yannick Peysson, Brigitte Pansu et Sébastien Manneville d'être examinateurs à ma soutenance. Je tiens à vous remercier pour la pertinence de vos remarques et de vos questions.

Je souhaite maintenant remercier les équipes du LOF. Tout d'abord, je remercie Paul Deschrijver, directeur du LOF pour la partie Solvay et Pierre directeur de l'UMR pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire. Ensuite, je souhaite remercier Marie pour sa bonne humeur, sa folie et nos fous rires dont un qui restera sans doute inoubliable. Je tiens à remercier le groupe de thésards puis d'amis, inséparables tels les 4 mousquetaires : Simon, Quentin et Cédric, nos (longues) conversations, nos craquages et l'émulation que vous avez réussi à créer pour que, malgré des sujets très différents, nous arrivions tout de même à travailler ensemble et à partager nos différentes expériences. J'espère revivre cela avec vous un jour. Merci tout particulièrement à Cédric et Quentin de m'avoir hébergé pendant les périodes supplémentaires à Bordeaux. Je remercie ensuite Sarah pour ces longues journées passées tous les deux en salle d'optique accrochés à nos microscopes. Félicitations pour ton enfant, je te souhaite vraiment beaucoup de bonheur pour la suite. Je remercie aussi Gérald pour sa gentillesse, son aide, ses conseils et ses retours en microfluidique; Laetitia pour avoir pris le temps de me former sur les différentes machines, pour sa bonne humeur et son sens de l'humour; Guillaume, pour nos conversations et m'avoir fait découvrir le Fablab; Hélène et Eloïse pour tous ces repas passés ensemble au CAES; Nathalie pour ta patience, l'administratif sans toi n'est plus vraiment pareil; et pour tous les autres bons moments passés au LOF ou au Central : Bertrand, Patrick, Chloé, Julien, Anaïs, Marie, Alexis, Guillaume, Michel, Alan, Virginie et Adalberto. Enfin je remercie toutes les personnes que j'ai rencontrées à l'extérieur du labo : Jo, Mélodie, Sohka, Violaine, Aurélie et Johann (Nancy vaincra).

Je souhaite bien évidemment remercier ensuite les équipes du FAST. Je remercie Antoine, tout premier thésard avec qui j'ai sympathisé, les soirées chez toi resteront (presque) inoubliables, je te remercie aussi pour tout le reste : les craquages, les pauses, les bières, etc.; Sarah pour ton sourire, ta bonne humeur, ton côté maternel; Anna pour ta façon de toujours voir le bon côté des choses malgré tous les problèmes de manip qui ont pu s'accumuler durant ta thèse; Mathias, pour nos conversations et ton humour; Thibault pour tes conseils, promis dès que tu as un jardin, je t'offre une poule, j'ai de quoi avoir des poussins maintenant; Tristan pour la formation matlab accélérée que tu m'as donné et tes conseils toujours pertinents; Florent et Samuel pour nos digressions du midi toujours passionnantes, grâce à vous je connais la distance d'écartement entre deux rails en France et en Espagne, et bien sûr tous les autres thésards et post doc que j'ai croisés durant ma thèse : Nicolas, Aurore, Adama, Marguerite, Lucrecia. Je remercie aussi toute l'équipe des chercheurs du laboratoire pour tous ces repas et pauses du midi passés ensemble. Plus particulièrement, je souhaite remercier Philippe Gondret, nous nous sommes rencontrés pour la première fois en master 2 en Physique des liquides dans des circonstances, pour moi, compliquées, je te remercie pour ta confiance et le soutien que tu as su m'apporter. Toujours depuis ce master, j'ai rencontré aussi Dominique Salin, je te remercie aussi pour ta bonne humeur et ces bons mots que tu as toujours eus durant ma thèse. Je remercie ensuite Laurent Talon pour ses conseils et sa gestion de l'ANR, mais aussi pour sa franchise. Enfin, je remercie les ingénieurs et les techniciens - Alban, Rafaël, Lionel, Christian et Babacar - pour ce foyer de bonne humeur qu'ils arrivent à créer dans ce hangar immense où nous réalisons nos manips.

Pendant cette thèse, j'ai aussi encadré plusieurs stagiaires Adnae et Loïc pour Orsay, Roland et Xiaoting pour Bordeaux. Ce fut un plaisir de vous encadrer, j'espère que vous continuerez dans les sciences ou du moins que vous avez pris plaisir à faire vos stages.

J'ai eu le plaisir, durant mes trois premières années de thèse, de réaliser mon monitorat en L1 avec le projet professionnel et au magistère de physique (un petit retour aux sources) en master 1 puis en L3 avec le projet de physique statistique. Je remercie donc pour leurs conseils et leurs confiances les enseignants responsables Michel Menou (projet pro) et Frédéric Bouquet (projet de physique stat).

J'ai la chance, durant toutes ces années passées à Orsay, de m'être créé un noyau dur d'amis, une véritable petite famille. Je ne les remercierai sans doute jamais assez pour leur bonne humeur, leurs folies et leurs bizarreries, pour leur soutien indéfectible dans les situations difficiles. Quand j'étais petit, il y avait un petit écriteau chez ma grand-mère où il était écrit : « Petite est la maison, mais grand est notre cœur ». Adrion, Thierry, Patrick, Agathe, Anaïs, Alain, Nevor, Nath, Robin, Alexis, Thibaut, Claire, Ronan, Julie, Aless, spl0k, Hadrien : Merci d'avoir créé cela avec moi. J'espère, j'en suis même convaincu que malgré les turbulences passées, présentes et à venir, nous resterons cette « petite » famille. Pac@Net, la coloc, les poules, un chat, cette thèse, tout ceci n'aurait sans doute pas eu le même sens sans vous. Vous êtes géniaux. Je tiens aussi à remercier plus particulièrement Anaïs, Thibaut et Ronan pour ces journées de rédaction passées à me subir. Boire un bon thé, entendre une porte qui grince, manger des ouiches, etc., ces petits moment-là ne seront sans doute plus pareils dorénavant. Je tiens aussi à remercier Mika, Sandra, Thomas, Pierre-Marie et Yassin pour leur amitié.

Je souhaite aussi avoir une pensée pour ma famille. Maman, je te remercie de m'avoir toujours soutenu et de me soutenir encore dans mes choix, merci d'avoir été présente à ma soutenance. Je remercie aussi Thierry, Annick, Christophe, Manon pour votre présence dans ma vie. Pour moi, vous faites partie de ma famille et j'espère que vous continuerez à m'accompagner dans mes nouvelles aventures. Je remercie aussi mes cousins Antoine et Simon, on ne se voit pas souvent, mais c'est, et ce sera, toujours un plaisir de vous revoir. Enzo, mon petit frère, est sans doute trop jeune pour lire cette thèse, mais je lui souhaite tout le bonheur du monde pour la suite. Enfin, papa, tu es parti bien trop tôt pour voir tout cela, mais je suis convaincu que tu aurais adoré...

Une page se tourne, une autre s'ouvre ... Merci à tous

# Table des matières

## Introduction

État de l'art						
Intro	ntroduction					
1	Rhéolo	ogie des fluides complexes	14			
	1.1	Rhéologie classique	14			
	1.2	Rhéologie d'un fluide à seuil	16			
	1.3	Viscoélasticité	18			
	1.4	Thixotropie	18			
2	Écoule	ement dans un canal droit	24			
	2.1	Modèle analytique	25			
	2.2	Interaction paroi/fluide : Glissement	26			
	2.3	Impacts de la géométrie	28			
3 Écoulement d'un fluide à seuil dans un milieu poreux						
	3.1	Généralités	33			
	3.2	Modèle des tubes parallèles	33			
	3.3	Modèles et approche expérimentale pour un fluide à seuil	34			
4	Motiva	ations	38			
Mat	ériels	et méthodes	41			
Intro	ductio	a	42			
1	Réalisa	ation des milieux poreux	42			
	1.1	Réalisation des motifs	42			
	1.2	Microfabrication : Soft Lithography	42			
2	Puce macroscopique					
	B Fluides utilisés					
3	Fluide	s utilisés	48			
3	Fluide 3.1	s utilisés	48 48			
	État Intro 1 2 3 4 Mat Intro 1	État       de l'a         Introduction       1         1       Rhéolo         1       1.1         1.2       1.3         1.4       2         2       Écoule         2.1       2.2         2.3       3         3       Écoule         3.1       3.2         3.3       4         Motiva         1       Réalisa         1.1       1.2         2       Puce r	État de l'art         Introduction         1       Rhéologie des fluides complexes         1.1       Rhéologie classique         1.2       Rhéologie d'un fluide à seuil         1.3       Viscoélasticité         1.4       Thixotropie         1.4       Thixotropie         2       Écoulement dans un canal droit         2.1       Modèle analytique         2.2       Interaction paroi/fluide : Glissement         2.3       Impacts de la géométrie         2.3       Impacts de la géométrie         3.1       Généralités         3.2       Modèle des tubes parallèles         3.3       Modèles et approche expérimentale pour un fluide à seuil         4       Motivations         11       Réalisation des milieux poreux         1.1       Réalisation des motifs         1.2       Microfabrication : Soft Lithography         2       Puce macroscopique			

	odes de mesure	52					
		4.1	Rhéomètrie	52			
		4.2	Mesure de débit	52			
		4.3	Mesure de pression	55			
	5	Conclu	usion	56			
3	Mesure d'un champ de vitesse haute résolution pour un milieu poreux						
	Intr	oductio	n	60			
	1	Protoc	cole d'analyse d'images	70			
		1.1	Description détaillée du programme d'analyse d'images $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$	70			
		1.2	Discussion du premier paramètre de filtre	72			
	2	Conclu	usion	76			
4	Éco	uleme	nt de Carbopol dans des géométries simples	77			
	Intr	oductio	n	78			
	1	Écoule	ement simple	78			
		1.1	Rhéologie du Carbopol	78			
		1.2	${ m \acute{E}coulement}$ dans un canal droit $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$	80			
		1.3	Ajustement des profils de vitesse	82			
		1.4	Étude du glissement	84			
		1.5	${ m \acute{E}coulement}$ dans une boucle	89			
	2	Mise e	en évidence et étude de la thixotropie du carbopol (ETD 2050)	96			
		2.1	Résultats expérimentaux	96			
		2.2	Tentative de modélisation	98			
	3	Conclu	usions et perspectives	100			
<b>5</b>	Éco	uleme	nt de Carbopol dans un milieu poreux	105			
	Intr	oductio	n	106			
	1	Protoc	cole expérimental	106			
	2	Visual	lisation de l'écoulement	107			
		2.1	Cartes des vitesses	107			
		2.2	Distribution des vitesses	108			
		2.3	Effet temporel	112			
		2.4	$\label{eq:delta} {\rm Discussion}: {\rm pertinence} \ {\rm de} \ {\rm l'estimation} \ {\rm des} \ {\rm très} \ {\rm faibles} \ {\rm vitesses} \ . \ .$	113			
	3	Courb	e d'écoulement	115			
		3.1	Mesure de la perte de charge dans le poreux	115			
		3.2	Étude du seuil d'écoulement $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$	116			
		3.3	Loi d'écoulement en fonction du nombre de Bingham équivalent $Bi^{-1}$	118			

4	Discus	sion, conclusions et perspectives	119			
Conclu	usion e	t perspectives	123			
5	Conclu	isions	123			
6	6 Perspectives					
	6.1	Thixotropie	126			
	6.2	Migration viscoélastique	126			
	6.3 Injection d'un fluide miscible ou non miscible dans un poreux sat					
		par un fluide à seuil	128			

Table des matières

# Introduction

De nombreux procédés industriels ont en commun l'écoulement de fluides complexes dans des milieux poreux. Dans le bâtiment, il peut être nécessaire d'injecter du béton pour colmater une fracture. Il est alors important que le fluide s'écoule dans l'ensemble de la fissure afin d'assurer la bonne tenue de la structure. En dépollution des sols, de nombreux accidents industriels sont apparus ces dernières années, comme les boues rouges dans les calanques ou les marées noires sur les bords de plages. Il est essentiel d'anticiper la manière dont ces fluides souillés vont s'imprégner dans le sol et donc impacter à plus ou moins long terme l'environnement. On peut aussi citer la récupération du pétrole lourd, par exemple le pétrole bitumineux du Canada ou encore le pétrole paraffinique du Brésil. Avec l'augmentation du prix du baril et la raréfaction des autres sources de pétroles, il devient économiquement intéressant de les exploiter malgré leur propriété d'écoulement complexe. L'industriel doit alors s'assurer du rendement de fluide obtenu selon la pression imposée. Nous pouvons aussi mentionner de nombreux procédés industriels de l'agroalimentaire habitués à utiliser pâte ou gel, ou encore des phénomènes plus naturels comme l'écoulement du sang à travers un réseau de capillaires. Tous ces fluides ont la particularité, entre autres, de ne s'écouler qu'au-delà d'une contrainte seuil. L'écoulement traverse alors un milieu complexe, hétérogène, de taille de pore plus ou moins grande, impactant directement l'écoulement ou non du fluide dans certains canaux. Il est donc important de comprendre l'influence de ces interactions entre seuil du fluide et hétérogénéité du milieu poreux à l'échelle locale et à l'échelle globale si l'on veut pouvoir définir une loi d'écoulement.

Afin de répondre à ces questions, j'ai adopté, durant cette thèse, une approche multi échelle associant la rhéologie du fluide, ici le carbopol, une approche à l'échelle du pore en étudiant l'écoulement dans un canal droit, puis l'étude d'un écoulement dans un milieu poreux hétérogène. L'objectif de ma thèse est de pouvoir confronter ces trois études afin d'identifier les phénomènes qui peuvent s'ajouter à chaque changement d'échelle. Dans la première partie de ma thèse, je vais revenir sur les principaux résultats de la littérature concernant la rhéologie et les écoulements de fluide dans les milieux poreux : une attention particulière sera portée aux fluides possédant un seuil d'écoulement. Le chapitre 2 décrira les différentes méthodes et techniques expérimentales utilisées lors de ma thèse. Le chapitre suivant reprendra en détail une méthode que j'ai mise au point pour mesurer le champ de vitesse dans mes puces microfluidiques. Les chapitres 4 et 5 traiteront de mes expériences dans un canal droit et dans un milieu poreux. Les résultats obtenus seront discutés dans la conclusion. Enfin je terminerai par des perspectives. Chapitre 1

État de l'art

## Introduction

Dans ce chapitre, nous allons faire un état des lieux des connaissances sur l'écoulement d'un fluide à seuil. Tout d'abord, nous décrivons les propriétés générales de ce type de fluide modélisées notamment par une loi d'Herschel-Bulkley. Nous appliquons ensuite ce modèle à l'écoulement dans un canal droit, maille élémentaire d'un milieu poreux afin d'obtenir la vitesse d'écoulement en fonction de la pression. Ce passage d'une géométrie à une autre peut avoir des conséquences sur la loi d'écoulement débit/pression, notamment rajouter des phénomènes plus complexes. Nous nous intéressons alors à l'impact de l'interaction fluide/paroi lors d'un écoulement, puis à l'impact du choix de la géométrie elle-même. Ensuite nous décrivons les milieux poreux. Nous exposons alors l'état des connaissances sur l'écoulement de fluides à seuil à travers ce type de milieu. Nous abordons plus en détail une étude numérique décrivant l'apparition de chemins préférentiels lorsque l'on s'approche du seuil.

# 1 Rhéologie des fluides complexes

#### 1.1 Rhéologie classique

Avant de détailler la rhéologie des fluides complexes, nous allons tout d'abord rappeler la loi d'écoulement d'un fluide newtonien ainsi que les outils pour la mesurer.

#### Fluide newtonien soumis à un cisaillement simple

La rhéologie est la science de ce qui coule et se déforme sous l'action d'une contrainte. Prenons l'exemple d'un fluide newtonien soumis à un cisaillement simple. Le fluide est placé entre deux plateaux comme présenté sur la figure 1.1. Le plateau supérieur est soumis à une force F horizontale et se déplace à la vitesse V. Par souci de simplicité, le fluide est alors soumis seulement à un gradient de vitesse. Afin de caractériser ce fluide, on introduit deux grandeurs : la contrainte de cisaillement  $\sigma_{xy} = \frac{F}{S}$  et le taux de déformation  $\dot{\gamma} = \frac{dv_x}{dy}$ . L'étude rhéologique d'un fluide va donc consister, dans le cas d'un fluide newtonien, à relier la contrainte au taux de déformation  $\sigma = f(\dot{\gamma})$ , où f est la fonction à déterminer. Pour un fluide newtonien, la relation entre les deux grandeurs est linéaire :  $\sigma = \eta \dot{\gamma}$  avec  $\eta$  la viscosité.

#### Rhéométrie

Afin de mesurer les lois d'écoulement de ces différents fluides, l'outil le plus communément utilisé en laboratoire comme dans le domaine industriel est le rhéomètre. L'appareil



FIGURE 1.1 – Fluide newtonien entre deux plans parallèles dont le plan supérieur est soumis à une force horizontale F. Le fluide est alors mis en écoulement sous l'effet d'un gradient de vitesse.

est composé d'un axe de rotation lié à un moteur et à une géométrie de mesure. La géométrie de mesure est composée d'une partie statique et d'une partie mobile, reliée à l'axe et entrainée par le moteur soit en imposant une vitesse de rotation  $\Omega$  soit un couple T = F \* r. Le fluide est placé entre les deux parties de la géométrie. Cette zone est nommée l'entrefer. Les géométries couramment utilisées en laboratoire sont représentées sur la figure 1.2 : la géométrie plan-plan, consistant en deux plans parallèles, la géométrie cône-plan, et la géométrie de Couette, un cylindre tournant dans un second cylindre.



FIGURE 1.2 – Trois géométries couramment utilisées en rhéologie : géométrie plan-plan, géométrie cône-plan, géométrie de Couette.

Durant ces travaux, nous avons particulièrement utilisé la géométrie cône-plan. Cette géométrie a l'avantage d'avoir un taux de cisaillement homogène dans le matériau. Il s'agit d'un cône renversé tournant autour de son axe de symétrie sur un plan immobile. Le sommet du cône est coupé afin d'éviter tout frottement et contact avec le plan. L'angle  $\theta$ entre le plan et l'arête du cône est très petit (seulement quelques degrés). On peut alors écrire que tan $(\theta) \approx \theta$ . La géométrie peut être rendue rugueuse par traitement chimique ou mécanique. En supposant alors le glissement faible voir nul et le cisaillement homogène partout dans le fluide, on obtient les relations entre la contrainte de cisaillement  $\sigma$  et le couple T, ainsi qu'entre le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  et la vitesse de rotation  $\Omega$ :

$$\sigma = \frac{3T}{2\pi R^3} \qquad \text{et} \qquad \dot{\gamma} = \frac{\Omega}{\theta} \tag{1.1}$$

La courbe d'écoulement du fluide  $(\sigma, \dot{\gamma})$  est obtenue en effectuant des rampes de contrainte ou de cisaillement. Vous pourrez trouver une description plus détaillée des autres géométries ici [1].

#### 1.2 Rhéologie d'un fluide à seuil

Un fluide à seuil a un comportement proche d'un solide élastique au repos et s'écoule comme un fluide au-delà d'une certaine contrainte. On retrouve dans cette catégorie de nombreux fluides dans de multiples domaines : le génie civil (ciment, mortier...), l'industrie agroalimentaire (mayonnaise, mousse...), l'industrie cosmétique (gel, pommade...), et la nature (boue, lave...). Ces fluides ont en commun d'avoir une structure complexe et désordonnée. Ils sont composés d'éléments confinés dans un solvant : bulle dans une mousse, goutte d'huile dans une émulsion, ou agrégat de polymère pour les gels. La taille de ces structures est de l'ordre du micron voire de la centaine de microns. Elles peuvent avoir une distribution de taille plus ou moins large. Il est nécessaire de dépasser une certaine contrainte pour déplacer ces éléments les uns par rapport aux autres, ce qui explique la nécessité de dépasser une contrainte seuil.

Certains auteurs [2, 3] remettent en cause la contrainte seuil, le seuil ne serait alors qu'un artefact expérimental dû à la technique de mesure et non une propriété physique intrinsèque réelle. Pourtant d'autres auteurs [4, 5] font remarquer que les petites bulles dans un simple gel à cheveux peuvent rester à la même place durant des années, le seuil a donc bien une signification physique. Des expériences plus récentes [6, 7, 8, 9] réalisées grâce au développement de nouveaux outils de mesure plus précis (capables de mesurer des contraintes pour des taux de déformation aussi petits que  $10^{-7}s^{-1}$ ) ont clôturé le débat et prouvé l'existence d'un vrai seuil.

Une première modélisation simple, pour un régime d'écoulement permanent, est donnée pour ce type de fluide par Bingham [10]. En dessous d'une certaine contrainte seuil  $\sigma_c$ , le fluide ne s'écoule pas. Son comportement est équivalent à celui d'un solide élastique. La déformation  $\gamma$  varie linéairement en fonction de la contrainte :  $\gamma = \sigma/G$ . On nomme G le module élastique. Au-dessus, il s'écoule de façon linéaire suivant la loi  $\sigma = \sigma_c + \eta_p \dot{\gamma}$  avec  $\eta_p$  la viscosité plastique. Mais les fluides à seuil ont souvent une viscosité apparente qui diminue quand le taux de cisaillement augmente. On dit qu'ils sont rhéofluidifiants. On modélise alors ce type de comportement par une loi d'Herschel-Bulkley [11] :

#### 1. Rhéologie des fluides complexes



FIGURE 1.3 – Contrainte  $\sigma$  en fonction du taux de cisaillement pour trois fluides types : newtonien (en bleu), de Bingham (en vert) et de Herschel-Bulkley (en noir). En insert, les mêmes courbes en représentation log-log.

$$\begin{cases} \dot{\gamma} = 0 & \text{si } \sigma \le \sigma_c, \\ \sigma = \sigma_c + K \dot{\gamma}^n & \text{si } \sigma > \sigma_c. \end{cases}$$
(1.2)

Il s'agit d'une généralisation du fluide de Bingham que l'on retrouve pour n = 1. K est nommé la consistance. La puissance n est inférieure à 1 pour un fluide rhéofluidifiant. Si n est supérieur à 1, le fluide est rhéoépaississant. Nous avons représenté sur la figure 1.3 les courbes d'écoulement ( $\sigma, \dot{\gamma}$ ) pour un fluide newtonien, un fluide de Bingham et un fluide de Herschel-Bulkley.

On introduit un nombre sans dimension pour caractériser les fluides à seuil, le nombre de Bingham :

$$Bi = \frac{\sigma_c l^n}{KV^n} \tag{1.3}$$

où V est la vitesse moyenne et l une longueur caractéristique du système. Il définit le rapport entre les contributions élastique et visqueuse.

Mais les fluides réels ont souvent des comportements plus complexes notamment des effets temporels que nous allons décrire maintenant.

#### 1.3 Viscoélasticité

Sur des échelles de temps suffisamment courtes, tous les fluides sont viscoélastiques [12]. On peut citer, par exemple, la boule de pâte à modeler « Silly Putty ». Elle rebondit si elle tombe sur le sol mais s'étale très lentement une fois posée. Les fluides à seuil peuvent aussi avoir des propriétés viscoélastiques sur des échelles de temps observables, c'est notamment le cas du carbopol [13, 14, 15, 16, 17].

Afin de caractériser au mieux ce type de fluide, on introduit  $\tau$  le temps de relaxation viscoélastique. Si l'on applique un changement de cisaillement brusque, la contrainte, au temps court  $t < \tau$ , croit de façon linéaire. On a  $\sigma = G\gamma = G\dot{\gamma}t$ . Au temps long, la contrainte sature vers un état stationnaire et l'on finit par retrouver un comportement visqueux  $\sigma = \eta \dot{\gamma}$ . Ces résultats sont représentés sur la figure 1.4.b. Ceci reste vrai pour un cisaillement suffisamment faible pour se trouver dans le régime linéaire, sinon le régime est dit non linéaire.

Le régime non linéaire peut se définir comme une déstructuration du système au-delà d'un certain cisaillement entrainant l'apparition d'un phénomène rhéofluidifiant lorsqu'on observe le régime permanent. Cet effet peut avoir de nombreux impacts sur l'écoulement notamment à fort cisaillement [18, 19, 20, 21].

#### 1.4 Thixotropie

#### Définition

Le second effet temporel que l'on peut observer dans un fluide à seuil est la thixotropie. Un fluide thixotrope est un fluide dont la microstructure évolue dans le temps. La microstructure se dégrade sous l'effet d'un cisaillement et se reconstruit au repos ou sous très faible cisaillement. L'échelle de temps peut aller de quelques minutes pour sa dégradation à quelques heures pour sa reconstruction. Ce phénomène se caractérise alors par un abaissement de la viscosité dans le temps sous l'effet d'un cisaillement. L'effet est bien temporel et donc différent d'un fluide rhéofluidifiant dont la viscosité diminue avec la contrainte. Lors du rajeunissement du fluide, soumis à un cisaillement constant, la courbe de contrainte évolue dans le temps pour tendre vers un régime permanent. Ce phénomène de rhéofluidification temporel [22] peut s'expliquer par : l'alignement des particules dans la direction de l'écoulement, la perte de jonctions dans les solutions de polymères, le réarrangement de la microstructure pour l'écoulement d'émulsion ou de suspension, ou la dégradation de flocs. Les fluides thixotropes souvent étudiés sont la bentonite, la laponite, les suspensions denses de bille de silice ou certaines émulsions comme la mayonnaise.

Larson [24] montre qu'il est important de ne pas confondre thixotropie et viscoélasticité.



FIGURE 1.4 – Évolution de la contrainte de  $\sigma_i$  à  $\sigma_e$  suite à l'abaissement soudain du taux de cisaillement de  $\dot{\gamma}_i$  à  $\dot{\gamma}_e$ : (a) Cisaillement dans le temps, (b) réponse en contrainte pour un fluide viscoélastique, (c) fluide thixotrope inélastique ou fluide thixotrope idéal, (d) fluide réel. Figure extraite de [23].

Pour cela, il est nécessaire de bien différencier les deux. Il introduit donc la notion de « fluide thixotrope idéal » pour les fluides thixotropes non viscoélastiques. Si ce dernier subit un changement de cisaillement instantané, la relaxation des contraintes est elle-aussi instantanée sans présenter de recul élastique comme représenté sur la figure 1.4 par Mewis *et al.* [23].

#### Phénoménologie classique

Nous allons maintenant décrire quelques méthodes de mise en évidence du phénomène de thixotropie. Une liste plus exhaustive pourra être trouvée dans le livre de Jan Mewis et Norman J. Wagner [23]. Une méthode consiste à réaliser une rampe montante puis descendante à contrainte ou à cisaillement imposé au fluide à l'aide d'un rhéomètre. Nous pouvons observer un exemple sur la figure 1.5 sur du carbopol dans une géométrie côneplan. Aux forts cisaillements, la montée et la descente se superposent et tendent vers un comportement rhéofluidifant classique. En revanche, aux faibles cisaillements, on observe une hystérésis. Pour la rampe descendante, la microstructure est totalement déstructurée. La contrainte n'est donc pas soumise à l'effet thixotrope. En revanche dans la phase ascendante, la microstructure du fluide s'est restructurée. Il devient plus difficile de mettre en écoulement le fluide. La contrainte mesurée est donc supérieure à celle mesurée en descente. Cette méthode de mesure de la thixotropie est peu fiable, elle fait intervenir trop de paramètres. Il est difficile de caractériser le vieillissement de la structure à faible cisaillement, il y a notamment compétition entre rajeunissement et vieillissement. À une valeur donnée, le fluide met un certain temps à atteindre un régime d'écoulement permanent. L'expérience de rampe ne mesure donc qu'un phénomène transitoire. Si la mesure de la contrainte est trop rapide, elle peut aussi être perturbée par des effets viscoélastiques.

Une autre méthode consiste, après un certain temps d'attente à faible cisaillement, à



FIGURE 1.5 – Courbes d'écoulement, cisaillement en fonction de la contrainte, obtenues en diminuant  $\dot{\gamma}$  de 100 à  $10^{-3}s^{-1}$  en (°) puis en l'augmentant de  $10^{-3}$  à  $100s^{-1}$ (courbe en trait plein rouge), pour différents temps d'attente  $\tau_w = 2s$ , 10s, 30s, 70s. La durée d'expérience totale la plus longue pour la dernière expérience est de  $2 \cdot 10^4 s$ . L'expérience est réalisée au rhéomètre pour une géométrie plan-plan rugueux ( $\delta = 46\mu m$ ) avec du carbopol (1%wt). Figure extraite de Divoux *et al.* [25].

imposer un palier de cisaillement et à mesurer l'évolution de la contrainte au cours du temps, par exemple l'expérience dans une géométrie type Couette avec du carbopol de Divoux [26] dont un résultat est présenté sur la figure 1.8. À l'inverse, on peut aussi réaliser un palier en contrainte et mesurer le cisaillement au cours du temps, par exemple l'expérience de Cloitre [27] obtenue au rhéomètre avec une géométrie de type cône-plan et une pâte de microgel. Il n'existe pas de formalisme bien défini pour représenter et comparer les différentes expériences. Cloitre [27] obtient une courbe maitresse pour différents temps d'attente  $t_w$  en représentant  $\dot{\gamma}(t) - \dot{\gamma}(t_w)$  en fonction de  $(\frac{t-t_w}{t_w})^{\mu}$  avec  $\mu = 0.80$ . D'un autre côté, les expériences de Divoux [26] sur un écoulement de carbopol à différentes concentrations dans une géométrie de type Couette permettent d'introduire un temps caractéristique  $\tau_f$ , visible sur la figure 1.8. Ils montrent que ce temps caractéristique dépend de l'inverse de la contrainte :  $\tau_f = \frac{B}{(\sigma-\sigma_c)^{\beta}}$ . Les deux études n'introduisent pas de modèles permettant de les interpréter ou de les comparer. Malgré tout, elles permettent de montrer que le temps d'attente a un impact important sur la rhéologie du fluide. Plus le temps d'attente est long, plus le fluide va mettre du temps à atteindre un régime permanent.

L'effet de la thixotropie est aussi observable sur la valeur du seuil (figure 1.6.1). L'expérience de Ovarlez *et al.* [28] consiste à mesurer le seuil d'une solution de bentonite en



FIGURE 1.6 – Exemples d'effet de la thixotropie d'un fluide sur sa rhéologie. A gauche, contrainte seuil de mise en écoulement d'une suspension de bentonite ( $\sigma_c = 35Pa$ ) en fonction du temps passé en régime solide, pour diverses contraintes de transition liquide/solide. Figure extraite de Ovarlez [28]. À droite, courbe d'écoulement ( $\sigma, \dot{\gamma}$ ) d'une solution de boue thixotrope pour différents temps de mesure : de 30s en carré à 1h en trait plein. Figure extraite de Ovarlez *et al.* [29].

faisant varier le temps d'attente ou la valeur de la contrainte sous le seuil. Ainsi lorsque l'on augmente le temps de vieillissement où l'on laisse le fluide sous le seuil, on remarque que la valeur de la contrainte seuil effective, au-delà de laquelle le fluide s'écoule, augmente. De même, si l'on applique au fluide une contrainte inférieure à la contrainte seuil, cela modifie aussi la valeur de la contrainte seuil effective. Il devient donc plus difficile de mettre en écoulement le fluide resté un certain temps en phase solide. De la même façon, on observe que la courbe d'écoulement d'une boue thixotrope [29] (figure 1.6.2) est impactée par le temps de mesure lorsque l'on augmente le cisaillement. Ces variations sont dues à l'apparition d'un régime transitoire. Plus récemment des expériences d'écoulement d'un fluide thixotrope durant le régime transitoire [30] ont montré qu'il était nécessaire de visualiser le profil de vitesse du fluide et ont mis en évidence l'apparition de bandes de cisaillement.

#### Bandes de cisaillement

L'apparition de bandes de cisaillement ou « shear banding » semble être un phénomène particulièrement important pour les fluides à seuil thixotropes. Lorsque le fluide est mis en écoulement, une zone du fluide reste non cisaillée. Lorsque le champ de contrainte est constant, c'est le cas pour une géométrie de type cône-plan ou de Couette, on observe une discontinuité de la vitesse, comme présenté sur la figure 1.7. Ce phénomène n'est pas pris en compte dans le modèle de type Herschel-Bulkley où  $\sigma = f(\dot{\gamma})$ .



FIGURE 1.7 – Courbe d'écoulement typique obtenue pour certains matériaux pâteux pour un taux de cisaillement imposé. La ligne continue correspond au comportement rhéologique du matériau dans l'état d'équilibre. Les lignes en pointillés correspondent aux deux états pour une valeur de  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_c$  mais ne sont pas un comportement réel du fluide. En insert, les profils de vitesse correspondants. Figure extraite de [31].

Il est nécessaire d'avoir une mesure locale de la vitesse en plus de la mesure rhéologique afin de caractériser ce phénomène. Pour cela, plusieurs nouvelles méthodes de mesure [30] ont été mises en place comme la rhéométrie imagée par IRM [32] ou la mesure de champ de vitesse par ultrason dans une géométrie de type Couette [33], dont un résultat est présenté sur la figure 1.8. Nous pouvons observer sur cette figure l'apparition d'un temps caractéristique  $\tau_f$  signe de la mise en place du régime de bande de cisaillement. Ce phénomène n'est pas incompatible avec le  $\lambda$ -modèle [34] dont nous allons parler dans la suite. Ce temps caractéristique peut être vu comme équivalent au temps caractéristique de structuration du matériau.

#### Modèles théoriques

De nombreux modèles ont été développés ces dernières années. La plupart relient la viscosité du fluide aux cisaillements, au temps mais aussi à l'histoire du fluide, c'est à dire des traitements que le fluide a subis au préalable. Le modèle prend alors en compte un paramètre de structure du fluide  $\lambda$  afin d'ajouter un couplage écoulement/structure. Il est de la forme :

$$\begin{cases} \sigma = \eta[\lambda(t), \dot{\gamma}]\dot{\gamma} \\ \frac{\partial\lambda}{\partial t} = f(\dot{\gamma}, \lambda(t)) \end{cases}$$
(1.4)

Il existe plusieurs modèles afin de décrire l'écoulement d'un fluide thixotrope. Trois revues ont retenu notre attention. Barnes [22] donne une liste non exhaustive des phénomènes



FIGURE 1.8 – En haut, mesure de  $\dot{\gamma}$  dans le temps à  $\sigma$  constant pour une solution de carbopol (0.5%wt) dans une géométrie de Couette. À t = 0s, la contrainte est mise à  $\sigma = 37Pa$ . En insert, le maximum de  $\frac{\partial \dot{\gamma}}{\partial t}$  correspond au temps caractéristique  $\tau_f$ . En dessous, les profils de vitesse en fonction de r la distance au rotor pris à différents temps (symbole, temps(s)) : ( $\bigcirc$ ,500), ( $\blacktriangle$ ,3460), ( $\bigtriangledown$ ,5890), ( $\circlearrowright$ ,6450), ( $\diamondsuit$ ,6620),( $\diamondsuit$ ,17349). Figure extraite de Divoux [26].

induits par la thixotropie, des fluides et des expériences réalisées, ainsi que des modèles mathématiques utilisés pour les décrire. Mujumdar [35] va plus loin dans la description des modèles mathématiques. Enfin, plus récemment, Larson [24] distingue deux catégories de fluides thixotropes : les fluides thixotropes idéaux sans aucun effet élastique et les fluides thixotropes non-idéaux où le temps de relaxation viscoélastique reste plus court que le temps caractéristique lié à la thixotropie. Il est alors nécessaire de prendre en compte le module élastique dans la loi d'écoulement du fluide.

Dans un premier temps, nous allons décrire le modèle le plus simple pour un fluide

thixotrope idéal. Il s'agit du  $\lambda$ -modèle donné par Coussot [34] par l'équation :

$$\begin{cases} \eta = \eta_0 (1 + \lambda^n) \\ \frac{\partial \lambda}{\partial t} = \frac{1}{T} - \alpha \lambda \dot{\gamma} \end{cases}$$
(1.5)

Ainsi pour un fluide thixotrope au repos, le paramètre de structure  $\lambda$  augmente à un taux constant de 1/T, où T est le temps caractéristique de la microstructure.  $\alpha$  est un paramètre sans dimension. Le second terme de l'équation (4.3) est associé à la destruction de la structure, autrement dit le terme de rajeunissement du fluide. Ce modèle a été validé expérimentalement sur plusieurs fluides par Roussel *et al.* [36] notamment en comparant des profils de vitesse obtenus par IRM pour l'écoulement de bentonite dans une géométrie de Couette, mais aussi par Jarny [37] pour une pâte de ciment. Nous allons ici énoncer les grands principes du modèle, une étude plus complète est réalisée dans les deux articles précédents.

L'exposant n influe sur les propriétés du fluide. Si l'on se place dans le régime stationnaire, on peut distinguer ainsi trois cas. Les deux premiers sont assez simples, pour n < 1le fluide n'a pas de contrainte seuil et pour n = 1, on retrouve un comportement type Bingham avec  $\tau = \eta_0/(\alpha\theta) + \eta_0\dot{\gamma}$ . Seul le cas n > 1 présente un intérêt ici. Dans ce cas, le fluide n'a pas de seuil réel mais tend vers une viscosité infinie au cours du temps dans les régions seuillées. Il n'y a donc pas de problème de discontinuité engendré par la frontière solide-liquide au cours des simulations. En revanche, le modèle présente une discontinuité du taux de cisaillement avec un taux cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c = \frac{k}{\alpha\theta}$  où  $k = (n-1)^{1/n}$  en dessous duquel il y a divergence des solutions du modèle comme présenté sur la figure 1.7.

Chaque expérience de la littérature sur des fluides thixotropes est reliée à son propre modèle théorique et il n'existe pour l'instant aucun consensus sur la définition d'un modèle général de thixotropie. Les fluides à seuil thixotropes sont sensibles aux phénomènes d'histoire ce qui les rend difficiles à étudier. Le protocole de préparation des fluides mais aussi le protocole expérimental de mesure sont alors primordiaux pour assurer une bonne répétabilité, ce qui n'est pas toujours possible notamment à cause du phénomène de vieillissement du fluide. De plus, nous avons vu que le phénomène nécessite de ne pas se contenter des résultats du rhéomètre mais bien de regarder la structure de l'écoulement notamment l'apparition de bandes de cisaillement.

## 2 Écoulement dans un canal droit

Nous avons vu précédemment la description d'un fluide à seuil au rhéomètre à l'aide de la loi d'Hershel-Bulkley. Nous allons maintenant transposer ce modèle dans le cas d'un écoulement dans un canal droit, partie élémentaire d'un milieu poreux. Nous verrons ensuite que ce modèle ne prend pas en compte les interactions avec la paroi ainsi que l'impact de la géométrie.

#### 2.1 Modèle analytique

Pour déterminer une solution analytique, nous allons faire l'hypothèse que la hauteur du canal n'a pas d'influence sur le profil de vitesse. Sous cette condition, la vitesse ne dépend que de la distance y à la paroi et est du reste invariante dans la direction de l'écoulement x. Sous ces conditions et pour un écoulement stationnaire, l'équation du mouvement du fluide se réduit à [38] :

$$\frac{\partial \sigma}{\partial y} = \frac{\partial p}{\partial x} \tag{1.6}$$

Dans le plan de symétrie y = 0, la contrainte de cisaillement est nulle et on a  $\sigma(0) = 0$ . L'intégration de l'équation précédente donne donc :

$$\sigma(y) = y \frac{\partial p}{\partial x},\tag{1.7}$$

à la paroi nous avons donc :

$$\sigma_w = \frac{l}{2} \frac{\partial p}{\partial x}.\tag{1.8}$$

Où l est la largeur du canal. La perte de pression étant faible dans les tubes de connexion, le gradient de pression est :

$$\frac{\partial p}{\partial x} = \frac{\Delta p}{L}.\tag{1.9}$$

L'équation (1.9) se réduit alors à  $\sigma_w = \frac{l\Delta p}{2L}$  équation utilisée pour déterminer la contrainte à la paroi. Pour obtenir le profil de vitesse, nous allons repartir de l'équation de Herschel-Bulkley qui donne la contrainte en fonction du taux de cisaillement :  $\sigma = \sigma_c + K\dot{\gamma}^n$  ce qui donne :

$$\dot{\gamma}(y) = \begin{cases} \left(\frac{\sigma(y) - \sigma_c}{K}\right)^{-\frac{1}{n}} & \text{si } \sigma(y) > \sigma_c, \\ 0 & \text{si } \sigma(y) \le \sigma_c. \end{cases}$$
(1.10)

Or :  $\dot{\gamma}(y) = \frac{\partial v(y)}{\partial y}$  et l'intégration de l'équation précédente avec les bonnes conditions aux limites et à l'aide de l'équation (1.6), nous donne le profil de la vitesse :

$$v(y) = \begin{cases} \frac{n}{n+1} (\frac{2}{l} \frac{K}{\sigma_w}) ((\frac{\sigma_w}{K} - \frac{\sigma_c}{K})^{(\frac{1}{n}+1)} - (\frac{\sigma_w}{K} \frac{2y}{l} - \frac{\sigma_c}{K})^{(\frac{1}{n}+1)}) & \text{si } \frac{\sigma_c}{\sigma_w} \cdot \frac{l}{2} < y < \frac{l}{2}, \\ \frac{n}{n+1} (\frac{2}{l} \frac{K}{\sigma_w}) (\frac{\sigma_w}{K} - \frac{\sigma_c}{K})^{(\frac{1}{n}+1)} & \text{si } 0 < y < \frac{\sigma_c}{\sigma_w} \cdot \frac{l}{2}, \\ 0 & \text{si } \sigma_w < \sigma_c. \end{cases}$$
(1.11)

Avec pour constantes l, la largeur du canal, L la longueur du canal, et  $\sigma_c, K, n$  les trois valeurs caractéristiques entrant dans la relation d'Herschel-Bulkley. En intégrant une nouvelle fois, on obtient la vitesse moyenne :

$$\langle v_{HB} \rangle = \begin{cases} \frac{2n}{(2n+1)(n+1)} \frac{K}{\sigma_w} \left( \frac{\sigma_w}{K} - \frac{\sigma_c}{K} \right)^{\frac{1}{n}+1} \left( (n+1)\frac{l}{2} + n\frac{l}{2}\frac{\sigma_c}{\sigma_w} \right) & \text{si } \sigma_w > \sigma_c, \\ 0 & \text{si } \sigma_w \le \sigma_c. \end{cases}$$
(1.12)

On peut exprimer l'équation (1.12) en fonction d'un nombre sans dimension. On introduit le nombre de Bingham que l'on définit comme  $Bi^{-1} = \frac{\sigma_w - \sigma_c}{\sigma_c}$ . On obtient alors :

$$\langle v_{HB} \rangle = \begin{cases} \frac{nl}{(2n+1)(n+1)} (\frac{\sigma_c}{K})^n \frac{1}{1+Bi} (Bi)^{-\frac{1}{n}} \left( (n+1) + \frac{n}{1+Bi^{-1}} \right) & \text{si } Bi > 0, \\ 0 & \text{si } Bi \le 0. \end{cases}$$
(1.13)

Nous avons ainsi l'équation analytique d'un écoulement de fluide à seuil dans un canal droit. Nous allons maintenant voir l'impact de la paroi sur l'écoulement.

#### 2.2 Interaction paroi/fluide : Glissement

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, un fluide à seuil peut être modélisé par une loi d'Herschel-Bulkley :  $\sigma = \sigma_c + K\dot{\gamma}^n$  avec  $\sigma_c$  la valeur du seuil. Pourtant comme nous allons le décrire ici, ce modèle ne permet de décrire que l'écoulement dans une géométrie rugueuse, sans prendre en compte notamment l'interaction entre le fluide et la paroi. En effet, ces fluides possèdent une microstructure complexe comme nous l'avons vu en première partie. Lors d'un écoulement le long d'une paroi, les particules composant la microstructure du fluide ne peuvent pas pénétrer le mur. Il apparaît alors, le long de la paroi, une zone de déplétion en particules. La viscosité du fluide porteur étant plus faible que le matériau, cette zone est alors marquée par un fort taux de cisaillement. La vitesse à la paroi devient non nulle. On parle alors de glissement à la paroi que l'on peut schématiser par la figure 1.9. Le glissement n'est pas propre au fluide à seuil. Il peut apparaître pour la plupart des fluides structurés. Dans le cas de parois ayant subi des traitements particuliers les ayant rendu hydrophobes, on observe même une vitesse de glissement pour des fluides newtoniens comme l'eau ou le glycérol [39].

Plus généralement, dans une revue sur le glissement des fluides à seuil, Barnes [40] donne 4 conditions ayant un impact important sur le glissement :

- la taille des particules de la phase disperse,
- largeur de la géométrie, les parois lisses,
- les faibles vitesses,

#### 2. Écoulement dans un canal droit



FIGURE 1.9 – Description schématique du phénomène de glissement à la paroi. La vitesse à la paroi est non nulle.

 les charges électrostatiques présentes à la surface de la paroi et sur les particules de la phase disperse.

On comprend alors que le phénomène de glissement peut apparaître quelle que soit la géométrie si l'on ne fait pas attention à ces conditions. Mesurer proprement le seuil devient alors une première difficulté. En effet, loin du seuil, la rhéologie domine complètement l'écoulement et quelle que soit la géométrie les courbes d'écoulement se superposent. Ceci est dû au fait qu'au delà d'une gamme de contrainte que Meeker *et al.* [41] estiment à  $1.5 \times \sigma_c$  le glissement est négligeable. En revanche, si l'on se rapproche du seuil alors les courbes d'écoulement deviennent dépendantes du glissement. Il apparaît alors un consensus dans la littérature pour écrire que la vitesse se décompose en une vitesse de glissement  $V_g$  et la vitesse du bulk obtenue au rhéomètre  $V_{HB}$ . On peut notamment observer ce résultat dans les expériences de Meeker *et al.* [41] dans une géométrie de Couette et Perèz-Gonzales *et al.* [42] dans un tube capillaire (présenté figure 1.10). Les deux obtiennent bien la vitesse du cas sans glissement à condition de retirer la vitesse à la paroi.

L'enjeu est donc de comprendre comment se comporte la vitesse de glissement. Une première explication est donnée par Meeker *et al.* [41]. À l'aide d'un modèle de lubrification élastohydrodynamique de glissement et en schématisant le fluide comme une bille déformable à la paroi de la géométrie comme représentée sur la figure 1.11, ils montrent que la vitesse de glissement dépend de la contrainte à la paroi. Ils donnent ainsi la vitesse de glissement  $V_g$  en fonction de la contrainte à la paroi modélisées par une loi de puissance  $\frac{V}{V^*} = (\frac{\sigma}{\sigma_c})^2$  avec  $V^*$  une vitesse caractéristique. La plupart des auteurs [41, 43, 25, 44] s'accordent ainsi pour dire que la loi de puissance est comprise entre 1 et 2 suivant la concentration de la phase dispersée, excepté Perèz-Gonzales *et al.* [42] qui obtiennent une puissance inférieure à 1. La seconde difficulté est de mesurer un seuil. Meeker *et al.* [41] observent que le seuil effectif mesuré dans cette cellule est systématiquement plus faible



FIGURE 1.10 – Mesure expérimentale du glissement à la paroi pour l'écoulement d'une solution de carbopol (0.2%wt) parsemée de traceurs dans un capillaire en verre. Les profils de vitesse sont obtenus à l'aide d'un dispositif de micro-PIV. La flèche bleue donne le sens de l'écoulement. Figure extraite de [42].

que celui mesuré au rhéomètre avec une géométrie rugueuse. Ils introduisent la notion de seuil de glissement  $\sigma'_c$ . Lorsque la contrainte à la paroi est plus faible que la contrainte seuil, l'écoulement est dit « bouchon » (ou plug en anglais), la vitesse de glissement domine complètement et est égale sur toute la largeur du canal, ceci est illustré sur la première image de la figure 1.10. Le seuil de glissement est trouvé dans d'autres études [45, 25, 43], mais sur des parois en verre peut être inexistant [42, 44, 46]. Seth *et al.* [46] mettent notamment en évidence ce phénomène. Ils montrent qu'avec une même solution ils obtiennent un seuil de glissement sur une lamelle préalablement recouverte de polymère. En revanche, ce seuil devient négligeable pour une lame de verre. Enfin Divoux *et al.* [25] confirment que la puissance décroit avec la concentration. Jofor *et al.* [43] ainsi que Geraud [44] montrent l'impact du confinement sur la valeur du seuil, nous reviendrons plus particulièrement sur ce phénomène par la suite.

Il est utile maintenant d'avoir un ordre de grandeur de la longueur de déplétion. Meeker *et al.* [41] donnent ainsi la longueur de déplétion comme  $\delta^2 \propto \frac{\eta_s r_0}{p_{osm}} V_s$  avec  $p_{osm}$  la pression osmotique,  $\eta_s$  la viscosité du solvant et  $r_0$  le rayon de la facette au contact avec la paroi (figure 1.11). Les auteurs [41, 43] trouvent une valeur de quelques nanomètres.

Nous avons vu l'impact de l'interaction entre la paroi et le fluide, nous allons maintenant montrer que la géométrie elle-même peut modifier la loi d'écoulement du fluide.

#### 2.3 Impacts de la géométrie

#### Phénomène de confinement : modèle non local

Les milieux poreux peuvent avoir des tailles de pore de quelques micromètres. La taille de la structure du fluide à seuil devient alors non négligeable par rapport à la taille de pore. On parle alors de confinement. La rhéologie obtenue au rhéomètre dans le volume ne peut donc plus s'appliquer. Il est nécessaire de prendre en compte le caractère discret des particules constituant le fluide. Pour mettre en écoulement le fluide, il faut que la



FIGURE 1.11 – Représentation schématique d'une « particule de fluide » et du film de lubrification formé lorsqu'une particule molle est pressée contre un mur. Pour plus de clarté, la forme de la partie supérieure de la particule est non perturbé. Figure extraite de [41].



FIGURE 1.12 – Représentation schématique de l'écoulement d'une émulsion par réarrangement. Figure extraite de [47].

particule se mette en mouvement par rapport aux autres. La particule a besoin d'une énergie supérieure au seuil microscopique pour se déformer et se mettre en mouvement. La mise en écoulement est donc due à la percolation des réarrangements dans le fluide, comme schématisé sur la figure 1.12.

Ce phénomène de confinement a pour effet de modifier les vitesses de l'écoulement dont un exemple est donné sur la figure 1.13. Plusieurs types de fluides dans plusieurs configurations d'écoulement en confinement ont été observés [44, 47, 48] mais le sujet fait encore débat. Afin de caractériser cette coopérativité de l'écoulement, il est nécessaire



FIGURE 1.13 – À gauche, profils de vitesse expérimentaux obtenus dans une géométrie canyon de 250 $\mu m$  pour différentes pertes de charges pour une emulsion eau/silicone. En trait plein, les profils théoriques obtenus à l'aide des paramètres d'ajustement obtenus aux rhéomètres. Au centre, les mêmes profils prédits par le modèle non local (équation (1.14)) avec une unique valeur du paramètre  $\xi = 22.3\mu m$ . À droite, les courbes de rhéologie locale. Figure extraite de [47].

d'introduire la fluidité f. En régime stationnaire, la fluidité obéit à une équation non locale faisant intervenir une longueur de corrélation  $\xi$  caractérisant la coopérativité dans le fluide. Dans sa forme la plus simple, on a le modèle [49] :

$$\xi^2 \frac{\partial^2 f}{\partial^2 x} + f_b[\sigma] - f = 0 \tag{1.14}$$

avec

$$\begin{cases} f_b[\sigma(x)] = \frac{1}{\sigma(x)} \left(\frac{\sigma(x) - \sigma_c}{K}\right)^n & \text{si} \quad \sigma(x) > \sigma_c \\ f_b[\sigma(x)] = 0 & \text{sinon} \end{cases}$$
(1.15)

Ainsi si  $\xi$  est petit devant  $f_b$ , on retrouve la rhéologie dans le volume.

#### Géométrie de type convergent-divergent : limite de la loi de lubrification

À bas Reynolds et dans un milieu confiné, l'écoulement d'un fluide newtonien dans une géométrie de type convergent-divergent s'effectue d'un bout à l'autre de chaque paroi. Les études à l'échelle du pore pour un fluide à seuil ont mis en évidence des phénomènes plus complexes. Ainsi dans ce type de géométrie, figures 1.14 et 1.15, on peut observer trois zones d'écoulement. La partie centrale s'écoule à la même vitesse, elle est en régime



FIGURE 1.14 – Evolution exéprimentale du volume de fluide mobilisé (carbopol) dans un pore modèle pour différents débits, du plus faible à gauche vers le plus élevé à droite : Bi = 0,23 à Bi = 1,22 en prenant le rayon de la petite conduite pour calculer le nombre de Bingham. La partie centrale de chaque image représente le fluide en écoulement et les parties hautes et basses, le fluide à l'arrêt. (Données extraites de [50]).

bouchon. Sur les bords, l'écoulement est à l'arrêt, on parle de zone morte. La partie cisaillée se situe alors entre les deux précédentes zones. Ces zones sans écoulement ne sont pas décrites par le modèle rhéologique (équation (1.12)). Balhoff et Thomson [51] sont les premiers à avoir observé dans une simulation numérique ce phénomène. Mendes *et al.* [50], dans une étude numérique et expérimentale, s'intéressent à l'écoulement d'un fluide à seuil (carbopol) dans une géométrie de type expansion contraction abrupte axisymétrique (figure 1.14). Ils observent près des murs une zone sans écoulement. Sur la figure 1.14 on peut voir cette zone augmenter avec le *Bi*. La zone morte est plus grande lorsque l'on augmente le rayon de la partie centrale et diminue quand le rapport d'aspect longueur/rayon de la zone centrale augmente.

Chevalier [52] étudie l'écoulement dans un pore modèle avec une géométrie du même type que la précédente et observe les profils de vitesse à l'aide d'un IRM. On observe une cartographie des vitesses type sur la figure 1.15 sur une géométrie de 7cm de diamètre. Dans cette géométrie, le profil de vitesse ne ressemble en rien à celui d'un écoulement newtonien en conduite cylindrique. Nous distinguons là aussi trois zones : en rouge, une zone morte sans écoulement, en bleu un plug où tout le fluide s'écoule à la même vitesse, et en vert une couche limite de faible épaisseur est mise en évidence au niveau de la largeur cisaillée dans le pore. Les parties centrales de l'écoulement restent en régime solide tout au long de la traversée de la boite et 60% du fluide est à l'arrêt. Ils observent un changement



FIGURE 1.15 – Carte de vitesse dans une section longitudinale d'un pore de 7cm (diamètre et longueur de la boite) pour V = 0.16 mm/s pour un écoulement de carbopol dans une géométrie de type expansion contraction abrupte axisymétrique. La vitesse (en microns par seconde) dans chaque pixel est représentée par une couleur selon l'échelle en bas à droite. La flèche indique le sens de l'écoulement, i.e. de haut en bas. Figure extraite de [52].

entre deux régimes d'écoulement autour de Bi = 10. Pour Bi > 10 il n'y a plus d'évolution du profil de vitesse de la zone plug. Il complète cette étude par une analyse numérique avec Flow-3D. Il montre ainsi que le confinement longitudinal engendré par le pore est bien à l'origine du profil de vitesse observé au centre du pore sous IRM. Si le pore n'est pas assez large, il n'y a pas d'interaction entrée-sortie : c'est la paroi latérale du pore qui impose l'écoulement. Il est important de noter que Chevalier *et al.* [52, 53] n'ont pas observé de zone sans écoulement dans un milieu poreux. Ils n'observent pas de zone morte équivalente à l'échelle d'un pore.

# 3 Écoulement d'un fluide à seuil dans un milieu poreux

L'écoulement de fluides à seuil dans des milieux poreux apparaît dans de nombreux procédés industriels : l'extraction de pétrole lourd, l'injection de ciment dans un sol pour les fondations d'un bâtiment ou le colmatage d'une fissure, ou encore la dépollution d'une boue souillée. Pour ces applications, il est utile de connaître la loi d'écoulement à cette échelle et comment elle peut se déduire d'une mesure faite au rhéomètre. 3. Écoulement d'un fluide à seuil dans un milieu poreux



FIGURE 1.16 – Modèle des tubes capillaires parallèles.

#### 3.1 Généralités

Dans un premier temps, nous allons évoquer quelques généralités sur les milieux poreux. Un milieu poreux est l'ensemble des matériaux au travers desquels un liquide peut s'écouler. Que ce soit une roche poreuse, ou un amas de sable, ces milieux sont composés de nombreux pores et canaux interconnectés ou non entre eux. L'écoulement en leur sein ne peut donc pas être décrit de façon microscopique et il est nécessaire d'introduire des grandeurs globales.

Le premier à décrire l'écoulement d'un fluide newtonien à travers un milieu poreux fut Darcy [54] en 1856, il met en place une formule empirique :

$$V = \frac{k}{\mu} \frac{\Delta P}{h} \tag{1.16}$$

avec V la vitesse moyenne dans le milieu poreux,  $\mu$  la viscosité du fluide,  $\Delta P$  la perte de charge aux bornes du poreux et h la hauteur. Il introduit ainsi une nouvelle variable caractérisant le milieu poreux : k, la perméabilité exprimée en  $m^2$ . Elle définit l'aptitude d'un matériau à laisser s'écouler un fluide. Plus k est élevé, plus le fluide s'écoule rapidement pour une même différence de pression entre l'entrée et la sortie.

#### 3.2 Modèle des tubes parallèles

Toute la difficulté consiste donc à déterminer k. Plusieurs modèles analytiques ont été mis au point afin de déterminer sa valeur. Nous allons étudier le plus simple : celui des tubes parallèles. Il s'agit de considérer le milieu poreux comme un assemblage de tubes capillaires parallèles (figure 1.16).

Tout d'abord, on donne le débit dans un tube capillaire unique obtenu en intégrant le profil de Poiseuille dans un tube de rayon R et de longueur L :

$$q = \frac{\pi R^4}{8\eta} \frac{\Delta p}{L} \tag{1.17}$$

On considère maintenant que l'écoulement se fait dans plusieurs de ces tubes mis en parallèle avec n la densité de tube par unité de surface. On obtient alors :

$$Q = nq = \frac{n\pi R^4}{8\eta} \frac{\Delta p}{L} = \frac{k}{\eta} \frac{\Delta p}{L}$$
(1.18)

On trouve par identification  $k = \frac{n\pi R^4}{8} = \frac{R^2 \epsilon}{8}$  avec  $\epsilon$  la porosité du milieu poreux. Ce modèle peut être ajusté à la marge en prenant notamment en compte la tortuosité. Une autre approche [38] consiste à prendre en compte l'aire spécifique du modèle des tubes parallèles. On retrouve alors l'équation de Kozeny-Carman  $k = \frac{1}{6} \frac{d^2 \epsilon^3}{A_s^2 T}$ . Dans le cas d'un empilement de billes, la perméabilité devient  $k = \frac{\epsilon^3 d^2}{180(1-\epsilon)^2}$ .

#### 3.3 Modèles et approche expérimentale pour un fluide à seuil

Nous venons de voir le modèle des tubes parallèles dans le cas d'un fluide newtonien. Nous allons maintenant présenter la façon dont ce modèle peut être adapté à un fluide à seuil ainsi que les difficultés qui peuvent en découler.

La première méthode consiste à modifier un paramètre de la loi de Darcy. Christopher et Middleman [55] (1965) sont les premiers à adapter le modèle de tube capillaire à un fluide rhéofluidifiant. La vitesse moyenne varie alors comme une loi de puissance de la pression :  $V = \left(\frac{k}{H}\frac{\delta P}{L}\right)^{\frac{1}{n}}$ , H dépendant des effets non linéaires du fluide, de la porosité et de la perméabilité. Sadowski *et al.* [56] (1965) appliquent le modèle pour un fluide viscoélastique. Cette fois-ci, ils reprennent l'équation de Darcy et introduisent la notion de viscosité effective  $\mu_{eff}$  dépendant de la différence de pression et du comportement non linéaire du fluide. Vradis *et al.* [57] (1993) appliquent le modèle des tubes capillaires à un fluide de Bingham. La perméabilité k dépend alors de la contrainte seuil et de la différence de pression. Elle est nulle si la pression se trouve inférieure à une pression seuil. Chase et Dachavijit [58] (2003) adaptent, cette fois-ci pour un fluide d'Herschell-Bulkley, l'équation Kozeny-Carman avec 3 paramètres dont un déterminé expérimentalement.

Le second axe de recherche consiste à chercher une loi de Darcy généralisée pour les fluides à seuil. Pascal [59] puis Al-Fariss et Pinder [60] remarquent que la loi d'écoulement d'un fluide à seuil à travers un milieu poreux est de la même forme que l'expression d'Herschell-Bulkley, comme nous pouvons le voir sur la figure 1.17. Ils adaptent alors le modèle des tubes parallèles et mettent le résultat sous la forme :

$$\nabla P = \nabla P_c + \frac{k}{\mu_{eff}} V^n \tag{1.19}$$

Ils définissent une pression seuil  $\nabla P_c$  en dessous de laquelle le fluide est figé dans le milieu poreux. Cette pression seuil est de plus trouvée proportionnelle à la contrainte seuil



FIGURE 1.17 – Courbes d'écoulement effectives pour l'injection à travers un milieu poreux (D = 2mm) de différentes solutions de Carbopol :  $\tau_c = 8Pa$ ,  $k = 3.6Pa.s^n$ , n = 0.36(carrés);  $\tau_c = 55Pa$ ,  $k = 23.5Pa.s^n$ , n = 0.36 (cercles);  $\tau_c = 78Pa$ ,  $k = 33Pa.s^n$ , n = 0.36(triangles). Les lignes continues sont les ajustements du modèle de Herschel-Bulkley réalisés sur ces données. Figure extraite de [52].

et dépend des propriétés géométriques du milieu poreux. La viscosité effective dépend des coefficients de Herschell-Bulkley k et n et des propriétés géométriques du milieu. Al-Fariss et Pinder prennent aussi en compte la tortuosité du système dans la pression seuil et la viscosité effective contrairement à Pascal.

Malvaux *et al.* [61] (2013) et de Castro *et al.* [62] (2014) proposent d'utiliser des fluides à seuil pour déterminer la porosité d'un milieu poreux afin de remplacer les mesures classiques : optique ou par injection de mercure. Pour cela, ils proposent d'utiliser là aussi un modèle de tubes capillaires parallèles. Ils injectent le fluide et mesurent loi d'écoulement débit pression. Le débit total est alors défini comme la somme des débits élémentaires pondérés par la distribution de taille de pore :

$$Q_v(\nabla P) = \int_{R_0 = \frac{2\tau_c}{\nabla P}}^{\infty} q_v(r, \nabla P) p(r) dr$$
(1.20)

En inversant cette relation, ils obtiennent p(r) la distribution de taille des pores. Cette méthode permet de retrouver les pores de l'ordre de quelques centaines de  $\mu m$  malgré un certain décalage des résultats comparés à la méthode optique.

Malgré tout, les différents modèles basés sur le modèle de tubes capillaires parallèles collent mal à la réalité des expériences. Balhoff *et al.* [63] (2005) puis Sochi *et al.* [64]
(2010) montrent alors que ces différents modèles ne prennent pas en compte la complexité de la géométrie, notamment les géométries de type convergent-divergent. Contrairement à l'écoulement à travers un capillaire, l'écoulement d'un fluide à seuil ne mobilise pas nécessairement un volume de fluide constant. Ils décident donc d'adapter le modèle des canaux parallèles en prenant en compte les restrictions/ouvertures de chaque pore par simulation numérique à l'aide d'un « pore network model ». Balhoff *et al.* réalisent la simulation sur un fluide de Bingham et trouvent une bonne corrélation avec l'expérience. Sochi *et al.* utilisent un fluide de Herschell-Bulkley et comparent le résultat pour un poreux et pour un canal droit dont le rayon moyen est comparable. À faible gradient, ils constatent que l'écoulement est favorisé dans le milieu poreux où statistiquement le fluide peut trouver des pores de rayon supérieur à celui de tube, et observent l'inverse pour les fortes pressions.

Talon et Bauer [65] (2013) puis Chevalier et Talon [66] (2015) s'intéressent, eux aussi à l'aide de simulation numérique, particulièrement aux faibles débits. Ils mettent en évidence l'apparition d'une richesse de phénomènes à l'approche du seuil. Lors d'un écoulement de fluide à seuil, le taux de cisaillement est nul dans les zones où la contrainte à la paroi est inférieure à la contrainte seuil. Proche du seuil global du milieu poreux, il existe donc coexistence au sein d'une grande zone sans écoulement d'une zone allongée qui concentre l'écoulement. Il doit donc exister un chemin où la contrainte à la paroi seuil globale du milieu poreux pour laquelle le fluide se mettra à couler. Afin de calculer cette pression seuil globale, il s'agit alors de rechercher le canal où la distribution des largeurs b(s) sera la plus grande parmi tous les chemins C connectés à l'entrée et la sortie du poreux :

$$\Delta P_c = \sigma_c \min_C \int \frac{1}{b(s)} ds \tag{1.21}$$

Ils ont aussi mis en évidence la décroissance en cascade du nombre de chemins par lesquels l'écoulement se produit. Avec succès, ils ont d'ailleurs démontré l'existence d'une dynamique en loi de puissance permettant une analogie avec des phénomènes critiques. Le mécanisme s'explique par l'existence d'une distribution de seuil local d'écoulement due à la distribution de taille de pore.

Les résultats obtenus sont présentés sur les figures 1.18 et 1.19. Pour les hauts débits, le fluide de Bingham s'écoule dans tous les canaux. Il s'agit de la première image de la figure 1.18. La relation débit/pression est linéaire et est équivalente à loi de Darcy à laquelle on soustrait le seuil :  $Q \propto (\Delta P - \Delta P_c)$ . La pression diminue progressivement. La contrainte à la paroi de certains canaux tombe en dessous de la contrainte seuil du fluide. L'écoulement se fige dans ces canaux. Nous pouvons voir cette situation sur les images 2 et 3 de la figure 1.18. Le débit devient proportionnel au nombre de chemins qui se ferment.



FIGURE 1.18 – De gauche à droite, la pression diminue. En noir, la matrice solide. En rouge, nous avons les chemins où s'effectue l'écoulement. Apparition progressive de chemins préférentiels.

On observe un changement de pente de la courbe d'écoulement (figure 1.19). La relation débit/pression devient  $Q \propto (\Delta P - \Delta P_c)^2$ . On nomme cette étape le régime de chemins. La pression diminue encore. Il ne reste alors plus qu'un seul chemin où l'écoulement s'effectue, la relation débit/pression redevient linéaire :  $Q \propto (\Delta P - \Delta P_c)$ .



FIGURE 1.19 – Débit adimensionné en fonction de la différence de la pression à la pression seuil adimensionnée par la contrainte seuil. On observe 3 régimes. Pour les forts débits, la loi d'écoulement (en trait plein) est linéaire. Ensuite s'installe le régime de chemins, la relation débit pression devient  $Q \propto (\Delta P - \Delta P_c)^2$  (en trait pointillé). Lorsqu'il ne reste plus qu'un chemin, la relation devient de nouveau linéaire (en trait plein).

Contrairement aux travaux précédents qui tentent d'ajuster un modèle théorique de tubes à des résultats expérimentaux, Clain [67] puis Chevalier [52] ont mené une étude expérimentale systématique d'écoulement dans un lit de billes. Ainsi Clain montre que les courbes d'écoulement de différentes expériences se superposent sur une courbe maitresse lorsqu'on les représente selon  $(Bi^{-1}, \tau^*)$  avec  $Bi = \frac{K}{\tau_0} (\frac{\eta V}{D})^n$  le nombre de Bingham et  $\tau^* = \frac{\nabla p}{\nabla p_0} = \lambda \frac{D}{\lambda} \nabla P$  la pression normalisée par la pression seuil avec D le rayon moyen,  $\lambda$  et  $\eta$  deux nombres caractéristiques liés aux caractéristiques du milieu poreux. Chevalier complète cette étude en réalisant une expérience identique en changeant différents paramètres mais surtout en obtenant la distribution des vitesses dans le milieu poreux à l'aide d'un IRM. Il en déduit une loi de Darcy généralisée pour un fluide à seuil s'écoulant à travers un empilement de billes :

$$\nabla P = \alpha \tau_c + \beta K (\frac{V}{D})^n \tag{1.22}$$

Le coefficient d'ajustement  $\alpha$  semble lié au chemin le plus large pour initier l'écoulement et  $\beta$  à la distribution de taille de pore. Chevalier *et al.* [52, 53] proposent une méthode analytique pour les obtenir. Plus surprenant, la mesure par IRM montre que l'ensemble des distributions de vitesse des différents fluides se superposent. La nature du fluide, newtonien, rhéofluidifiant ou à seuil, ne semble donc pas intervenir sur la distribution des vitesses dans un milieu poreux constitué de billes de verre. De plus à faible débit, ils n'observent pas de chemin préférentiel ni de zone morte.

# 4 Motivations

L'objectif de mon étude est d'apporter des éléments de compréhension du rôle de la rhéologie du carbopol sur la fermeture des chemins d'écoulement d'un milieu poreux. Ceci demande de combiner une bonne caractérisation de la rhéologie et une visualisation propre de l'écoulement en fonction des pressions imposées. L'utilisation de rhéomètres de grandes qualités est comme le démontrent les études déjà publiées un outil incontournable. J'en ai utilisé plusieurs à ma disposition, la confrontation des données avec les modèles existants m'a permis de caractériser proprement mon fluide. Les études sur les milieux poreux sont essentiellement numériques ou faites sur des milieux non transparents ne permettant pas une visualisation précise de l'écoulement. L'utilisation de la microfluidique va permettre d'avoir une vision précise des écoulements et d'apporter des résultats inédits.

### 4. Motivations

En résumé :

- Un fluide à seuil est un fluide ne s'écoulant qu'au-delà d'un seuil  $\sigma_c$ . Ce comportement est dû à la structure mésoscopique complexe du matériau. On peut modéliser l'écoulement en régime permanent de ce type de fluide par la loi de Hershel-Bulkley  $\sigma = \sigma_c + K \dot{\gamma}^n$ . Le nombre sans dimension utilisé pour décrire ce type d'écoulement est le nombre de Bingham  $Bi = \frac{\sigma_c l^n}{KV^n}$ .
  - Il est important de bien caractériser les effets supplémentaires qui peuvent apparaitre dans un fluide à seuil. La thixotropie, notamment, a un impact sur le seuil et la courbe d'écoulement. Au rhéomètre, une visualisation du profil de vitesse montre l'apparition d'une discontinuité dans l'écoulement appelée bande de cisaillement. Les modèles prenant en compte la thixotropie sont de la forme :  $\sigma = \eta[\lambda(t), \dot{\gamma}]\dot{\gamma}$  et  $\frac{\partial \lambda}{\partial t} = f(\dot{\gamma}, \lambda(t))$ .
- La loi d'écoulement d'un fluide à seuil peut aussi être impactée par la paroi de la géométrie mais aussi par le type de géométrie utilisé.
- L'écoulement d'un fluide à seuil dans un poreux peut être modélisé par une loi de Darcy généralisé :  $Q = \alpha (\Delta P \Delta P_c)^{\beta}$ .
- Les simulations numériques montrent l'apparition de chemins préférentiels proches de la pression seuil. Il n'y a aucune observation directe de ce phénomène. Les distributions de vitesse de Chevalier n'indiquent pas la présence de ces chemins.

État de l'art

40

# Chapitre 2

Matériels et méthodes

# Introduction

Dans ce chapitre, nous décrivons dans un premier temps les différents protocoles ayant permis la réalisation des milieux poreux grâce à l'utilisation d'outils développés pour la microfluidique. Dans un second temps, nous présentons les fluides étudiés et les méthodes de préparation. Enfin, nous détaillons les différentes méthodes de mesure mises en place pour caractériser les écoulements.

# 1 Réalisation des milieux poreux

# 1.1 Réalisation des motifs

Les dessins des milieux poreux ont été réalisés à l'aide d'une routine Matlab. Le motif du milieu poreux est un réseau carré de 5*cm* de côté contenant  $110 \times 110$  canaux. Comme nous pouvons le voir sur la figure 2.1, l'entrée et la sortie sont ramifiées, suivies d'une zone de largeur 3*mm* qui s'étend sur toute la largeur du réseau. Le but de cette zone est d'homogénéiser les pressions. Pour reproduire l'hétérogénéité d'un milieu poreux naturel, la largeur des canaux est obtenue selon une distribution aléatoire de loi log-normal [18] autour d'une valeur moyenne de  $200\mu m$  comme présentée sur la figure 2.2. La loi de distribution en log-normal a été choisie pour éviter d'avoir des largeurs de canaux nulles. Afin de générer 3 milieux poreux présentant chacun une hétérogénéité différente, nous avons fait varier l'écart type de chacun d'entre eux. Nous avons tracé les 3 distributions de taille de canaux sur la figure 2.2. Les canaux ont été tournés de 45° afin de favoriser la séparation des lignes d'écoulement aux intersections. La résolution du motif est de  $2\mu m$  par pixel.

Les motifs sont ensuite imprimés (par l'entreprise Selba) par phototraçage laser haute précision (25400 dpi). Sur le masque, les canaux sont transparents sur fond noir. Ainsi seules les zones éclairées sont réticulées. Les dessins des canaux droits et des géométries simples ont été obtenus avec le logiciel CléWin.

# **1.2** Microfabrication : Soft Lithography

Les micromodèles ont été obtenus par un procédé de microfabrication appelé « Soft Lithography » [68, 69] dont j'ai adapté certaines étapes. La réalisation se fait en deux parties : dans un premier temps, un moule est réalisé par photolithographie à l'aide d'une résine photo-réticulable (SU8). La seconde étape consiste à se servir du moule pour obtenir la puce microfluidique en ajoutant du PDMS (PolyDiMethylSiloxane), un élastomère transparent.



FIGURE 2.1 – À gauche, motif d'un milieu poreux de  $5 \times 5cm$ . De chaque côté, on peut voir les entrées et les emplacements pour la connectique du capteur de pression. À droite, vue rapprochée des canaux.



FIGURE 2.2 – Distributions log-Normal des largeurs de canal des trois réseaux considérés :  $\sigma_w = 25$  (en bleu), 50 (en violet), 100 $\mu m$  (en noir). La largeur moyenne des canaux obtenue est de  $\langle w_{25} \rangle = 199.9 \mu m$ ,  $\langle w_{50} \rangle = 199.8 \mu m$  et  $\langle w_{100} \rangle = 199.3 \mu m$ .

### Réalisation du moule

Nous avons cherché à réaliser des milieux poreux dont les pores sont de section rectangulaire avec un fort rapport d'aspect afin de se rapprocher des conditions proches d'un écoulement entre deux plans parallèles. Pour maximiser le rapport d'aspect, nous avons été contraints de chercher à obtenir des hauteurs de canaux de l'ordre de  $600\mu m$ . Ces hauteurs ne sont pas habituelles en microfluidique, ce qui nous a obligé à diviser en deux étapes le processus d'étalement.



FIGURE 2.3 – Schéma représentant la fabrication du moule par photolithographie : a) Nettoyage du wafer de silicium à l'aide d'acétone puis passage au plasma. b) Dépôt et étalement par centrifugation de la résine SU8 (« Spin coating »). c) Premier recuit. d) Dépôt et étalement par centrifugation de la seconde couche de résine. e) Second recuit.
f) Insolation aux ultraviolets à travers le masque de la géométrie voulue (transparent).
g) Recuit post exposition. h) Développement obtenu en plongeant la géométrie dans un bain de PGMEA. i) Passage au plasma et traitement silane (HMDS) afin de diminuer l'adhérence du PDMS.

La réalisation du moule se fait sur un wafer en silicium de 4 pouces de diamètre. Dans un premier temps (figure 2.3.a), le wafer est nettoyé de toute poussière à l'acétone puis à l'isopropanol. Pour favoriser le dépôt de la résine SU8, le wafer est exposé au plasma durant au moins une minute. On place ensuite le wafer sur le support d'une tournette puis on y dépose la résine SU8 2150. Il s'agit d'une résine photo-réticulable négative. Elle est spécialement bien adaptée à la réalisation de dépot de hauteurs allant jusqu'à  $300\mu m$ . Vu la gamme des hauteurs recherchées, il est nécessaire de faire particulièrement attention à la température de la pièce pour s'assurer d'une bonne répétabilité. Nous avons divisé en deux étapes le processus d'étalement par centrifugation. Nous avons cherché à obtenir tout d'abord une hauteur de  $300\mu m$ . Pour cela, nous programmons la tournette en deux étapes : tout d'abord, nous la faisons tourner à 500rpm avec une accélération de 300rpm/s durant 10s afin d'étaler la résine sur le substrat, puis nous la faisons tourner à 1750rpm avec la même accélération durant 30s afin d'obtenir l'épaisseur souhaitée. Pour réaliser ce moule en une seule couche, nous aurions dû le faire tourner à 1000rpm, une vitesse bien trop insuffisante pour permettre d'éliminer les bulles piégées dans la résine ou pour réduire les irrégularités de la surface libre.

Le wafer est ensuite placé sur une plaque chauffante à  $65^{\circ}C$  durant 10min. La plaque effectue ensuite une rampe jusqu'à  $95^{\circ}C$  en 25min puis un palier à cette température durant 100min. Cette étape de recuit est appelée « Soft Bake », elle consiste à faire évaporer le solvant de la résine pour la durcir. Ensuite le wafer est laissé 10min à température ambiante avant de refaire un étalement identique au premier. Nous avons observé l'apparition de bulles piégées ainsi que de quelques irrégularités dans le moule lors des premiers essais, phénomènes pouvant apparaître lors de la seconde cuisson. Nous avons donc optimisé les paramètres de cette étape afin d'éviter ces phénomènes. La cuisson commence à  $30^{\circ}C$  avec une rampe continue qui porte la température à  $65^{\circ}C$  en 30min. Un palier de 15min est fait, avant de porter la température à  $95^{\circ}C$  en 25min. Cette température est maintenue durant 100min avant une redescente progressive à  $30^{\circ}C$  en 30min.

Après une période de repos de 10min, le wafer est insolé à l'aide d'un aligneur UV pendant quelques secondes à travers le masque du milieu poreux, figure 2.3.f. Le temps d'exposition est fixé par la puissance de la lampe et l'épaisseur désirée. Dans notre cas, nous avons besoin d'une puissance de  $600mJ.cm^2$ .

Nous effectuons un dernier chauffage, figure 2.3.g, dit « Post Exposure Bake », afin d'améliorer la réaction de réticulation et d'évaporer les résidus de solvant encore présents. Nous avons optimisé les paramètres de ce recuit, nous commençons à  $30^{\circ}C$  puis effectuons une rampe jusqu'à  $95^{\circ}C$  durant 45min. Nous laissons le wafer à cette température durant 40min puis redescendons progressivement jusqu'à  $30^{\circ}C$ .

Ensuite vient l'étape du développement. Pour cela, nous plongeons le wafer dans un bain de développeur Propylene Glycol Monomethyl Ether Acetate (PGMEA). Cette étape permet de retirer la résine non réticulée et de faire apparaître les canaux. Afin d'accélérer cette étape, nous plongeons l'ensemble dans un bain à ultrason durant 10min. Pour faciliter le démoulage et preserver le moule, nous le plaçons au plasma durant 1min puis effectuons un traitement de surface à l'aide d'hexaméthyldisilazane (HMDS) durant 4min à  $95^{\circ}C$ .

La hauteur de ces canaux est ensuite vérifiée à l'aide d'un profilomètre optique (figure 2.4). On obtient une hauteur de canaux de  $615 \pm 15 \mu m$ . À partir de ce moule, nous allons pouvoir fabriquer notre milieu poreux.

### Réalisation de la puce

Dans notre étude, les pressions d'injection sont telles qu'il convient d'utiliser un collage par diffusion de réticulant [70]. Le principe est d'avoir un ratio réticulant/PDMS différent



FIGURE 2.4 – Visualisation d'une section du milieu poreux à l'aide d'un profilomètre optique. À gauche, vue de dessus. À droite reconstitution 3D obtenue à l'aide du logiciel Gwyddion. On observe la surface supérieure représentant les pores en violet, les puits, qui donneront les murs du milieu poreux, sont en rouge.

entre le bloc et la membrane. La membrane est réalisée avec un ratio de 1:12 et le bloc de 1:7. Cette méthode nécessite une cuisson partielle des deux parties. Le PDMS doit être suffisamment réticulé pour avoir une tenue mécanique mais doit laisser diffuser le réticulant lors du recuit afin de coller les deux parties ensemble. Le temps de cuisson partielle est donc crucial pour réussir cette étape. Pour s'assurer un système sans fuite, un système de plaquage de la puce entre deux disques de verre est ajouté au système. Nous allons maintenant décrire le processus de fabrication.

Tout d'abord, nous perçons deux lames de verre de 4 pouces de diamètre et de 1mm d'épaisseur à l'aide d'une sableuse afin de laisser passer la visserie et de faire entrer le tubing dans la puce. Nous préparons un mélange avec un ratio de 1:7 de réticulant et de PDMS (Sylgard 184) et le plaçons dans une cloche à vide pour éliminer les bulles créées lors du mélange. Une fois le fluide versé sur le moule, le tout est de nouveau mis sous vide afin d'éliminer les bulles résiduelles. L'ensemble est ensuite placé dans une étuve à  $65^{\circ}C$  durant 25min environ. Nous découpons alors tout le contour du wafer légèrement de biais afin de faciliter le pelage du bloc de PDMS (figure 2.5). L'étape du pelage pour le milieu poreux est particulièrement délicate. Il faut bien s'assurer de retirer les plots un à un sans les déchirer. Pour cela, il est nécessaire de soulever avec un petit angle le bloc de PDMS et de le tourner régulièrement afin de diminuer les contraintes sur les plots. Cette étape peut durer jusqu'à 45min. Un emporte pièce de 3mm nous sert ensuite pour percer les trous de passage des tuyaux et des visseries. Une fois le bloc de PDMS démoulé, nous effectuons un nouveau mélange de réticulant/PDMS mais cette fois avec un ratio 1:12. Une fois dégazé,

### 1. Réalisation des milieux poreux



FIGURE 2.5 – Schéma représentant le mode de fabrication de la puce en PDMS : a) Cuisson du bloc de PDMS, coulé sur la géométrie, dans une étuve à  $65^{\circ}C$ . b) Pelage du PDMS afin de retirer le bloc supérieur de la géométrie en résine. c) Collage par diffusion de réticulant du bloc de PDMS sur le disque de verre préalablement recouvert d'une membrane en PDMS. d) Puce prise entre deux disques de verre préalablement percés. Le tout est fixé par une série de vis. La lecture se fait de gauche à droite puis de haut en bas.

nous le versons sur un disque de verre et le centrifugeons pour l'étaler. L'étalement se fait en deux parties : tout d'abord avec une accélération de 300rpm/s et une vitesse de 500rpm durant 10s puis avec la même accélération et une vitesse de 2300rpm durant 30s. L'ensemble est plaçé à l'étuve durant 7min. Le bloc de PDMS est sorti de l'étuve et est directement posé sur ce disque de verre recouvert d'une membrane. Le collage par gradient de réticulant est quasi immédiat. Nous plaçons ensuite le second disque de verre au dessus et plaquons le tout à l'aide de plusieurs pinces avant d'étuver à  $65^{\circ}C$  de nouveau pendant deux heures. Le plaquage entre deux plaques déforme légérement les trous d'entrée pour les tubes (3mm de diamètre externe), il est donc nécéssaire de les fixer en rajoutant un peu de mélange PDMS/réticulant liquide autour des connectiques avant de les insérer dans la puce. La puce est de nouveau remise à l'étuve à  $65^{\circ}C$  durant au moins 1h afin de s'assurer de l'étanchéité du système.

Enfin, nous sortons la puce de l'étuve et la laissons reposer 30min environ à température ambiante. Nous pouvons maintenant insérer les vis de 2mm et serrer légèrement les écrous pour plaquer les deux disques. Le résultat final est observable sur la figure 2.6.



FIGURE 2.6 – a) Photographie des canaux du milieu poreux. b) Milieu poreux bloqué entre deux lames de verre, fixé par vis, auquel on a ajouté les tubes d'entrée et de sortie ainsi que les deux tubes du capteur de pression. La géométrie est remplie de glycérol bleu pour augmenter le contraste.

# 2 Puce macroscopique

J'ai aussi réalisé des puces macroscopiques avec une largeur de quelques millimètres. Pour ce faire, une microfraiseuse pilotée par ordinateur a été utilisée. Elle est munie d'une fraise miniature, cylindrique, en acier munie de 2 dents. Le diamètre de la fraise peut varier de la centaine de micromètres à quelques millimètres. La trajectoire de la fraise a été obtenue à l'aide d'une routine matlab que j'ai développée. La cellule est obtenue dans un bloc de PMMA. Ce bloc aura été préalablement surfacé. Une fois la géométrie obtenue, la puce est détourée. L'étanchéité est obtenue à l'aide d'un joint silicone complété par l'ajout de plusieurs vis autour du canal. Les connectiques sont assurées par des raccords rapides. On peut observer l'une de mes réalisations sur la figure 2.7.

# 3 Fluides utilisés

# 3.1 Fluide Newtonien : Glycérol

Le glycérol est un fluide newtonien ayant une viscosité supérieure à celle de l'eau. Le glycérol en solution (99%, Rectapur) présente une viscosité de 800Pa.s à  $20^{\circ}C$ .

### 3. Fluides utilisés



FIGURE 2.7 – Photographie d'une puce macroscopique, obtenue par microfraisage dans un bloc de PMMA, comprenant une géométrie en boucle. Le canal a une section carrée de 3mm.



FIGURE 2.8 – Polymère de Carbopol non hydraté [71].

# 3.2 Préparation du carbopol

Notre choix s'est porté sur le carbopol (ETD 2050 Lubrizol [71]). Il s'agit d'un polymère d'acide acrylique (figure 2.8) possédant de nombreux liens de réticulation. La masse molaire de ce polymère est mal connue mais est estimée dans une gamme de 1 - 4GDa [72]. Les fonctions carboxyliques vont perdre leurs ions  $H^+$  une fois mises en solution dans l'eau. Lors de l'ajout d'une base afin de neutraliser la solution, le polymère va former des pelotes enchevêtrées (figure 2.10) et gonfler dans l'eau [16], expliquant le comportement viscoplastique du matériau. Le fluide étant transparent, nous allons devoir y insérer des traceurs pour suivre l'écoulement du fluide.

Son indice optique étant proche de l'eau, il est difficile de réaliser des observations au microscope [16] des pelotes individuelles de carbopol. Une première observation au microscope électronique d'un gel de carbopol dont le solvant a été évaporé (figure 2.9) a été réalisée par Piau [16]. La figure 2.9 présente une structure en nid d'abeille avec une taille caractéristique de 2 à  $20\mu m$ . Il semblerait que cette forme de structure soit un artefact lié à la méthode de séchage du carbopol. Lee *et al.* [73] ont effectué une seconde étude à l'aide d'un instrument de diffusion de la lumière aux faibles angles. Ils observent qu'il existe deux tailles caractéristiques (figure 2.10) : une première à 400nm indépendante du pH ou de la concentration en carbopol; une seconde entre 10 et  $60\mu m$  variant fortement avec le pH et la concentration. Enfin une étude granulométrique [74] ainsi que deux études au microscope confocal [75, 76] (avec un ajout de colorant) confirment les résultats de Lee *et al.* [73] et montrent que la largeur de la distribution de taille des pelotes de carbopol diminue en fonction de la durée et de la vitesse du mélange.



FIGURE 2.9 – Structure en nid d'abeille observé par Piau [16] d'un gel de carbopol dont le solvant a été évaporé.

Le carbopol se présente sous forme de poudre blanche que nous délayons dans de l'eau Milipore en chauffant à 50°C. Ce mélange se fait jusqu'à hydratation complète de la poudre, soit 30min environ. La solution devient progressivement homogène et vitreuse. À ce stade, le pH de la solution est aux alentours de 3 dû à la libération d'ions  $H^+$ . Après une période de repos d'une dizaine de minutes à température ambiante, on mélange la solution à l'aide d'un mixeur (RW20, Ika, embout R1303) à 2000rpm à laquelle on ajoute les traceurs. On a utilisé deux types de traçeurs : des fluorosphères de 1µm (Life Technologies) et des billes de PMMA de 6 et 20µm. Tout en continuant de mélanger, la soude (23% en masse) est progressivement ajoutée par petite quantité afin de bien homogénéiser la solution et obtenir un pH proche de 7. La soude fait gonfler les pelotes de polymère jusqu'à gélification de la solution qui devient transparente. Le mélange se prolonge durant 30min environ. Enfin, la solution est dégazée sous cloche à vide. La solution est conservée dans un réfrigérateur pour limiter sa détérioration visible par l'apparition de colonies de bactéries.

Nous avons réalisé une mesure de granulométrie à l'aide d'un granulomètre laser (Mastersizer 2000). On obtient la distribution de taille en analysant la tache de diffraction du faisceau obtenue par l'interaction entre l'ensemble de particules et le faisceau laser inci-

### 3. Fluides utilisés



FIGURE 2.10 – Représentation schématique de la structure du gel de carbopol [77] auquel on a rajouté des traceurs (en gris). On peut observer des noyaux fortement réticulés entourés d'un milieu visqueux contenant des chaînes de polymères.



FIGURE 2.11 – Distribution de taille d'une solution de carbopol de concentration 0.3%en masse diluée dans de l'eau obtenue à l'aide d'un granulomètre laser. Le premier pic correspond aux traceurs fluorescents. Le second donne la distribution de taille des pelotes de carbopol comprise entre 5 et  $40\mu m$ .

dent. La technique consiste tout d'abord à diluer l'échantillon de carbopol dans de l'eau. L'échantillon circule à travers une cellule de verre à faces parallèles éclairée par un faisceau de lumière laser (633 et 466nm). Les particules de gel sont ainsi analysées dans leur ensemble et non individuellement. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 2.11 sur une solution de carbopol (0.3%) diluée dans l'eau. On observe un premier pic à  $1\mu m$ qui correspond au diamètre de nos traceurs, le second correspond à la distribution de taille des pelotes de carbopol. On trouve ainsi une distribution de taille comprise entre  $5\mu m$  et  $40\mu m$ , un résultat semblable aux travaux précédents [73, 74, 75, 76].

# 4 Méthodes de mesure

# 4.1 Rhéomètrie

Durant cette étude, deux rhéomètres ont été utilisés : ARG2 (Advanced Rheometer 1000 G2, TA-Instruments) et Physica MCR 501 (Anton Paar). L'ARG2 est muni d'une géométrie cône/plan de 4cm de diamètre d'angle 2°. La géométrie est sablée afin de limiter le glissement à la paroi. Le second rhéomètre Physica MCR 501 est lui aussi muni d'une géométrie cône/plan de 5cm de diamètre et d'angle 1°.

## 4.2 Mesure de débit

Pour ces travaux, nous avons utilisé trois méthodes de mesure de champ de vitesse suivant les contraintes expérimentales. Ces méthodes permettent d'obtenir des profils de vitesse, qui une fois intégrés, nous permettent d'obtenir les débits. Dans le chapitre suivant, nous décrirons une méthode nouvelle spécialement mise au point durant ma thèse.

### Vélocimétrie par images de particules (PIV)

Nous avons utilisé cette méthode pour suivre des écoulements dans des canaux droits. Les traceurs sont des billes fluorescentes de diamètre  $1\mu m$ . Le dispositif de mesure sera expliqué dans le chapitre 4. Nous obtenons une série d'images dont une est présentée figure 2.12. La résolution spatiale est de  $2.1pixels/\mu m$ . L'intervalle de temps entre deux images (0.1images/s) est fixé de telle sorte que la distance parcourue entre deux images soit de l'ordre de la dizaine de pixels.

Une fois l'acquisition terminée, nous découpons l'image en boîte dans le sens de l'écoulement. La largeur des boîtes est choisie suffisamment petite pour avoir le profil de vitesse le plus discret possible et suffisamment grande pour pouvoir contenir une bille. Nous avons fixé cette largeur égale à 7 pixels. Afin d'affiner la mesure du profil de vitesse, nous avons

### 4. Méthodes de mesure



FIGURE 2.12 – Image d'un écoulement de carbopol dans un canal de  $200\mu m$  avec des billes de  $1\mu m$ . En rouge, la boîte d'interrogation d'une largeur de 7 pixels. La résolution est de  $2.1pixels/\mu m$ . Les billes ont un diamètre de  $1\mu m$ . La concentration en traceur est très faible ( $\simeq 10^{-5}wt$ ). Le système est éclairé par en dessous à l'aide d'une lampe à mercure. Le montage est présenté sur la figure 4.2 du chapitre 4.

fait en sorte que les boîtes de mesure se superposent sur la demi-largeur, ainsi nous obtenons une mesure du vecteur vitesse tous les 3 pixels. Nous appliquons ensuite un filtre passe-bande dans l'espace réel afin de supprimer les bruits et les variations d'intensité aux grandes échelles tout en conservant les pics d'intensité à l'échelle des billes. Nous filtrons ainsi les objets ayant une longueur inférieure à 1 pixel et supérieure à 10 pixels.

Le principe de la méthode de vélocimétrie par images de particules consiste à comparer ces boîtes de mesure deux à deux dans le temps comme nous pouvons le voir sur la figure 2.13. Nous réalisons une transformée de Fourier de la matrice d'intensité d'une boîte et de la suivante dans le temps. En réalisant la transformée de Fourier inverse du produit de convolution de ces deux matrices, nous obtenons une gaussienne comme sur la figure 2.14. En mesurant la position du maximum de ce produit que l'on soustrait ensuite à la longueur de l'image, on obtient le déplacement moyen dans la boîte de mesure  $\Delta x$ . En divisant par le temps entre deux images, on obtient le vecteur vitesse pour cette boîte.

### Vélocimétrie par suivi de particules (PTV)

La mesure des champs de vitesse par PTV consiste à suivre le mouvement des billes contenues dans le fluide. Elle s'appuie sur un logiciel développé par David Grier, John



FIGURE 2.13 – La première et la seconde images représentent un déplacement de bille dans une boîte de mesure pour un temps  $\Delta t = 0.1s$ . La courbe bleue et la courbe rouge représentent la valeur de l'intensité de la ligne centrale. Le déplacement peut être obtenu en mesurant le décalage entre les deux pics.



FIGURE 2.14 – Résultat du produit de corrélation des transformées de Fourier des deux signaux précédents (figure 2.13). La position en x du maximum moins la longueur de la boîte donne la valeur du déplacement  $\Delta x = 24$  pixels.

### 4. Méthodes de mesure



FIGURE 2.15 – À gauche image originale. Elle a été obtenue à l'aide du montage présenté sur la figure 4.14 du chapitre 4. La géométrie consiste en une boucle de largeur 1mm et de hauteur 2.5mm comme présenté sur le schéma b de la figure 4.8 du chapitre 4. Les traceurs ont un diamètre de  $10\mu m$ . La concentration en traceurs est très faible ( $\simeq 10^{-5}wt$ ). À droite, l'image filtrée obtenue à l'aide d'un filtre passe-bande dans l'espace réel. Le filtrage a été réalisé à l'aide d'une routine matlab. Il filtre les objets de taille inférieure à 1 pixel et supérieure à 10 pixels. Entourées d'un cercle bleu, les billes détectées par l'algorithme de Daniel Blair et Eric Dufresne [79]. La résolution de l'image est de  $0.23pixels/\mu m$ .

Crocker, et Eric Weeks [78] adapté sous matlab par Daniel Blair et Eric Dufresne [79]. Le dispositif de mesure est décrit dans le chapitre 4. La résolution est de  $0.23 pixels/\mu m$ . Les billes font  $10\mu m$  de diamètre et sont éclairées par une nappe laser.

Tout d'abord, on applique un filtre passe bande sur les petites et les grandes distances (1 et 11 pixels). Ensuite l'algorithme va chercher les formes circulaires et déterminer leurs centres sur chaque image des séquences acquises. On obtient ainsi les coordonnées des centres comme on peut l'observer sur la figure 2.15. À l'aide d'un algorithme combinatoire, la trajectoire de chacune des particules est trouvée. Le programme filtre les pics d'intensité n'apparaissant que ponctuellement dans le temps. Les vitesses sont obtenues par la différence des positions des particules identifiées sur des paires d'images proches.

### 4.3 Mesure de pression

Afin de mesurer la différence de pression en amont et en aval du milieu poreux, nous avons ajouté un capteur de pression de type ASDX (figure 2.16, Honeywell). Ce capteur de pression est relié au système à l'aide de tubes de 1/8*pouces* rigides remplis du fluide



FIGURE 2.16 – À gauche, position des tubes reliés au capteur de pression. La pression est mesurée À droite, photo d'un capteur de pression en différentiel de type ASDX (Honeywell).

étudié. Ce capteur est composé de deux membranes se mettant en mouvement lors d'un changement de pression. Cette variation va entrainer une variation de la tension. Nous avons utilisé un capteur de gamme de pression de 0 - 5psi  $(0 - 344 \cdot 10^2 Pa)$ . Le capteur est en différentiel et permet de mesurer directement la différence de pression ( $\Delta P$ ) aux bornes du poreux. On impose une tension de 5V en entrée grâce à la carte d'acquisition NI USB-6009 (National Instrument). On mesure une tension (comprise entre 0 - 5V) aux bornes du capteur à l'aide de cette même carte. Elle est pilotée par ordinateur à l'aide d'un programme fait sous Labview.

Les capteurs sont préalablement étalonnés. Pour cela, on connecte les deux embouts du capteur à un régulateur de pression (Fluigent). La gamme de pression du régulateur est comprise entre 0 et  $10^5 Pa$  avec une précision de 10Pa. Le temps de réponse du capteur à un changement de pression est de l'ordre de 1 à 2 secondes. L'étalonnage a été réalisé en effectuant des paliers de pression constante entre 0 et  $250 \cdot 10^2 Pa$  comme présenté sur le figure 2.17. Le signal est stable. On observe par exemple pour 8000Pa sur l'insert de la figure 2.17 une fluctuation du signal inférieure à  $5 \cdot 10^{-3}V$ . On obtient bien une droite  $P = a * V + P_0$  avec  $a = 8520 \pm 14Pa \cdot V^{-1}$  et  $P_0 = -3970 \pm 30Pa$ .

# 5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons montré comment réaliser un milieu poreux avec des canaux ayant un rapport d'aspect hauteur/longueur de 3. Nous avons donné une description ainsi que la recette pour obtenir le carbopol utilisé pour ces travaux. Nous avons détaillé deux méthodes de mesure de vitesse dans un canal droit. Ces deux méthodes ne permettent pas d'obtenir des vitesses pour des résolutions inférieures à  $1pixel/\mu m$ . Nous avons donc



FIGURE 2.17 – Étalonnage d'un capteur de pression ASDX à l'aide d'un régulateur de pression (Fluigent). À gauche, la courbe de tension en fonction du temps sur la durée de l'étalonnage avec en insert un agrandissement du palier à 8000Pa. À droite, la courbe d'étalonnage pression imposée en fonction de la tension.

développé une nouvelle méthode de mesure de champ de vitesse sur de faibles résolutions que nous détaillons dans le chapitre suivant.

Matériels et méthodes

# Chapitre 3

# Mesure d'un champ de vitesse haute résolution pour un milieu poreux

# Introduction

Ce chapitre traite du programme d'analyse d'image que j'ai développé. Au début de ma thèse, nous souhaitions visualiser et obtenir le champ de vitesse de l'écoulement en tout point de la géométrie. Les méthodes classiques de traçage (PTV ou PIV) nécessitent d'avoir des particules plus grandes que le pixel ce qui était impossible pour la résolution recherchée (0.04 *pixel/µm*). Nous avons donc adapté à une méthode de Schlieren une méthode de corrélation temporelle d'images afin de pouvoir quantifier, dans chaque canal, la vitesse du fluide. Nous avons publié un article que je joins au chapitre. Il est suivi d'une partie détaillant les paramètres importants utilisés dans mon analyse et non reprise dans l'article.

# Lab on a Chip

# PAPER

CrossMark

Cite this: DOI: 10.1039/c6lc00703a

Received 31st May 2016, Accepted 7th June 2016

DOI: 10.1039/c6lc00703a

www.rsc.org/loc

# Introduction

One of the challenges of microfluidic technology is the development of tools to characterize flow properties with suitable resolution.<sup>1</sup> For nearly twenty years, the PIV (particle image velocimetry), PTV (particle tracking velocimetry) or LIF (laser induced fluorescence) methods have been successfully adapted to obtain information about the flow at the microscale.<sup>2,3</sup> Recent developments have even enabled us to obtain 3D visualizations of the flows allowing an enriched description of the processes.<sup>4,5</sup> However, these techniques are developed in order to have an accurate description of the flow field at the smallest possible scale – the single  $cell^6$  or bacteria scale<sup>7</sup> for instance – but they only cover a limited range of scales. Complex microfluidic devices typically involve tens to hundreds of channels and therefore require a velocimetry or, at least, an anemometry technique having a super-high spatial resolution.

In the past decades, micromodels obtained using transparent microfluidic technology have been widely used<sup>8-21</sup> to model flows in porous media. Thus, this technique allows

<sup>c</sup> Univ. Grenoble Alpes, CNRS, Lab. LRP UMR5520, F-38000 Grenoble, France

### one to study at the relevant length scales and with a precise control of the geometry flow in porous media and it has permitted significant progress on the understanding and on the description of the flows in those media. However, characterizing flows in micromodels represents a technical challenge, as one needs to perform measurements over length scales ranging from the pore scale up to a scale for which the macroscopic properties of the porous media are reached. For porous media modelled by a disordered channel network, it is assumed that a typical number of one hundred parallel channels is a minimum value to be statistically representative. Under this condition, a single pore only represents from 0.1 to 0.5% of the full scale. As few pixels per pore are necessary to characterize the flow, the resolution rapidly reaches the limit of standard cameras: a few thousands of pixels per dimension. Therefore, flow characterization requires a very good resolution over a wide range of scales, which is in practice difficult to achieve. This issue is likely to be the reason why most of the past studies were either restricted to qualitative observations,<sup>13,21</sup> limited to the measurement of the saturation,<sup>15,12</sup> or considering flow at the scale of a few pores.<sup>11</sup> Only a few studies report quantitative velocity measurements,10,17 where the authors took advantage of the good contrast existing in biphasic flows. Yet, this technique gives sole access to menisci velocity and does not give information about the flow inside the fluids.

The purpose of this work is to go beyond these limitations and to propose an anemometry technique having an extra-

Published on 09 June 2016. Downloaded by UNIVERSITE PARIS SUD on 28/06/2016 09:32:59.

# Large scale flow visualization and anemometry applied to lab-on-a-chip models of porous media†

Johan Paiola,<sup>ab</sup> Harold Auradou<sup>\*b</sup> and Hugues Bodiguel<sup>ac</sup>

The following is a report on an experimental technique that allows one to quantify and map the velocity field with very high resolution and simple equipment in large 2D devices. Illumination through a grid is proposed to reinforce the contrast in the images and allow one to detect seeded particles that are pixel-sized or even smaller. The velocimetry technique that we have reported is based on the auto-correlation functions of the pixel intensity, which we have shown are directly related to the magnitude of the local average velocity. The characteristic time involved in the decorrelation of the signal is proportional to the tracer size and inversely proportional to the average velocity. We have reported on a detailed discussion about the optimization of relevant involved parameters, the spatial resolution and the accuracy of the method. The technique is then applied to a model porous medium made of a random channel network. We show that it is highly efficient to determine the magnitude of the flow in each of the channels of the network, opening the door to the fundamental study of the flows of complex fluids. The latter is illustrated with a yield stress fluid, in which the flow becomes highly heterogeneous at small flow rates.



<sup>&</sup>lt;sup>a</sup> Univ. Bordeaux, CNRS, Solvay, LOF UMR5258, Pessac, France

<sup>&</sup>lt;sup>b</sup> Laboratoire FAST, Univ. Paris Sud, CNRS, Université Paris-Saclay, F-91405, Orsay, France. E-mail: auradou@fast.u-psud.fr

<sup>†</sup> Electronic supplementary information (ESI) available. See DOI: 10.1039/ c6lc00703a

high resolution. Although it has been developed to tackle the technical issue of mapping the velocity in a micromodel of porous media, the technique is versatile and could be directly applied to complex microfluidic networks.

When the acquisition device does not capture the full image, one solution is to combine a mosaic of images to reconstruct the complete velocity field. Yet, this procedure is only adapted to steady flows and requires the use of adapted equipment and reconstruction software to combine the images. In this work, by pushing the resolution limit to its minimal value, the pixel size, we were able to avoid reconstruction procedures. To do so, we use the time variation of the light intensity on each pixel rather than space correlation of successive images. The decay of the autocorrelation function of the light intensity is - in the high Péclet limit - related to the local velocity. Pixel resolution can also be reached with micro-PIV.<sup>22,23</sup> This method uses time averaging of space cross-correlations but requires particles not smaller than 3-4 pixels.<sup>24,25</sup> In this work, the use of particle images that are below the pixel size sets the spatial resolution of our technique to one pixel size. As compared to PTV or PIV, only the magnitude of the velocity can be measured. In a network, velocity direction is known a priori from channel orientation, so that this disadvantage is not highly relevant in these applications. The main advantage of time autocorrelation is that it requires neither particle detection as in PTV nor uniform and good quality images as in standard PIV. We show in this work that it could be applied on images of poor quality, where particle displacement is hardly visible with the naked eye.

The second issue is to use tracers that do not perturb the flow: particle size should thus not exceed a tenth of the channel width. On the other hand, tracers have to be on the order of the pixel size. This last requirement makes particle detection difficult. One solution is to use fluorescent particles, but their use at the centimeter scale or above is not straightforward and is not accessible by standard fluorescence microscopy equipment. By taking advantage of the schlieren effect,<sup>26,27</sup> our technique avoids the use of fluorescent tracers and only required a standard bright field illumination. It is obtained by simply placing a grid between the device and the light source to detect refractive index differences between the tracers and the fluid. The grid enhances the contrast of the images allowing particle detection even if the particle size is below the pixel size. Despite the contrast enhancement, the images are of poor quality but sufficient for time autocorrelation analyses of the light intensities.

In this paper, we present in detail the principles and the validation of the autocorrelation particle imaging anemometry. The technique is applied to map the velocity field in a complex and wide microfluidic network of channels. We show that the method is simple and fast and importantly leads to highly resolved determination of the mean velocity in all the channels simultaneously. These results and validation are obtained for Newtonian fluids. In order to illustrate the potential use of the technique, we present some results obtained with a yield stress fluid.

# Description of methods and materials System overview

Two microfluidic devices were developed using a classical soft lithography technique.

The first one is a channel of constant depth ( $h = 340 \ \mu\text{m}$ ) but of gradually increasing width. The widths (W) are 150, 200, 300, 400 and 500  $\mu$ m, and the total length of the channel is 10 mm. This device is used to calibrate and validate the autocorrelation technique at the pore scale.

The second one, displayed in Fig. 1, is a square lattice of 110 by 110 channels of rectangular cross sections. The height of the channels is uniform and equal to 200  $\mu$ m, while their widths are set randomly according to a log-normal distribution with a mean value of 200  $\mu$ m and a standard deviation of 50  $\mu$ m (see Fig. 1b). The lattice is orientated at 45°, and *N* = 100 channels are connected to the inlet. A tree-like geometry made of channels of 2000  $\mu$ m width is used at the inlet and at the outlet to impose a parallel flow (see Fig. 1a).

The inlet of the device is connected to a syringe pump and the outlet to a waste reservoir. We used either pure glycerol or yield stress fluid obtained by mixing 0.7 g L<sup>-1</sup> carbopol EDT2050 and water (see ref. 28 for a complete description of the preparation procedure). The flow curve of the carbopol solution has been determined using standard rheometry and is well described by the Herschel–Bulkley law:  $\sigma = 15 + 5.10\dot{\gamma}^{0.5}$ . The fluids are seeded with transparent beads of PMMA. Two diameters are used: 6 and 20 µm. The concentration is 0.5% (weight fraction) for the 6 µm beads and 0.3% w/w for the 20 µm beads.

A JAI BM 500 GE video camera is positioned above the setup. Its CMOS sensor consists of 2456 by 2058 pixels, and its maximum rate of capture is 7 frames per second in full resolution. It is equipped with a 25 mm objective, with a depth of field of about 1 cm. The spatial resolution of the camera has been varied to test the limitation of the technique, but for the anemometry mapping of the channel network, it is about 25  $\mu$ m per pixel. This resolution does not permit the visualization and tracking of single particles, but as detailed in the next section, contrast enhancement using a grid allows the detection of intensity fluctuations due to tracer displacement.

#### **Contrast enhancement**

To enhance the contrast, we adapted the synthetic schlieren technique<sup>26</sup> developed in the 1990s to measure density fluctuations in two-dimensional stratified flows. In that case, density fluctuations are revealed through small optical refraction index variations enhanced by placing a grid between the light source and the observation field. Our technique uses the refraction index contrast between particles suspended in the fluid and the fluid. This is achieved by placing a grid between a light panel and the device. The grid produces a uniform field of dotted sources of light and the light passing through the beads is refracted, thus reducing the light intensity at that position. The grid is a sieve with a mesh size of

Paper



**Fig. 1** a) Mask used for lithography. The microfluidic chip consists of a 2D network made of 110 by 110 channels. The average channel width (*W*), length (*l*) and depth (*h*) are 200, 700 and 600  $\mu$ m, respectively. b) Close-up view of the network. c) Size distribution of the width (*W*) of the channels in  $\mu$ m. d) Photograph of the assembled microfluidic device filled with a dyed fluid. e) Schematic view of the experimental set-up: 1 – camera with a 25 mm lens, 2 – microfluidic chip, 3 – grid with a square mesh, 4 – light panel, 5 – connections.

20 or 40  $\mu$ m. Fig. 2 displays two zoomed-in images obtained with and without the grid. The difference between the two images is striking: the beads are visible on the picture taken with the grid, while they are not when the grid is removed. We found that the contrast enhancement is maximal when the grid is placed near the observation plane and when the particles and the mesh of the grid have a similar size. The



Fig. 2 (a) Close-up view of a single channel. The width of the channel is 250  $\mu$ m. The channel is filled with glycerol containing PMMA beads of 20  $\mu$ m diameter. (b) The same view but with a grid added between the light pad and the microfluidic device. The mesh size of the grid is 40  $\mu$ m. The grey circles are beads. The spatial resolution is 1.15  $\mu$ m per pixel and the mean flow velocity  $V = 16 \ \mu m \ s^{-1}$ .

physical origin of this effect is related to light refraction by the beads. Without the grid, the light panel projects a diffuse light that appears bright from all viewing directions. The grid creates an array of point light sources and deviations of light beams directly modifying the light intensity measured on each pixel.

In the following, we use a lower resolution: the pixel and grid have a similar size. The image quality is thus much lower, and the beads are barely visible to the naked eye. Yet, as illustrated in Fig. 3a, the contrast enhancement is still measurable. The light intensity fluctuations due to particle displacement are difficult to distinguish from background noise in the absence of the grid (dotted line in Fig. 3a) but become visible immediately when the grid is used (solid line in Fig. 3a). We will show below that these fluctuations correspond to the passage of individual beads.

#### Image treatment

To demonstrate that the fluctuations observed with a grid are due to the passage of the beads on that pixel, we compute the normalized time auto-correlation function of the centered intensity of a single pixel. It is defined by

$$C(x, y, \Delta t) = \frac{\sum_{i} \left[ I(x, y, t) - \left\langle I(x, y) \right\rangle_{t} \right] \left[ I(x, y, t + \Delta t) - \left\langle I(x, y) \right\rangle_{t} \right]}{\sum_{i} \left[ I(x, y, t) - \left\langle I(x, y) \right\rangle_{t} \right]^{2}},$$
(1)

where  $\Delta t$  is the time lag and *I* is the pixel intensity. The subscript *t* stands for summation or averaging in time, over the



**Fig. 3** (a) Variation of the light intensity I(x, y, t) with time. Solid and dotted lines are measurements performed with  $V = 4.8 \ \mu m \ s^{-1}$  with and without the grid, respectively. (b) Auto-correlation function  $C(\Delta t)$  in relation to the time lag  $\Delta t$  for V = 23.8 (solid line), 4.8 (dashed line), 1.6 (dotted line) and 0.48  $\mu m \ s^{-1}$  (dash-dotted). For these experiments, the bead diameter is 20  $\mu m$ , and a grid of 40  $\mu m$  mesh size was used. The spatial resolution is 22  $\mu m$  per pixel. In the inset, the characteristic time  $\tau_0$  is plotted as a function of the mean velocity (see text).

whole image sequence. By construction, these functions decay and eventually vanish at long times. The correlation functions are calculated using Fourier transforms of the intensity, since the computation time significantly decreases. Examples are displayed in Fig. 3b for different flow rates. Clearly, the autocorrelation function decreases faster for high flow rates.

The anemometry technique that is proposed in this article is based on this observation and consists in measuring the characteristic time of the autocorrelation function decay. The latter is estimated as the time  $\tau_0$  at which  $C(\tau) = 0.5$ , and we use linear interpolation of the autocorrelation function to obtain a better time resolution. The inset in Fig. 3 shows the value of  $1/\tau_0$  obtained from the measurements of the correlation functions for different mean velocities (*V*) in the channel, defined by V = Q/S, where *Q* is the flow rate and *S* is the channel cross-section. A linear relation between the two quantities is observed, suggesting that it is possible to obtain a local measurement of the fluid velocity from the measurement of the autocorrelation function of the light intensity.

# Results

#### Flow in a single channel

We first applied the technique to experiments performed in straight channels. Fig. 4 shows one of the maps of the inverse of  $\tau_0$  that we obtained. At the centre of the channel,  $\tau_0$  is small indicating that the beads travelled faster in the central region of the flow. On the sides, the time is large (and  $1/\tau_0$  is small); in these regions, the beads travel more slowly. From these maps, we estimate the velocity profiles by averaging  $1/\tau_0$  along the flow direction. The profiles are shown in



**Fig. 4** (a) Color map of  $1/\tau_0(x, y)$  measured on each pixel of a channel of 500 µm width and 10 mm length.  $V = 1.3 \ \mu m \ s^{-1}$ . (b and c) Profiles of  $\langle 1/\tau_0(x, y) \rangle_x$  where x is the coordinate along the flow direction and y is the coordinate normal to the flow. The channel widths are 150 (b) and 500 µm (c). The spatial resolution here is 15 µm per pixel. The diameter of the beads is 6 µm, and the grid mesh size is 20 µm. The solid lines are the best parabolic fit to the data, and the dashed lines correspond to the velocity profile of a channel of rectangular cross-section, averaged over the depth of the channel.

Fig. 4b. They are very well adjusted over the full width of the channels by a parabolic profile as expected for Poiseuille flows in slits. However, the slit approximation is not strictly valid since the channel cross-section is rectangular, with an aspect ratio ranging between W/h = 0.44 and 1.5.<sup>‡</sup> If we assume that the measured velocity is averaged over the entire thickness of the channel, the difference between the parabolic profile in a slit and the averaged profile in a rectangular channel is rather small. These are displayed in Fig. 4b, and the difference remains smaller than the measurement uncertainty. Near the surfaces, fluctuations of the inverse of time are larger, emphasizing the difficulty in achieving good measurements close to a surface. The fact that we used beads that are smaller than the pixel size allows us to achieve a spatial resolution of 1 pixel: as shown in Fig. 4b, velocity profile measurement is achieved in a channel which is only 10 pixels wide.

The experiment was repeated for different flow rates, and the average value of  $1/\tau_0$  was calculated on all the sub-parts of constant width of the channel. Fig. 5 shows the average value of  $1/\tau_0$  in relation to the corresponding average flow velocity. The data fall on a single line passing through the origin. The slope  $1/\alpha$  is used to determine the relation between the time  $\tau_0$  measured and the current velocity. We find a value of *a* which is about 10 µm. This length is on the order of both the

<sup>‡</sup> In a channel of rectangular cross-section, the flow profile is given by v(y, z) =

 $<sup>\</sup>sum_{h>0} (1 - \cosh(n\pi y/h)/\cosh(n\pi w/2h)\cos(n\pi z/h)/n^3 \text{ (ref. 29)}.$ 



Fig. 5 Each symbol represents the average value of  $1/\tau_0$  estimated from each experiment (different flow velocities (V) and channel widths (w)) in relation to the average flow velocity V. The solid line is the linear regression of the measurements. Its slope is  $1/\alpha$  with  $\alpha = 10.18 \pm 0.25 \,\mu$ m. The spatial resolution here is 15  $\mu$ m per pixel. The diameter of the beads is 6  $\mu$ m, and the grid mesh size is 20  $\mu$ m. The diamonds represent the measurements performed in the injection channels of the network displayed in Fig. 6. The conditions are the same (bead diameter of 6  $\mu$ m and mesh size of 20  $\mu$ m) except for the spatial resolution of 25  $\mu$ m per pixel instead of 15.

bead size and the pixel size, and this will be discussed later. This result proves the ability of the auto-correlation technique to be used in measuring local flow velocity, after calibration. This study also allows us to estimate the experimental uncertainty in the measurements of the magnitude of the velocity (approx. 5%).

We find that the calibration factor 1/a does not depend on the aspect ratio of the channel, as evidenced in Fig. 5. Note that we have significantly varied the channel aspect ratio (W/h) from 0.4 to 3.3. This indicates that the local velocity measured in one pixel is averaged over the channel depth. Due to the large depth of field of the optic, all the beads flowing in the section are thus captured by the camera. The result also shows that the sensitivity of the detection is not influence by the velocity of the particle and that particles are uniformly distributed in the section. Therefore, we conclude that the auto-correlation technique could serve as a local anemometry technique, which is of great interest in complex microfluidic networks since only a few pixels per channel are needed to achieve a precise measurement. It might also be extended for velocimetry application, but one would need to achieve a better optical vertical resolution using for instance confocal microscopy.

### Flow in a complex channel network

We next applied the method to the network of channels of random width depicted in the introduction. In this case, the spatial resolution is 25  $\mu$ m per pixel, and the goal is to measure the velocity over the full size of the chip. The spatial resolution is four times the bead diameter, which means they

are not visible, preventing any tracking. Moreover, each channel contains in average only ten pixels, making it difficult to determine a flow profile precise enough for a good estimation of the average flow velocity using the classical techniques.

Despite these obstacles, we were able to obtain a map of the magnitude of the velocities with a good resolution (see Fig. 6), using the calibration displayed in Fig. 5. To quantitatively test our estimation of the flow velocities, we performed experiments at different flow rates and computed the mean value of the velocity in the entire network. The results are shown in Fig. 7a. As for the single channel, the average flow velocity obtained by using our technique varies linearly with the average imposed flow velocity V = Q/NS, where N is the number of channels and S is the average cross-section. We note that the mean measured velocity is about 15% higher than V. This over-estimation is not measured when the analysis is performed on the straight channels connecting the



**Fig. 6** (a) Color scale map of the flow velocity measured on each pixel. Pure glycerol containing beads of 6  $\mu$ m diameter is injected at an average flow velocity  $V = 6.3 \ \mu$ m s<sup>-1</sup> in the micromodel. For this experiment, we used a grid of 20  $\mu$ m. The spatial resolution is 25  $\mu$ m per pixel. (b) Close up view of the injection section and that of a part of the network.



**Fig. 7** (a) Mean velocity in the porous medium (circles) determined for various flow rates Q = NSV. The calibration factor *a* comes from the single channel experiment. The data are averaged over all the pore spaces of the micromodel. The solid line, of slope 1.15, corresponds to the best linear fit to the data. The slope of the dotted line is 1. The diamonds correspond to the averaged velocity in the injection channels. (b) Probability density functions of the normalized velocity in the pore network simulations. It is well adjusted by a Gaussian function with a mean value of 1 and a standard deviation of 0.34. The other lines (dotted, dashed, solid and dash-dotted) are obtained from experiments carried out at various flow rates  $(1.1 \times 10^{-10} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}, 1.4 \times 10^{-10} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}, 2.2 \times 10^{-10} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  and  $2.8 \times 10^{-10} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ , respectively).

pump to the network (see Fig. 7a), and we obtained a satisfying agreement between these measurements and the calibration curve obtained from the measurement in straight channels (see diamonds in Fig. 5). Several arguments might be proposed to explain the over-estimation of the fluid velocity. First, the velocity V = Q/NS does not account for the contribution of the nodes of the network, while they represent about 20% of the total volume. Since one node connects two channels, the velocity in the nodes is higher and the mean velocity measured is then higher than *V*. Second, we cannot exclude that the poor resolution prevents correct measurements of the low flow velocity near the walls, which would also lead to an overestimation of the flow velocity.

To stress on the potential of our method, we made a close-up of the inlet sections and of a small part of the network, as shown in Fig. 6b. The inlet consists of straight channels divided into two equal channels in order to distribute the fluid equally over the full length of the chip. This part is thus made of branches with right angle corners: the method clearly highlights the low flow region appearing in this area. Likewise, in the area where the flow divides into two, the "jets" in the vertical walls can easily be distinguished. On the scale of a few pores, we see that the method makes the velocity contrast between the pores visible.

We also compared the velocity probability density functions (PDF). Due to the Newtonian nature of glycerol, once normalized by the average flow velocity V = Q/NS, the distribution should remain unaffected by any change in the average flow velocity. The results are shown in Fig. 7b. The collapse of the PDF obtained at various flow rates is excellent, which demonstrates the good quality of our measurement. The PDF are well described by Gaussian functions with standard deviations of around 0.35. The experimental results are compared to numerical simulation of the flow using a porenetwork model approach. This method consists of assuming a developed laminar Poiseuille flow profile in each of the channels and solving the linear system of equations obtained by writing mass conservation in each node of the network (see Appendix for details). This allows one to calculate the PDF of the velocity for the network used experimentally. The PDF is displayed in Fig. 7b, together with the experimental data. As already discussed, the experimental mean value is slightly higher than the theoretical one, but one could see that the agreement on the standard deviation of the PDF is excellent.

We conclude that the auto-correlation technique combined with contrast reinforcement is well adapted to characterize flows in complex microfluidic networks.

### Flow of a non-Newtonian liquid in a complex channel network

In order to illustrate the potential interest of our method, we used it to determine the flow structure of a complex fluid in the micromodel. Contrary to Netwonian fluid flows which could be easily predicted or modelled, characterizing the flow of non-Newtonian fluids in complex geometries is far more challenging because of the strong coupling between the geometry and the fluid properties. We choose to use a yield stress fluid, a carbopol gel. The main characteristic of this fluid is the existence of a yield stress  $\sigma_{\nu}$  (approx. 15 Pa). Consequently, the flow in a single channel only occurs when the pressure gradient at the pore scale  $\Delta p/l$  overcomes the strain on its surface  $2\sigma_{\nu}/W$ . In a network of heterogeneous channels, one thus expects that for low flow rates, the flow is localized along a few paths, with the other channels being below the yield stress. The existence and characteristics of preferential paths have been predicted numerically<sup>30,31</sup> but not yet tested experimentally. One of the practical consequences of these preferential paths is to affect the global pressure drop/flow rate relation. The current scientific challenge is to determine the equivalent Darcy law for yield stress fluids. While most of the present studies focus on the macroscopic average flow velocity,<sup>32</sup> we see in Fig. 8 that our method makes it possible to study the details of the local flow structure.

The two velocity maps displayed in Fig. 8 are obtained with pressure  $\Delta P$  close to the theoretical macroscopic yield stress pressure. As compared to the flow of a Newtonian fluid displayed in Fig. 6, the flow of the carbopol solution is much more heterogeneous. They both reveal the localization of the flow structure and the existence of preferential paths at a low flow rate. The flow heterogeneity due to the coupling between the network geometry and the non-linear flow properties of the carbopol solution is better evidenced by looking at the PDF of the velocity displayed in Fig. 8. They contrast with the ones obtained with the Newtonian fluid. The Gaussian distribution previously observed becomes an exponentially



**Fig. 8** (a and b) Velocity maps obtained with an aqueous carbopol solution. The two maps correspond to two different degrees of pressure applied: (a)  $\Delta P$  = 7000 Pa (averaged velocity:  $V = 3.2 \,\mu m \, s^{-1}$ ) and (b) 5000 Pa ( $V = 1.4 \,\mu m \, s^{-1}$ ). (c) Distributions of the normalized velocity  $\nu/V$  in the two experiments shown above (solid and dashed lines) and of a Newtonian fluid (dotted line).

declining distribution, and the standard deviation increases when the flow rate is decreased. These distributions demonstrate that in some channels the flow is close to zero and is much larger than the average velocity in others. The quantitative analysis of such distributions is undoubtedly a relevant tool to study the evolution of the localization of the flow, but a quantitative and detailed study of this phenomenon is beyond the scope of the present article.

# Discussion

In the previous sections, we have shown the validity and the potentiality of the auto-correlation method combined with contrast enhancement through a grid to map the velocity field in a complex microfluific device. Let us now discuss in detail a few technical aspects which could benefit future users.

Let us first emphasize that the contrast enhancement through a grid is a powerful costless alternative to fluorescence optical methods. Although fluorescence microscopy is now a standard technique, it has some technical drawbacks and contraints. For instance, it requires suitable illumination devices and filters. The contrast enhancement by a grid only requires a grid and a standard camera and can achieve particle detection even when the tracer size is smaller than that of the pixel. Of course, the presence of the grid alters the quality of the raw image and induces some optical aberration as discussed in the experimental section. On the contrary, if the grid size becomes too small or if the spatial resolution is low in comparison with the mesh size, all the light deflected by the presence of the bead will be collected by the same pixel, thus cancelling the contrast enhancement effect. We therefore recommend to use a grid in which the wavelength is on the order of the pixel size. By doing so, the images are more uniform and do not suffer from the above-mentioned aberration. Standard sieves are good solutions to obtain grids of various wavelengths.

The auto-correlation method is very robust, as it could be used on poor quality images, contrary to PIV or PTV methods. The second advantage is related to the spatial resolution which is 1 pixel. Although the other methods could achieve this high resolution, they required averaging over a long period of time. In this paper, we use 3000 successive images to reach a precision of about 5%. The precision is reduced when using less images, but we obtain satisfactory results with only 500 images. As for other velocimetry methods, the frame rate needs to be adjusted to the magnitude of the velocity. Indeed, the characteristic time measured is inversely proportional to the velocity. In order for the auto-correlation function decay to be measured with good precision, the decorrelation  $1/\tau_0$  time must be higher than the time between two successive images and lower than the maximal correlation time. We thus recommend to adapt the frame rate at about a few times  $1/\tau_0$ . Higher values would lead to better precision but would require a larger number of images. Although we restrict this study to low velocities (around 10 µm s<sup>-1</sup>), the method could be applied without additional difficulties to larger velocities, provided that the acquisition frame rate f is set accordingly. The maximal velocity that could be measured is about *af*. The minimal velocity is about  $af/(0.02N_0)$ , where  $N_0$  is the total number of images. The value of *a* is about the pixel size, as discussed below.

The tracer size should also be adapted to the experiments. Although large tracers lead to better optical contrast, they also reduce the spatial resolution and induce finite size bias when their size approaches a fraction of that of the channels. In this work, we used tracer sizes that are much smaller (6 µm or 20 µm beads) than the channel width and smaller or around the pixel size. The tracer concentration should also be adjusted since low concentrations require long acquisition time, and high concentrations influence the decorrelation time due to multiple particles. We thus recommend to adjust the concentrations so that the mean distance between tracers is approximately the channel height. Finally, the refractive index of the particles has a strong influence on the contrast and on the amplitude of the intensity fluctuations. Using water with a small amount of carbopol ( $n_1 = 1.33$  (ref. 33)) instead of glycerol  $(n_1 = 1.47 \text{ (ref. 34)})$ , we increased the difference between the refraction index of the tracer ( $n_2 = 1.49$  for PMMA<sup>35</sup>) and of the fluid. We then observed an increase in the light intensity contrast that made it considerably easier to analyze the signals of the experiment displayed in Fig. 8 as opposed to the data displayed in Fig. 6.

The main drawback of the auto-correlation technique is that it requires a calibration procedure. The calibration factor a is a length scale which depends on the experimental parameters. Since the measured characteristic time corresponds to the passage of a tracer in front of a pixel, it should be - in principle - for tracers larger than the pixel size close to the tracer diameter or to the pixel size otherwise. For the data presented in this paper, we used 6 µm beads and a pixel size of about 20  $\mu$ m. The characteristic size *a* found from velocity calibration is 10 µm. This is around both the bead and pixel sizes, which is thus coherent with the previous argument. We have tested several other experimental conditions. When the pixel size is much smaller than the beads, the value of a is clearly close to the bead diameter: we obtain  $a = 25.3 \mu m$ , with 20 µm beads and a pixel size of 0.17 µm. Increasing the pixel size leads to a more complex picture. With 6 µm beads, we have increased the pixel size, starting from 20 µm. We find that *a* increases from 10 to 18  $\mu$ m when the pixel size is 40 µm but then saturates when the pixel size is increased further. Possibly the reason for saturation is related to the fact that for large pixel sizes, multiple beads could be observed at the same time on the same pixel. As the precise value of a depends on experimental conditions in addition to the details of the characteristic time definition (here,  $\tau_0$  has been defined as  $C(\tau_0) = 0.5$ ), we think the calibration step could not be avoided to achieve quantitative measurements. However, the value of the bead size could serve as an a priori estimation for the characteristic time.

# Conclusion

In this work, we have shown that large scale anemometry with high resolution could be achieved efficiently and using time auto-correlation of the light intensity. The method is robust since it does not require high quality imaging of the tracer particles. In this work, we have used illumination through a grid to reinforce the contrast of the image and to achieve velocity mapping in bright field with beads smaller than the pixel size. Note that the time auto-correlation technique only estimates the velocity magnitudes and does not give information about the velocity direction. The combination of the two methods is thus of great interest to map velocity fields in a large complex microfluidic network. We have applied it to flows in micromodels of porous media, where high resolution velocimetry is required to achieve quantitative description of the phenomena. In addition to the experimental validation of the method using Newtonian fluids, we report preliminary results obtained with yield stress fluids which unambiguously show that the flow concentrates at low flow rates in preferential paths. The technique reported here thus opens the door to quantitative studies of complex fluid flows in model porous media.

Beyond the applications just mentioned, we are also convinced that this technique may be useful to study the flow structure of active fluids.<sup>36–38</sup> For instance, bacteria are characterized by a refractive index ( $n_2 \approx 1.39$  (ref. 39 and 40)) slightly different from that of the suspending fluid (often a water solution with  $n_1 = 1.33$ ) and have a typical size of a few microns. Our technique may then be useful to study the spatial organization of the velocity field of these fluids without the need to add tracer particles.

### Appendix

The pore network modelling used to compute the theoretical PDF of the velocity inside the heterogeneous channel network consists of assuming developed flow profiles in all the rectangular channels. We use a similar network to that of the experiments, *i.e.* rectangular channels of uniform *h* but of heterogeneous width  $w_{ij}$ . These are set randomly according to a lognormal distribution having the same standard deviation as for the experiments. The channels are connected through nodes of the network where mass conservation written for a node labelled *i* simply reads

$$\sum_{j} Q_{ij} = 0, \qquad (2)$$

where  $Q_{ij}$  is the flow rate in the channel connecting nodes *i* and *j* and where the summation is made on the neighboring nodes. The flow rate  $Q_{ij}$  is given for a Newtonian fluid by (ref. 41)

$$Q_{ij} = \frac{P_i - P_j}{\eta l} \frac{8h^4}{\pi^3} \sum_{n=1,3,5,\dots}^{\infty} \frac{w_{ij}}{h\pi n^4} - \frac{2}{\pi^2 n^5} \tanh\left(\frac{n\pi w_{ij}}{2h}\right), \quad (3)$$

where  $\eta$  is the fluid viscosity, *l* is the length of the channel and *P<sub>i</sub>* is the pressure at node *i*. This forms a complete set of linear equations of unknown *P<sub>i</sub>* that we solve numerically using Matlab. Knowing the pressure field, we then compute the mean velocities in all the channels to obtain the PDF displayed in Fig. 7.

# Acknowledgements

The authors would like to thank J.-P. Hulin, D. Salin, L. Talon and T. Chevalier for useful discussions and the Agence Nationale de la Recherche for financial support of the project LaboCothep No. ANR-12-MONU-0011.

# References

- 1 H. Stone, A. Stroock and A. Ajdari, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 2004, 36, 381–411.
- 2 J. Santiago, S. Wereley, C. Meinhart, D. Beebe and R. Adrian, *Exp. Fluids*, 1998, 25, 316–319.
- 3 D. Sinton, Microfluid. Nanofluid., 2004, 1, 2-21.
- 4 C. Cierpka and C. J. Kähler, J. Visualization, 2012, 15, 1–31.
- 5 K. Hyoungsoo, J. Westerweel and G. E. Elsinga, *Meas. Sci. Technol.*, 2013, 24, 024007.
- 6 Y. Zheng, J. Nguyen, Y. Weia and Y. Sun, *Lab Chip*, 2013, 13, 2464–2483.
- 7 K. Drescher, J. Dunkel, L. H. Cisneros, S. Ganguly and R. E. Goldstein, Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A., 2011, 108, 10945.
- 8 D. Crandall, G. Ahmadi, D. Leonard, M. Ferer and D. H. Smith, *Rev. Sci. Instrum.*, 2008, **79**, 044501.
- 9 C. Perrin, P. Tardy, K. Sorbie and J. Crawshaw, J. Colloid Interface Sci., 2006, 295, 542–550.
- 10 C. Cottin, H. Bodiguel and A. Colin, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2010, 82, 046315.
- 11 A. Clarke, A. M. Howe, J. Mitchell, J. Staniland, L. Hawkes and K. Leeper, *Soft Matter*, 2015, 11, 3536–3541.
- 12 C. A. Conn, K. Ma, G. J. Hirasaki and S. L. Biswal, *Lab Chip*, 2014, 14, 3968.
- 13 K. Ma, R. Liontas, C. A. Conn, G. J. Hirasaki and S. Biswal, *Soft Matter*, 2012, **8**, 10669.
- 14 H. Lee, S. G. Lee and P. S. Doyle, *Lab Chip*, 2015, 15, 3047–3055.
- 15 M. Romano, M. Chabert, A. Cuenca and H. Bodiguel, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2011, 84, 065302.
- 16 W. Song and A. R. Kovscek, Lab Chip, 2015, 15, 3314–3325.
- 17 J. Beaumont, H. Bodiguel and A. Colin, *Soft Matter*, 2013, 9, 10174–10185.
- 18 N. K. Karadimitriou, P. Nuske, P. J. Kleingeld, S. M. Hassanizadeh and R. Helmig, *Lab Chip*, 2014, 14, 2515–2524.

- 19 M. Wu, F. Xiao, R. M. Johnson-Paben, S. T. Retterer, X. Yin and K. B. Neeves, *Lab Chip*, 2012, **12**, 253–261.
- N. S. K. Gunda, B. Bera, N. K. Karadimitriou, S. K. Mitra and S. M. Hassanizadeh, *Lab Chip*, 2011, 11, 3785–3792.
- 21 J. Gauteplass, K. Chaudhary, A. R. Kovscek and M. A. Fernø, *Colloids Surf.*, A, 2015, 468, 184.
- 22 J. Westerweel, P. F. Geelhoed and R. Lindken, *Exp. Fluids*, 2004, 37, 375.
- 23 H.-S. Chuang, L. Gui and S. T. Wereley, *Microfluid. Nanofluid.*, 2012, 13, 49–64.
- 24 S. T. Wereley and C. D. Meinhart, Annu. Rev. Fluid Mech., 2010, 42, 557–576.
- 25 C. J. Kaehler, S. Scharnowski and C. Cierpka, *Exp. Fluids*, 2012, 52, 1629–1639.
- 26 B. R. Sutherland, S. B. Dalziel, G. O. Hughes and P. F. Linden, *J. Fluid Mech.*, 1999, **390**, 93–126.
- 27 S. B. Dalziel, O. H. Graham and B. R. Sutherland, *Exp. Fluids*, 2000, 28, 322–335.
- 28 C. B. B. Geraud and L. Bocquet, Eur. Phys. J. E: Soft Matter Biol. Phys., 2013, 36, 30.
- 29 F. M. White, *Fluid Mechanics*, McGraw-Hill, New York, 2003.
- 30 L. Talon and D. Bauer, Eur. Phys. J. E: Soft Matter Biol. Phys., 2013, 36, 139.
- 31 T. Chevalier and L. Talon, Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys., 2015, 91, 023011.
- 32 T. Chevalier, C. Chevalier, X. Clain, J. Dupla, J. Canou, S. Rodts and P. Coussot, *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 2013, **195**, 57–66.
- 33 A. Harvey, J. S. Gallagher and J. M. H. L. Sengers, J. Phys. Chem. Ref. Data, 1998, 27, 761.
- 34 L. F. Hoyt, Ind. Eng. Chem., 1934, 26, 329-332.
- 35 P. Michela, J. Dugasa, J. M. Carioua and L. Martina, J. Macromol. Sci., Part B: Phys., 1985, 379-394.
- 36 J. Gachelin, A. Rousselet, A. Lindner and E. Clément, *New J. Phys.*, 2014, **16**, 02.
- 37 H. M. Lopez, J. Gachelin, C. Douarche, H. Auradou and E. Clément, Phys. Rev. Lett., 2015, 115, 028301.
- 38 A. Creppy, O. Praud, X. Druart, P. Kohnke and F. Plouraboué, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2015, 92, 032722.
- 39 A. E. Balaev, K. N. Dvoretski and V. A. Doubrovski, Proc. SPIE 5068, Saratov Fall Meeting 2002: Optical Technologies in Biophysics and Medicine IV, 375 (October 14, 2003), DOI: 10.1117/12.518853.
- 40 P. Y. Liu, L. K. Chin, W. Ser, T. C. Ayi, P. H. Yap, T. Bourouina and Y. Leprince-Wang, *Procedia Eng.*, 2014, 87, 356–359.
- 41 N. Mortensen, F. Okkels and H. Bruus, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2005, 71, 057301.

# 1 Protocole d'analyse d'images

## 1.1 Description détaillée du programme d'analyse d'images

A l'issue de chaque expérience, j'ai une séquence d'images d'intensité lumineuse I(x, y, t)à partir de laquelle je vais tirer une carte des vitesses v(x, y). La première opération consiste à égaliser l'histogramme de luminosité sur chaque image. Pour cela, on ajuste tout d'abord l'image par un polynôme de degré 2. On obtient l'image du fond. On divise chaque image de la séquence par cette image de fond. Ensuite, on retire à chaque pixel son intensité moyennée dans le temps. On obtient une intensité  $\tilde{I}(x, y, t) = I(x, y, t) - \langle I(x, y) \rangle_t$ . La figure 3.1 montre les variations des intensités lumineuses pour des pixels situés sur un plot de PDMS ou dans un canal. La première courbe nous donne une idée du bruit de la caméra. On remarque que la mesure sur le pixel où a lieu un écoulement montre des variations de plus forte amplitude et contenant des variations temporelles plus périodiques. Toute la difficulté de l'analyse est d'extraire de la figure 3.1 de droite un temps caractéristique de l'écoulement et de s'affranchir du bruit de la mesure. Pour cela, on effectue d'abord la transformée de Fourier de cette intensité :



$$\hat{F}(x,y,\nu) = \frac{1}{2\pi} \int \tilde{I}(x,y,t) e^{-it\nu} dt$$
(3.1)

FIGURE 3.1 - I(t) pour un pixel situé sur un plot (à gauche) et pour un pixel où se produit l'écoulement (à droite). La durée totale de la séquence est de 450s, seulement une partie est montrée ici. L'expérience est réalisée avec du carbopol pour une vitesse moyenne d'écoulement de  $14.7\mu m.s^{-1}$ .

Le produit de convolution de la transformée de Fourier par sa transposée est finalement déterminé :



FIGURE 3.2 – Produit de convolution  $\hat{A}(x, y, \nu)$  en fonction de  $\nu$  pour le pixel dans le PDMS à gauche et dans le fluide à droite. Les variations d'intensité sont représentées sur la figure 3.1. La partie utilisée pour déterminer la valeur soustraite au produit de convolution (terme de droite dans l'Eq. 3.3) est mise en bleu.

$$\hat{A}(x, y, \nu) = \hat{F}.\hat{F}^*$$
(3.2)

Je soustrais ensuite la partie haute fréquence afin d'atténuer l'importance du bruit de la caméra.

$$\hat{A}^{*}(x,y,\nu) = \hat{A}(x,y,\nu) - \int_{\frac{1}{2T}}^{\frac{1}{4T}} \hat{A}(x,y,\nu)d\nu$$
(3.3)

Cette opération se fait en enlevant la moyenne du produit de convolution calculée sur les fréquences comprises entre 1/4T et 1/T où T est la durée du film. Une fois le filtre appliqué, on effectue la transformée inverse :

$$A(x, y, t) = \frac{1}{2\pi} \int \hat{A}(x, y, \nu) e^{-it\nu} d\nu$$
 (3.4)

On renormalise le signal obtenu par la première valeur :  $\tilde{A}(x, y, t) = \frac{A(x, y, t)}{A(x, y, 0)}$ . Pour le pixel situé dans une zone qui ne s'écoule pas, je trouve  $A_0 = -4.3 \cdot 10^{-3}$  alors qu'elle est toujours beaucoup plus grande pour les zones qui s'écoulent, par exemple, je trouve  $A_0 = 0.42$  pour le pixel dont l'intensité est représentée figure 3.1 de droite. J'utilise donc un seuil sur cette valeur pour distinguer les pixels en écoulement de ceux où le signal est dominé par le bruit de la caméra. La figure 3.3 présente une vue à l'échelle de quelques pores de la carte des  $A_0(x, y)$ . Un seuil à 0.1 permet de différencier les plots en PDMS des


FIGURE 3.3 – Figure de gauche : carte codée en couleur des valeurs de  $A_0(x, y)$ . Figure de droite : carte des  $1/\tau_0$  déterminée à la fin de l'analyse. Résultats obtenus pour l'étude d'une zone du milieu poreux pour un écoulement de carbopol à une vitesse moyenne  $V = 14.7 \mu m.s^{-1}$ .

pores où a lieu l'écoulement. Nous montrerons à la fin de ce paragraphe l'influence de ce paramètre sur la détermination des vitesses.

Pour les pixels au-dessus du seuil  $A_s$ , le temps de décorrélation de l'intensité  $\tau_0$  est déterminé en cherchant la solution de :  $\tilde{A}(x, y, \tau_0) = 0.5$ . Pour les pixels dont la fonction de corrélation n'atteint jamais 0.5 ou ceux écartés précédemment par  $A_s$ , la valeur  $\tau_0$  est mise à l'infini. La figure 3.4 montre les fonctions de corrélation déterminées pour les deux pixels pris en exemples. Pour le pixel où se produit l'écoulement, l'analyse donne  $\tau_0(x, y) = 0.5s$ . Pour le pixel situé sur le PDMS, la fonction n'est pas monotone décroissante et le temps de décorrélation n'est pas déterminable.

#### 1.2 Discussion du premier paramètre de filtre

Comme on le voit sur les cartes de la figure 3.3, les valeurs de  $A_0(x, y)$  sont faibles dans les régions où il y a le PDMS et plus fortes dans les zones en écoulement. Malgré tout certaines zones restent mal identifiées notamment sur les bords des plots. Ainsi avoir un seuil trop grand élimine une partie des faibles vitesses. À l'inverse s'il est trop faible, cela rajoute du bruit. La figure 3.5 donne la distribution des  $A_0(x, y)$  pour une de nos expériences. La distribution comporte deux bosses, la partie de gauche correspondant aux plots en PDMS et celle de droite aux pixels où a lieu l'écoulement. Le choix du seuil va permettre de distinguer les deux familles de pixels. Pour marquer d'avantage la différence



FIGURE 3.4 – Fonction de corrélation  $C(\tau)$  pour le pixel dans le PDMS à gauche et dans l'écoulement à droite en fonction de  $\tau(s)$ . On a  $A_0^{PDMS} = -4.3 \cdot 10^{-3}$  et pour le second  $A_0 = 0.42$ . Les variations d'intensité sont représentées sur la figure 3.1.

entre les deux, nous avons déterminé une liste de pixels pour lesquels nous sommes sûrs qu'ils sont sur des plots en PDMS. Cette liste est obtenue en saturant la puce par un fluide très coloré. Le fort contraste entre les plots et les canaux permet de distinguer les deux. On note que les pics sont plus rapprochés pour l'écoulement de carbopol. Pour ce débit, le fluide s'écoule bien partout dans le milieu poreux. Cet effet n'est donc pas dû à l'apparition de canaux sans écoulement. Les indices optiques en présence sont pour le carbopol de 1.33, pour le glycérol de 1.47, pour les billes de PMMA de 1.49 et pour le bloc de PDMS de 1.40. La différence pour les couples d'indice optique du carbopol/billes est plus grande que celui du couple glycérol/billes ce qui explique le décalage des  $A_0$  observés lors du changement de fluide.

La distribution des  $A_0$  ne contenant plus ces pixels est représentée en rouge sur la figure 3.5. Malgré l'opération, il reste des pixels pour lesquels  $A_0$  est petit. Ces pixels chevauchent la frontière entre les plots et le fluide.

Nous allons voir leur importance sur la détermination du champ de vitesse. Pour cela, j'ai analysé les fonctions de corrélation des pixels situés au dessus d'un seuil  $A_s$  pris entre 0.02 et 0.2 pour le carbopol et entre 0.04 et 0.7 pour le glycérol. Pour chaque pixel au dessus du seuil, j'obtiens un  $\frac{1}{\tau_0(x,y)}$ , les autres sont mis à zéro ce qui revient à considérer que la vitesse y est nulle. Les valeurs sont ensuite moyennées sur l'ensemble des pixels. Cette valeur  $\langle \frac{1}{\tau_0} \rangle$  est déterminée pour des expériences réalisées pour différents débits. La figure 3.6 montre la variation de  $\langle \frac{1}{\tau_0} \rangle$  en fonction de la vitesse moyenne de l'écoulement imposé, pour différents seuils  $A_s$  et pour les deux types de fluides.

Par un simple argument de conservation de la masse, nous nous attendons à ce que  $\langle \frac{1}{\tau_0} \rangle$ 



FIGURE 3.5 – En bleu, histogramme des  $A_0$  dans le poreux. En rouge, nous avons retiré les plots en PDMS préalablement trouvés par le seuillage d'une image du poreux saturé par du glycérol coloré en bleu. À gauche, les distributions de  $A_0$  pour une expérience faite avec du carbopol. À droite, les mêmes distributions pour une expérience faite avec du glycérol.



FIGURE 3.6 –  $\langle 1/\tau_0 \rangle$  en fonction de la vitesse imposée  $V(\mu m.s^{-1})$  dans le milieu poreux pour différents seuils  $A_s$ . À gauche pour un écoulement de carbopol avec  $A_s = 0.02$  (bleu), 0.05 (bleu clair), 0.1 (vert), 0.15 (jaune), 0.2 (orange), à droite pour un écoulement de glycérol avec  $A_s = 0.04$  (bleu), 0.1 (bleu clair), 0.3 (vert), 0.5 (jaune), 0.7 (orange).

soit proportionnel à la vitesse imposée avec un coefficient de proportionnalité  $a \ (\mu m)$  à déterminer. On cherche à déterminer les coefficients a et b de l'équation  $\langle \frac{1}{\tau_0} \rangle = \frac{V}{a} + \frac{1}{b}$  pour lesquelles le coefficient de corrélation R est proche de 1. Les tableaux 3.1, pour le carbopol, et 3.2, pour le glycérol, donnent les valeurs de la régression linéaire pour cinq seuils de  $A_s$ . Dans les deux cas, la meilleure corrélation est obtenue pour  $A_s = 0.15$ . On obtient un coefficient directeur  $a = 29.9 \ \mu m$  pour le carbopol et  $a = 10.8 \ \mu m$  pour le glycérol, et  $\frac{1}{b} \approx 0$  pour les deux. On remarque que le seuil  $A_s$  reste identique pour les deux fluides mais la valeur du coefficient directeur change.

$A_s$	0.02	0.05	0.1	0.15	0.2
a	23.4	25.6	27.8	29.9	35.5
b	14	27	94	571	$1.3\cdot10^{11}$
R	0.99141	0.99697	0.9993	0.9994	0.99801

TABLE 3.1 – Tableau des coefficients des fonctions  $\langle \frac{1}{\tau_0} \rangle = \frac{V}{a} + \frac{1}{b}$  pour le carbopol obtenus pour 5  $A_s$ . Les données étudiées sont représentées sur la figure 3.6. Ici : a est en  $\mu m$ , b en s et R est le coefficient de corrélation linéaire.

$A_s$	0.04	0.1	0.3	0.5	0.7
a	9.9	11.4	13.3	15.1	18.8
b	129.8	939.4	$5.4 \cdot 10^{11}$	$7.7\cdot10^{14}$	$2.2 \cdot 10^{13}$
R	0.99892	0.9994	0.99947	0.99773	0.96271

TABLE 3.2 – Tableau des coefficients des fonctions  $\langle \frac{1}{\tau_0} \rangle = \frac{V}{a} + \frac{1}{b}$  pour le glycérol obtenus pour 5 seuils  $A_s$ . Les données analysées sont représentées sur la figure 3.6. a est en  $\mu m$ , ben s et R est le coefficient de corrélation linéaire.

Cette étude systématique montre que le choix du seuil est critique en particulier quand on s'intéresse aux écoulements de faible débit. Ici par exemple pour des vitesses en dessous de 5  $\mu m.s^{-1}$ , il est nécessaire d'avoir étudié l'influence du seuillage. En effet, le seuillage donne plus ou moins d'importance aux pixels à la frontière entre le fluide et le PDMS ce qui impacte positivement ou négativement l'estimation de la vitesse moyenne lorsque celle-ci devient faible. Le seuil a beaucoup moins d'impact avec le glycérol, fluide pour lequel le contraste d'indice est bien meilleur.

# 2 Conclusion

Nous avons décrit dans ce chapitre une méthode originale de mesure de champ de vitesse sur des milieux poreux assez grands avec une faible résolution spatiale. Il serait intéressant d'étendre cette méthode avec d'autres types de fluide et d'autres types de traceurs afin de relier de façon plus systématique les paramètres d'étalonnage aux différents paramètres de l'expérience. Cette méthode semble tout à fait adaptée à des systèmes plus complexes comme les laboratoires sur puce, « lab on chip », pour déterminer le comportement physique de fluides complexes, tels que ceux étudiés.

Nous allons maintenant étudier les propriétés d'un fluide à seuil dans des géométries simples dans le chapitre suivant avant d'appliquer la méthode présentée ici sur un écoulement de carbopol dans un milieu poreux.

# Chapitre 4

# Écoulement de Carbopol dans des géométries simples

## Introduction

La plupart des modèles d'écoulements en milieu poreux s'appuient sur les propriétés d'écoulement dans un simple canal. Nous avons vu dans le chapitre 1 que la loi rhéologique d'un fluide à seuil ne suffit pas dans le cas général à caractériser totalement l'écoulement dans un canal [41, 42, 44, 80], et notamment à petite échelle. D'autres effets doivent en effet être pris en compte comme le glissement aux parois ou les effets non-locaux.

Par conséquent, nous avons, dans un premier temps, mis en œuvre des expériences de vélocimétrie à pression imposée permettant de caractériser ces différents phénomènes dans un canal rectiligne. Ces expériences ont été réalisées à l'aide d'un protocole rigoureux mis en place afin de limiter la thixotropie. L'objectif est de caractériser et de comprendre la relation débit-pression dans un canal droit, en lien avec la loi rhéologique déterminée par rhéométrie standard. Nous verrons qu'il est nécessaire d'ajouter une vitesse de glissement pour modéliser les profils de vitesse. Ce glissement présente une propriété cruciale pour la suite de l'étude.

Dans un second temps, en suivant le même protocole, nous avons étudié une autre géométrie d'écoulement, une boucle asymétrique, qui est une brique élémentaire d'un milieu poreux. Nous montrons que le fluide cesse de s'écouler en premier dans le canal où la contrainte à la paroi est la plus faible. Ces observations illustrent le phénomène de sélection de chemins préférentiels en milieux poreux décrit dans la littérature [65, 62]. Enfin, nous montrons que les solutions de carbopol EDT2050 [80] utilisées durant cette thèse sont thixotropes contrairement à d'autres types de carbopol [29, 81].

# 1 Écoulement simple

#### 1.1 Rhéologie du Carbopol

Pour déterminer les propriétés rhéologiques des solutions de carbopol, nous avons utilisé une géométrie cône-plan avec un cône sablé afin de limiter le glissement à la paroi [41]. Cette géométrie permet de faire une mesure à cisaillement constant dans tout le volume de l'échantillon. Nous avons utilisé deux concentrations 0.3 et 0.7% en masse de Carbopol ETD 2050. Quelques  $\mu L$  d'une solution de billes fluorescentes (Life Technologies) de diamètre  $1\mu m$  ont été rajoutés lors de la préparation des fluides, elles serviront à suivre l'écoulement dans les expériences de vélocimétrie.

Les mesures sont effectuées sous cloche à solvant avec rajout de quelques gouttes d'eau pour limiter l'évaporation. Pour réduire les effets de thixotropie [82], le protocole utilisé pour mesurer la courbe d'écoulement  $\dot{\gamma}(\sigma)$  s'est donc déroulé en deux étapes : avant toutes

mesures, un précisaillement est effectué pendant une minute à fort taux de cisaillement  $(1000s^{-1})$ . Le fluide est ensuite soumis à des paliers de contraintes décroissant allant de 200 à 1*Pa* chacun appliqué pendant 10*min*. En utilisant différentes durées de palier ou taux de précisaillement, nous avons vérifié que nous sommes dans une gamme de paramètres pour lesquels l'histoire du fluide n'intervient pas. Des effets thixotropes apparaissent en revanche pour d'autres types de protocoles, et seront discutés à la fin de ce chapitre.



FIGURE 4.1 – (a) Variation du cisaillement  $\dot{\gamma}$  en fonction du temps pour une concentration de 0.3% de Carbopol avec billes. Chaque couleur représente une valeur de contrainte. La contrainte est diminuée après chaque palier.(b) Courbes de rhéologie pour deux concentrations de Carbopol. Les cercles représentent la courbe d'écoulement pour une concentration de 0.7% de Carbopol. Les triangles et les carrés représentent les courbes d'écoulement d'une même solution de Carbopol de concentration 0.3%, respectivement avec ou sans billes. Les lignes montrent les régressions par une fonction :  $\sigma = \sigma_c + K\dot{\gamma}^n$  des données. On trouve  $\sigma_c = 4.4Pa$ , n = 0.45, K = 5.2(SI), pour une concentration de 0.3% avec billes,  $\sigma_c = 4.8Pa$ , n = 0.48, K = 4.1 pour une concentration de 0.3% sans billes et  $\sigma_c = 15Pa$ , n = 0.52, K = 5.1(SI), pour une concentration de 0.7%. En insert, il s'agit des mêmes courbes en représentation log-log.

La figure 4.1a) montre, pour différentes contraintes appliquées, la valeur du cisaillement mesurée au cours du temps. Suite à un changement de contrainte, le cisaillement varie et met environ une minute avant de se stabiliser à nouveau. Cet effet viscoélastique est principalement observable à faible contrainte. Dans la suite, nous utiliserons comme taux de cisaillement la valeur obtenue en moyennant le signal au-delà d'une minute, lorsque celui-ci devient quasi constant. Les courbes d'écoulement -contraintes en fonction du taux de cisaillement- obtenues pour trois fluides sont représentées sur la figure 4.1.b. Elles sont toutes ajustables par une loi de type Herschel-Bulkley qui comporte trois paramètres d'ajustement : la contrainte seuil  $\sigma_c$  (en Pa), la consistance K et l'exposant de rhéofluidication n. Tout d'abord, nous pouvons observer que la présence de billes a peu d'influence sur le comportement du fluide. Pour les solutions avec billes, la contrainte seuil varie en fonction de la concentration en carbopol. Nous obtenons  $\sigma_c = 4.4$  et 15Pa respectivement pour 0.3 et 0.7% en concentration de carbopol; quant à n il est trouvé constant et proche de 0.5. Enfin la consistance K varie peu.

Il est difficile de comparer précisément ces données à celles de la littérature. En effet, la valeur du seuil et de la consistance dépendent du type de carbopol utilisé [71], de la concentration [72, 83] et de la façon de le mélanger [76]. Le seul point équivalent est que les deux paramètres augmentent avec la concentration en polymères mais que n reste constant et proche de 0.5. Après chaque préparation de fluide ou après une utilisation au-delà de plusieurs jours, la rhéologie a été systématiquement mesurée à nouveau [83]. Ce sont ces valeurs qui sont utilisées pour étudier les propriétés des écoulements dans la suite de l'étude. En compilant toutes les données, nous trouvons respectivement un seuil moyen de  $5 \pm 1Pa$ et  $17 \pm 2Pa$  pour des concentrations de 0.3 et 0.7%.

#### 1.2 Écoulement dans un canal droit

L'objectif de cette série d'expériences est de déterminer si l'écoulement d'une solution de carbopol dans un canal droit peut être correctement décrit en utilisant la rhéologie déterminée au rhéomètre ou si des phénomènes supplémentaires doivent être considérés.

Pour ce faire, nous avons réalisé par une technique de photolithographie, suivant les mêmes méthodes que celles du chapitre 2, le moule d'un canal droit de section rectangulaire. De la même façon que pour le milieu poreux, nous avons obtenu la puce microfluidique par moulage à l'aide de PDMS. La puce a ensuite été collée par gradient de réticulant à une lame de verre préalablement recouvert d'une fine couche de PDMS. Il n'a en revanche pas été nécessaire de plaquer cette géométrie entre deux lames de verre vissées.

La largeur du canal est  $l = 200 \ \mu m$  pour une hauteur de 500  $\mu m$ ; nous allons imager l'écoulement dans la largeur, sur le plan médian horizontal. L'écoulement est réalisé sous pression imposée par un régulateur de pression (MFCS 4C Fluigent). Nous avons aussi pris soin d'utiliser des tubes connectant le canal avec l'extérieur avec une section très large (5 mm de diamètre) en comparaison à la section du canal ce qui permet de négliger les pertes de charge dans ces parties vis à vis de la perte de charge dans la canal. Le canal est placé sous un microscope inversé (Olympus IX71) équipé d'un objectif 40X et d'un équipement de fluorescence. L'acquisition d'images se fait au moyen d'une caméra couplée à un intensificateur (Hamamatsu) lui même piloté par un boitier de synchronisation. La fréquence de la caméra est de 10 images par seconde. Les réglages - comme montré sur la Fig.4.2 - permettent d'observer l'écoulement au milieu de la hauteur du canal et à midistance entre son entrée et sa sortie. Les dimensions de l'image sont de  $512 \times 612$  pixels et la résolution est de 2 pixel/µm. L'illumination est maximale dans le plan focal de l'image. On peut déterminer l'épaisseur de ce plan en reliant l'ouverture numérique de l'objectif NA à la profondeur de champ par la formule  $P_c = \frac{n\lambda}{NA^2}$  avec n l'indice optique séparant l'échantillon de notre objectif, ici l'air,  $\lambda$  la longueur d'onde d'émission de fluorescence ( $\lambda = 515nm$ ). L'ouverture numérique de l'objectif est de 0.75. On obtient donc une profondeur de champ de  $0.9\mu m$ . Les traceurs hors du plan sont ainsi facilement éliminés par seuillage sur leur intensité lumineuse.

Afin d'éviter les effets d'histoire - nous verrons en effet que les solutions de carbopol ETD2050 sont thixotropes -, le récipient contenant le fluide qui va être injecté est placé sur un agitateur magnétique, comme nous pouvons l'observer sur la figure 4.2, permettant ainsi de le maintenir en permanence sous cisaillement.

Après avoir saturé la canal avec la solution de carbopol en prenant soin d'éviter toute apparition ou piégeage de bulles, la hauteur de fluide entre les deux récipients est ajustée de telle façon qu'aucun écoulement lié à une différence de pression hydrostatique entre les deux récipients ne se superpose à l'écoulement que nous imposons. Une forte différence de pression ( $\sim 500 \ mBar$ ) est ensuite imposée pendant 10 minutes pour - comme nous l'avons fait dans le rhéomètre - précisailler le fluide. À partir de là, la pression est progressivement diminuée par palier. De la même manière que pour la rhéologie, un palier est maintenu 10 min. Pour chaque palier de pression, 1000 images sont acquises à une fréquence que nous avons adaptée à la vitesse du fluide. Pour ces séries d'expériences, nous avons fait varier la fréquence de 10 à 1 images par seconde. Les séquences sont ensuite analysées à l'aide de la routine de PIV présentée dans le chapitre 2.

La figure 4.3 montre des profils de vitesse v(y) obtenus pour un même fluide pour plusieurs différences de pression.

Comme attendu pour un fluide à seuil, nous observons au centre de l'écoulement une région pour laquelle la vitesse est constante. Ce "bouchon" est entouré par une zone de cisaillement particulièrement bien visible pour des pressions comprises entre 250 à 170 mBar. Pour des pressions plus faibles, la région cisaillée est moins visible et l'écoulement semble totalement bouchon. Dans tous les cas, la vitesse du fluide à la paroi n'est pas nulle,



FIGURE 4.2 – Représentation schématique de l'expérience de PIV permettant de mesurer les profils des vitesses dans un canal de section rectangulaire. Le fluide reste agité en permanence par un agitateur magnétique (1). La puce microfluidique (4) est composée d'un bloc de PDMS posé sur une lame de verre recouverte de PDMS. Elle est reliée par des tubes de diamètre 1/4 de pouce à des connectiques d'entrée et de sortie (2). Le sens de l'écoulement est marqué par une flèche (3). Le dispositif optique (5) est composé d'un microscope composé d'un objectif avec un grossissement de 40X et d'une caméra Hamamatsu. Le fluide est mis en écoulement par un régulateur de pression(6) (Fluigent). L'éclairage est réalisé par un équipement de fluorescence composé d'une ampoule à mercure ( $\lambda = 750nm$ ). La focalisation se fait sur un plan passant à mi hauteur du canal. Le fluide est ensemencé par des billes de diamètre 1  $\mu m$ . On obtient ainsi un écoulement dans le canal suivant l'axe des x.

démontrant l'existence d'une vitesse de glissement.

#### **1.3** Ajustement des profils de vitesse

En faisant l'approximation que l'écoulement dans le canal rectangulaire étudié est similaire à celui réalisé entre deux plaques parallèles, on bénéficie d'une formule analytique, démontrée au chapitre 1, donnant le profil de vitesse v(y) à partir des constantes rhéologiques intervenant dans le modèles de Herschel-Bulkley. En remplaçant la condition d'adhérence aux parois par une vitesse de glissement  $V_g$ , on obtient directement :



FIGURE 4.3 – Profils de vitesse ajustés avec la loi de rhéologie macroscopique pour différentes pressions pour une concentration de 0.7% en carbopol. Chaque profil de vitesse est réalisé à l'aide d'une différence de pression entre les deux récipients. La contrainte à la paroi équivalente  $\sigma_w = \frac{\Delta Pl}{2L}$  est aussi indiquée.

$$v(y) = V_g + \begin{cases} \frac{n}{n+1} (\frac{2}{l} \frac{K}{\sigma_w}) ((\frac{\sigma_w}{K} - \frac{\sigma_c}{K})^{(\frac{1}{n}+1)} - (\frac{\sigma_w}{K} \frac{2y}{l} - \frac{\sigma_c}{K})^{(\frac{1}{n}+1)}) & \text{si } \frac{\sigma_c}{\sigma_w} \cdot \frac{l}{2} < y < \frac{l}{2}, \\ \frac{n}{n+1} (\frac{2}{l} \frac{K}{\sigma_w}) (\frac{\sigma_w}{K} - \frac{\sigma_c}{K})^{(\frac{1}{n}+1)} & \text{si } 0 < y < \frac{\sigma_c}{\sigma_w} \cdot \frac{l}{2}, \\ 0 & \text{si } \sigma_w < \sigma_c. \end{cases}$$
(4.1)

Dans l'équation précédente, la contrainte à la paroi  $\sigma_w$  est donnée par  $\Delta Pl/2L$ . L'approximation effectuée consistant à assimiler la section du canal à une fente semble grossière puisque le rapport d'aspect de la section rectangulaire n'est que de 5/2. Cependant, la mesure étant réalisée dans le plan médian, cette approximation est parfaitement justifiée puisqu'au voisinage de ce plan, le gradient vertical de vitesse est très faible par rapport au gradient latéral.

Les profils expérimentaux sont ajustés par l'équation 4.1, avec la vitesse de glissement comme unique paramètre ajustable. Les meilleurs ajustements, montrés pour la solution à 0.7% sur la figure 4.3, sont en bon accord avec les données expérimentales. Nous parvenons à la même conclusion avec la solution à 0.3%. Notons que pour plus de robustesse, la procédure d'ajustement utilisée a consisté à déterminer  $V_g$  à partir des vitesses mesurées dans la région centrale uniquement, représentant un tiers de la largeur. Ainsi, nous pouvons conclure que les caractéristiques rhéologiques des solutions de carbopol suffisent à prédire les taux de cisaillement dans ce canal de 200  $\mu$ m de large. A cette échelle, il ne semble pas que des effets associés au confinement ou à des effets coopératifs soient à prendre en compte. En revanche, le glissement joue un rôle prépondérant puisque dans la gamme de contraintes étudiée ( $\sigma_w/\sigma_c < 4$ ) la vitesse de glissement est supérieure à la vitesse engendrée par le cisaillement.

Ces résultats ne sont pas en accord avec les résultats publiés par Géraud *et al* [44] sur des solutions de carbopol ETD 2050 de concentrations voisines à celle étudiée ici. En effet, ces auteurs mettent évidence dans un canal de 120  $\mu$ m un taux de cisaillement local supérieur à celui mesuré au rhéomètre, ce qui est attribué à des effets coopératifs. Nous trouvons au contraire un bon accord entre la rhéologie mesurée en volume et en microcanal. Néanmoins cette contradiction n'est qu'apparente puisqu'on peut invoquer divers arguments permettant de réconcilier les observations :

i) L'augmentation de la vitesse en confinement dans les expériences de Géraud *et al.* n'est significative que pour des contraintes relativement grandes (i.e. pour  $\sigma_w/\sigma_c > 3$ ), alors que nos résultats concernent une gamme de contraintes plus faible.

ii) Les auteurs notent une importance de la préparation des échantillons sur l'apparition de ces effets de confinement [44].

iii) Les parois utilisées sont différentes et elles peuvent jouer un grand rôle sur le taux de cisaillement aux murs [48], lequel est une grandeur ajustable et encore mal comprise dans le cadre d'une approche non-locale. En particulier, la rugosité des surfaces de PDMS utilisée est relativement faible et ne favorise à priori pas les réarrangements coopératifs [48].

Il semble que des études complémentaires, en faisant varier notamment la largeur du canal et la rugosité des murs, seraient intéressantes pour approfondir le débat sur les phénomènes non locaux associés au confinement dans les fluides à seuil. Néanmoins, pour la suite de cette étude, la conclusion importante est qu'ils sont négligeables dans nos dispositifs et que la rhéologie locale est en accord avec la rhéologie déterminée au rhéomètre. Un glissement important est toutefois à prendre en compte et est décrit plus en détail dans les paragraphes suivants.

#### 1.4 Étude du glissement

Sur les figures Fig. 4.4 et 4.5, nous avons représenté la vitesse de glissement ainsi que la vitesse moyenne de l'écoulement obtenue en intégrant les profils de la figure Fig.4.3 en fonction non pas du gradient de pression  $\Delta P/L$  mais de la contrainte à la paroi  $\sigma_w = \frac{l}{2} \frac{\Delta P}{L}$ , pour les deux solutions de carbopol étudiées. Cette représentation a l'avantage de permettre une comparaison directe avec les valeurs de contraintes imposées avec le rhéomètre. Les expériences ont été réalisées en diminuant par palier la pression et en s'assurant que la



FIGURE 4.4 – Les cercles vides et les étoiles représentent respectivement la vitesse moyenne  $\langle V \rangle$  et la vitesse de glissement  $V_g$  mesurées dans un canal de largeur  $l = 200 \mu m$  en fonction de la contrainte à la paroi  $\sigma_w$ . Les expériences sont faites avec une solution de carbopol de concentration à 0.7%. La contrainte seuil mesurée au rhéomètre est  $\sigma_c = 15Pa$ . Le fluide commence à s'écouler pour une contrainte  $\sigma'_c = 9Pa$  indiquée par une flèche verticale. L'insert donne la variation du rapport  $V_g/\langle V \rangle$  en fonction de  $\sigma_w$ .



FIGURE 4.5 – Les cercles vides et les étoiles représentent respectivement la vitesse moyenne  $\langle V \rangle$  et la vitesse de glissement  $V_g$  mesurées dans un canal de largeur  $l = 200 \mu m$  en fonction de la contrainte à la paroi  $\sigma_w$ . Les expériences sont faites avec une solution de carbopol de concentration 0.3%. La contrainte seuil mesurée au rhéomètre est  $\sigma_c = 4.8Pa$ . Le fluide commence à s'écouler pour une contrainte  $\sigma'_c = 2Pa$  indiquée par une flèche verticale.

vitesse mesurée pour chaque palier est bien constante. On constate que la vitesse moyenne est approximativement égale à la vitesse de glissement même au-delà du seuil  $\sigma_c$ , et jusqu'à environ  $2\sigma_c$ . Clairement, l'écoulement est dominé par le glissement pour des valeurs de contrainte proches du seuil. Pour les deux solutions, nous observons un glissement significatif même sous le seuil d'écoulement, mais ce glissement présente un seuil que l'on note  $\sigma'_c$ . Pour des contraintes inférieures ou égales à 9 Pa pour le 0.7% (respectivement 2 Pa pour le 0.3%), aucun écoulement n'est détecté et il faut une contrainte supérieure à cette valeur pour détecter un mouvement. Ces contraintes seuil de glissement sont significativement inférieures aux contraintes seuil de cisaillement, qui valent 15 Pa et 5 Pa.

L'observation d'un glissement pour des contraintes inférieures au seuil d'écoulement macroscopique est en accord avec plusieurs travaux antérieurs [41, 42, 84, 46], de même que l'existence d'une contrainte seuil pour ce glissement [41].

La modélisation - même empirique - de la loi de glissement ne fait pas l'objet d'un consensus dans la littérature. Suivant les travaux, la vitesse de glissement est décrite comme une fonction puissance soit de la contrainte  $V_g \propto \sigma^{\alpha}$  [44, 42], de l'écart à la contrainte seuil macroscopique  $V_g \propto (\sigma - \sigma_c)^{\beta}$  [25] ou encore de l'écart à la contrainte seuil de glissement  $V_g \propto (\sigma - \sigma'_c)^{\gamma}$  [41]. Par ailleurs, il a été argumenté que la loi de glissement pouvait être différente au-delà du seuil macroscopique d'écoulement [25]. Dans les paragraphes suivants, nous testons ces différentes lois.

Sur la figure 4.6 est représentée la vitesse de glissement en fonction de l'écart au seuil de glissement. Nous introduisons au passage un nombre sans dimension qui nous sera utile pour la suite, construit à l'instar de  $Bi^{-1}$  sur l'écart au seuil apparent d'écoulement :  $Bi_{eff}^{-1} = (\sigma - \sigma'_c)/\sigma'_c$ . Si pour la solution à 0.3%, les données sont compatibles (mais sur une seule décade) avec une loi de type  $V_g \propto (\sigma - \sigma'_c)^{\gamma}$ , où  $\gamma \simeq 1.1$ , les données correspondant à la solution à 0.7% ne sont pas compatibles avec une loi de puissance unique. Pour des grandes valeurs de contrainte, l'exposant  $\gamma$  est de 1.8, ce qui est proche des observations et du modèle de Meeker *et al* [41], en revanche, lorsqu'on s'approche du seuil de glissement, l'exposant est beaucoup plus faible, de l'ordre de 0.5. Ceci vient du fait que nous observons que l'écoulement est complétement figé à 8 Pa et glisse très significativement à 10 Pa. Cette transition abrupte est relativement inattendue, et pourrait faire penser à une rupture d'adhésion à la contrainte  $\sigma'_c$ .

Nous avons représenté sur la figure 4.7 la vitesse de glissement en fonction de la contrainte au mur, normalisée par la contrainte seuil. Les données semblent compatibles avec une loi de type  $V_g \propto \sigma^2$  suggérée par différents auteurs [44, 41], et ne montrent pas d'inflexion remarquable au voisinage du seuil d'écoulement  $\sigma_c$ . Il est à noter que cette loi quadratique, séduisante par sa simplicité et par son interprétation physique (voir cidessous) n'est valable que pour  $\sigma > \sigma'_c$  puisque le glissement est nul en deçà de  $\sigma'_c$  (données

non représentées sur la figure 4.7). La loi de glissement présenterait alors une discontinuité pour  $\sigma = \sigma'_c$ . Une étude plus approfondie serait nécessaire pour confirmer ou non cette hypothèse.



FIGURE 4.6 – Vitesse de glissement des solutions de carbopol à 0.7% (carrés) et 0.3% (cercles), représentée en fonction de l'écart au seuil de glissement :  $Bi_{eff}^{-1} = (\sigma - \sigma'_c)/\sigma'_c$ . Les lignes indiquent les lois de puissance locales.

Terminons cette section par revenir sur l'interprétation physique du glissement. Il y a consensus sur le fait que le glissement des suspensions de particules déformables (émulsions, microgels) n'est qu'un glissement apparent dû à une couche de déplétion qui agit comme une couche de lubrification le long des parois. L'épaisseur de cette couche de dépletion,  $\delta$ , peut être estimée directement par  $\delta \simeq \mu V_g/\sigma$ , où  $\mu$  est la viscosité du solvant. Compte tenu de l'ordre de grandeur des vitesses de glissements mesurées, cette couche ne serait que de l'ordre de quelques nanomètres (en accord avec les valeurs estimées par Jofore *et al.* [43]). Il n'est donc pas surprenant d'observer un fort glissement. Le fait que, dans le régime de glissement (pour  $\sigma > \sigma'_c$ ), on observe comme d'autres auteurs [41, 44] une loi quadratique en contrainte indique par ailleurs que cette couche augmente avec la contrainte appliquée. En 2004, Meeker *et al.* ont proposé un modèle élastohydrodynamique pour rendre compte de ce type de comportement [41]. L'idée est que les forces hydrodynamiques dans le film de lubrification, de l'ordre de  $\mu V_g/\delta^2 r$  (où r est la taille d'une particule de microgel) compensent la force due à la pression osmotique, approximativement constante,



FIGURE 4.7 – Vitesse de glissement des solutions de carbopol à 0.7% (carrés) et 0.3% (cercles), représentée en fonction de la contrainte au mur  $\sigma_w$ , normalisée par la contrainte seuil macroscopique  $\sigma_c$ . Les lignes correspondent aux meilleurs ajustements obtenus avec une fonction quadratique.

qui déforme les particules de microgel sur les parois. Ainsi, l'épaisseur de la couche de déplétion varie comme  $V_g^{1/2}$ , ce qui, combiné avec l'équation précédente conduit à  $V_g \propto \sigma^2$ .

Cette interprétation semble cohérente avec nos données expérimentales (voir figure 4.7) pour  $\sigma > \sigma'_c$ . L'existence d'un seuil pour le glissement n'a pour le moment pas fait l'objet d'un consensus dans la littérature, ni, à notre connaissance été interprété. La discontinuité du glissement en  $\sigma = \sigma'_c$  pourrait faire penser à une rupture d'adhésion entre les particules de microgel et la paroi, ou, symétriquement, à un saut au contact provoqué par les forces d'interaction entre les paroi et les particules de microgel. Lorsque l'épaisseur de la couche de déplétion est trop faible, l'équilibre élastohydrodynamique évoqué ci-dessous pourrait devenir instable et provoquerait une adhérence aux parois. Cette hypothèse est par ailleurs étayée par l'observation d'une forte hystéresis entre des paliers de pression décroissants puis croissants. La vitesse moyenne de l'écoulement (et donc le glissement) est strictement nulle lors de la remontée en pression jusqu'à des contraintes de l'ordre du double de la pression correspondante à  $\sigma'_c$ . Des expériences complémentaires mériteraient d'être envisagées pour confirmer cette vision.

#### 1.5 Écoulement dans une boucle

Nous avons caractérisé l'écoulement du carbopol dans un canal simple. Nous avons ainsi pu montrer le rôle du glissement et son influence sur l'arrêt de l'écoulement. Nous allons maintenant ajouter un élément de complexité : le fluide peut s'écouler par deux chemins. En changeant la longueur ou la largeur d'un des canaux comme le montre la figure 4.8, chaque canal aura un seuil différent. L'objectif est donc d'observer les conditions d'arrêt de l'écoulement et voir si elles dépendent des géométries utilisées.



FIGURE 4.8 – Dispositif (a) : la boucle est obtenue par Soft Lithographie (cf chapitre 2). L'entrée et la sortie se trouvent à gauche et à droite de la boucle. Les canaux y ont la même longueur. Son rayon externe est de 2, 5mm. Elle se compose de deux canaux de largeur différente : 0.2mm pour le plus large, 0.1mm pour le plus étroit. Le canal d'entrée et de sortie ont une largeur de 0.2mm et une longueur de 10mm. La profondeur est de 0.5mm pour tout le système. Dispositif (b) : la boucle est obtenue à l'aide d'une fraiseuse numérique. La sortie est à 90 ° de l'entrée par rapport à la boucle. C'est donc la longueur des canaux qui varie. Les canaux de cette puce font tous une largeur de 1mm pour une hauteur de 2.5mm. Les canaux d'entrée et de sortie, qui connectent la boucle, ont une longueur de 50mm. Le rayon externe de la boucle est de 5.5mm. Les zones d'observation sont encadrées en rouge.

Comme dans le paragraphe précédent, nous appliquons au départ une très forte différence de pression et nous observons un écoulement dans les deux canaux. Progressivement, nous avons diminué la pression, la vitesse du fluide diminue dans le système. À une valeur de pression donnée, nous avons observé l'arrêt de l'écoulement du fluide dans le canal le plus étroit ou le plus long, alors que le fluide continue de s'écouler dans le second canal. La figure 4.9 illustre cette phase pour laquelle l'écoulement n'a lieu que dans un seul des deux canaux. Cette image est obtenue par superposition d'images. On voit alors les lignes de courant se dessiner dans le canal de la boucle en écoulement. Ce mécanisme est à la base de la formation de chemins préférentiels en milieu poreux et est qualitativement très simple à interpréter à partir de l'existence d'un seuil en contrainte pour l'écoulement et d'une hétérogénéité de contrainte. Les deux branches de la boucles étant soumises à la même différence de pression, la contrainte aux parois est plus faible dans le bras le plus long (ou le plus étroit). Lorsque cette contrainte devient inférieure à la contrainte seuil, il n'y a plus d'écoulement dans cette branche. Notons que compte tenu de la caractérisation du glissement effectuée ci-dessus, la contrainte seuil qui intervient est à priori la contrainte de seuil de glissement,  $\sigma'_c$ .



FIGURE 4.9 – Les deux images sont obtenues par superposition d'images sur un temps de plusieurs secondes. À gauche, nous visualisons un écoulement dans le dispositif (a) avec une solution de carbopol (c = 0.3%). L'écoulement suit les ligne de courant et se fait de gauche à droite. Le canal de 0.2mm est en haut. La contrainte à la paroi est sous le seuil dans le canal de 0.1mm. Il n'y a donc pas d'écoulement. À droite, nous visualisons un écoulement dans le dispositif (b) avec une solution de carbopol (c = 0.7%). Le canal est plus long en haut. Comme pour la figure de gauche, la contrainte à la paroi dans le canal le plus long est sous seuil. Il n'y a pas d'écoulement.

Si on laisse l'écoulement dans un seul canal se prolonger, on peut observer l'apparition d'un "opercule" lumineux à l'entrée du canal sans écoulement comme présenté figure 4.10.



FIGURE 4.10 – Image obtenue après avoir laissé l'écoulement dans la grande boucle alors que le fluide est à l'arrêt dans la boucle étroite. On observe l'accumulation de billes au niveau de la frontière séparant fluide en mouvement et fluide à l'arrêt.

#### Dispositif (a)

La cellule utilisée dans le dispositif (a) et schématisée figure 4.8.a a été réalisée par la technique de soft lithographie utilisée précédemment. Pour faire la mesure en différents endroits de la boucle, nous avons rajouté au système précédent une table de déplacement automatisé pilotée par ordinateur à l'aide d'une routine matlab, sur laquelle nous avons placé la cellule microfluidique. Ce système permet de réaliser des séquences d'images en trois endroits comme indiqué sur la figure 4.8.a.

Comme pour le canal droit, l'écoulement a lieu en appliquant tout d'abord une forte différence de pression qui est ensuite diminuée progressivement. Pour chaque pression, trois films contenant 1000 images sont réalisés. La figure 4.11 montre les profils de vitesses obtenus après analyse. Pour les plus grandes pressions et dans le canal le plus large (Fig. 4.11.a), on remarquera que la vitesse sur l'extérieur de la boucle est 10% plus forte que sur la paroi à l'intérieur de la boucle, cet effet est particulièrement visible aux fortes vitesses et provient de la courbure du canal. Le taux de cisaillement en géométrie cylindrique est en effet donné par  $r\partial_r(v_{\theta}/r)$ . Compte tenu du rayon de la boucle, la pente observée sur la figure 4.11 est compatible avec un cisaillement nul. Ceci est en accord avec les résultats obtenus dans un canal rectiligne : nous sommes dans un régime d'écoulement type bouchon pour lequel le glissement domine. Les vitesses dans le canal le plus étroit sont presque deux fois



FIGURE 4.11 – Profils de vitesse dans les canaux de  $200\mu m$  (à gauche) et de  $100\mu m$  (à droite) définis pour chaque différence de pression aux bornes du système avec une solution de carbopol (c = 0.3%). Les flèches bleues indiquent le sens de l'écoulement, les boîtes rouges les zones d'observations.

plus petites que dans le canal le plus large.

Les courbes de la figure 4.12 montrent la vitesse moyenne mesurée dans le canal d'entrée (avant la boucle). Les données sont comparées à celles obtenues dans le canal droit pour une même contrainte à la paroi sur la figure 4.12. Les résultats sont assez proches, mais la contrainte seuil  $\sigma'_c$  est ici légèrement inférieure (1 Pa au lieu de 2 Pa dans le canal droit).

La figure 4.13 montre les vitesses moyennes dans chacune des branches de la boucle et dans le canal d'entrée. On constate un seuil d'écoulement pour  $\Delta P = 300$  Pa dans le canal d'entrée (c'est à dire pour une contrainte à la paroi d'environ 1 Pa) et dans la branche de 200  $\mu$ m. Dans la branche de 100  $\mu$ m, l'écoulement reste figé jusqu'à une pression d'environ 500 Pa. En dessous de cette pression, on peut donc relier la différence de pression aux bornes du système à celle aux bornes de la boucle en utilisant la relation  $\sigma_w = \frac{\Delta P \cdot l}{2L}$ . Nous obtenons :

$$\Delta P_{boucle} = \frac{L_{boucle}}{L} \cdot \Delta P. \tag{4.2}$$

Lorsque l'écoulement dans le canal étroit se fige, cette équation permet d'obtenir une estimation de la contrainte à la paroi dans cette branche. La largeur de la branche étroite étant la moitié de celle de la branche large, on s'attend à ce que l'arrêt se produise pour une pression double. Dans la branche la plus étroite, l'arrêt se fait pour  $\Delta P \simeq 500Pa$ . On retrouve donc bien cette prédiction, même si une mesure plus précise des seuils serait nécessaire pour conclure plus catégoriquement. Néanmoins, ces observations permettent de valider le fait qu'une différence de largeur entre des canaux parallèle conduit effectivement



FIGURE 4.12 – Vitesse moyenne dans le canal d'entrée de largeur  $200\mu m$  ( $\Box$ ) du dispositif boucle (a) en fonction de la contrainte à la paroi comparée à celle en canal droit ( $\circ$ ). En trait plein, la courbe d'ajustement de la forme  $\alpha(\sigma_w - \sigma'_c)^{\beta}$  avec  $\alpha = (2.5 \pm 0.5) \cdot 10^{-3}$ (SI),  $\sigma'_c =$ 1Pa, et  $\beta = 1.34\pm0.05$ . En pointillé, la courbe d'ajustement avec  $\alpha = (3.4\pm0.05) \cdot 10^{-3}$ (SI),  $\sigma'_c = 2Pa$ , et  $\beta = 1.35 \pm 0.02$  pour les données dans un canal droit de même largeur. Les deux expériences sont faites avec une concentration de 0.3% en carbopol.



FIGURE 4.13 – Vitesse moyenne dans le canal d'entrée de largeur  $200\mu m$  ( $\Box$ ) en fonction de la différence de pression aux bornes du système. Les vitesses mesurées dans le canal de  $100\mu m$  ( $\circ$ ) et dans celui de  $200\mu m$  ( $\diamond$ ) sont aussi représentées. En insert, nous avons zoomé autour de la valeur de la différence de pression seuil.

à la formation de chemins préférentiels, puisque entre 300 et 500 Pa, l'écoulement est entièrement concentré dans la branche la plus large.

#### Dispositif (b)

Nous avons vérifié si ces derniers résultats étaient aussi observables dans d'autres conditions. À cette fin, nous avons changé la taille des boucles ainsi que le type de matériaux. Les boucles ont été obtenues par fraisage, méthode décrite dans le chapitres 2, dans un bloc de plastique PMMA. La largeur des canaux est de 1mm pour 2.5mm de profondeur. Comme présenté sur la figure 4.8.b, c'est, contrairement au dispositif (a), la longueur de chaque canal de la boucle qui est différente. Nous souhaitions aussi visualiser toute la boucle. Nous avons donc opté pour le système présenté figure 4.14 : la cellule est éclairée sur le côté à l'aide d'une nappe laser, le fluide est parsemé de billes de  $10\mu m$  contenant de la rhodamine, le tout filmé par une caméra (Pixelink) de résolution  $2048 \times 2500$  pixels, à laquelle on ajoute un objectif 50X et un filtre qui élimine l'éclairage laser en laissant passer la couleur par fluorescence des billes éclairées. Des ombres liées à l'éclairage du système par le côté et à la géométrie du système nous ont empêché d'utiliser le système de PIV précédent. Nous avons utilisé la routine de "tracking" présentée dans le chapitre 2. Comme le montage précédent, le fluide est mis en mouvement à l'aide d'une pompe en pression (Elveflow), contrôlée sous labview. Nous avons modifié le protocole. Ainsi nous avons appliqué une diminution continue de la pression en fonction du temps tout en mesurant la vitesse à chaque instant.

Nous obtenons ainsi la figure 4.15 où l'on peut observer la vitesse moyenne en fonction de la différence de pression imposée aux bornes du système. On constate que, comme pour le dispositif a), il existe une gamme de pression pour laquelle l'écoulement est entièrement concentré dans la branche favorable, c'est à dire pour ce dispositif, la branche courte. En effet, la contrainte à la paroi est en théorie 3 fois plus élevée dans cette branche que dans la branche longue. Pour ce dispositif, il n'est pas possible d'interpréter quantitativement les valeurs de pression seuils. En effet, nous nous sommes rendus compte à posteriori que les pertes de charges dans les tuyaux d'alimentation n'étaient pas négligeables, contrairement au dispositif microfluidique. Elles sont au moins 10 fois supérieures à la perte de charge due au canal d'étude. Ceci vient du fait que ce canal a des dimensions plus grandes, et qu'il semble expérimentalement impossible de s'en affranchir. Il aurait fallu équiper le dispositif de capteurs de pression in situ, afin de pouvoir exploiter quantitativement cette géométrie d'écoulement. On remarquera quand même la variation quadratique de la vitesse avec la pression comme prévu pour des pressions beaucoup plus fortes que le seuil (cf. équation (4.1)).

Qualitativement en revanche, cette expérience illustre bien le mécanisme de formation



FIGURE 4.14 – Schéma du montage. Une pompe en pression permet de mettre en écoulement le fluide dans la puce. Une nappe laser verte ( $\lambda = 510nm$ ) horizontale fait fluorescer les billes contenues dans le fluide. Une caméra (Pixelink) munie d'un filtre et d'un objectif 50X permet de filmer l'écoulement.



FIGURE 4.15 – Vitesse moyenne en fonction de la différence de pression, dans la branche longue (en bleu) et dans la branche courte (en noir).

de chemins préférentiels. Il suffit d'une différence de contrainte à la paroi, due soit à une hétérogénéité de taille (dispositif a), soit à une hétérogénéité de longueur (dispositif b), pour que les branches défavorables ne contribuent plus à l'écoulement à faible débit.

# 2 Mise en évidence et étude de la thixotropie du carbopol (ETD 2050)

Le carbopol est un polymère très utilisé par l'industrie cosmétique. Il en existe de différentes sortes dont les propriétés changent suivant le matricule. Les solutions de carbopol sont généralement décrites comme non thixotropes [34, 29, 16]. Divoux *et al.* [82, 26] ont en revanche montré récemment des effets temporels sur le carbopol ETD 2050 notamment l'apparition d'un overshoot au démarrage à l'application d'un cisaillement constant [82] ainsi qu'un processus de fluidisation transitoire avec apparition de bandes de cisaillement lors d'un changement de cisaillement [26]. Pourtant les auteurs ne parlent pas de fluide thixotrope. Nous allons continuer ici ces expériences afin de pouvoir mieux caractériser le carbopol ETD 2050.

#### 2.1 Résultats expérimentaux

Afin de mettre en évidence et d'étudier le rôle de l'histoire du fluide sur sa rhéologie, nous avons réalisé des expériences différentes de celles proposées dans les paragraphes précédents. Tout d'abord, nous avons effectué une boucle d'hystérésis (figure 4.16). Pour cela, nous avons repris le protocole présenté en première partie. L'expérience a été réalisée au rhéomètre dans une géométrie de type cône-plan. Nous avons tout d'abord effectué un pré-cisaillement durant une minute à fort taux de cisaillement ( $1000s^{-1}$ ). Le fluide est ensuite soumis à des paliers de contrainte décroissante allant de 200 à 1Pa puis de 1 à 200Pa chacun appliqué pendant 10min. Nous observons alors sur la figure 4.16 un seuil plus élevé en descente qu'en montée. Ce phénomène est particulièrement marqué pour des contraintes proches du seuil, comprises ici entre 20 et 40Pa. Ce phénomène est d'autant plus accentué avec le temps de mesure pour chaque point.

Pour mieux caractériser ce phénomène temporel, nous avons réalisé des expériences de fluage. Au lieu de précisailler fortement le fluide avant de lui appliquer une contrainte, nous avons intercalé entre ces deux processus un temps de repos  $t_w$  que nous allons contrôler. La figure 4.17 montre un exemple caractéristique des résultats obtenus. Le taux de cisaillement augmente lentement avant de rejoindre un état stationnaire. Ce régime transitoire est assez long, et est de l'ordre de grandeur du temps d'attente. On remarque que l'augmentation du taux de cisaillement, initialement modérée, s'accélère très significativement avant



FIGURE 4.16 – Observation du phénomène de thixotropie au rhéomètre dans une géométrie cône-plan. La mesure est d'abord effectuée par palier de contrainte décroissante (point en dessous) puis à palier de contrainte croissante (point au dessus). Un palier dure 10min. Les points sont obtenus en moyennant sur les 8 dernières minutes. Aux faibles taux de cisaillement, les mesures en montée et en descente sont différentes. Pour les grandes contraintes, les courbes se superposent. Le fluide utilisé est une solution de carbopol avec une concentration de 0.7% wt.

l'état stationnaire en  $t = \tau_f$ . Ce comportement est typique du phénomène de vieillissement physique durant la phase de repos, suivi d'un rajeunissement sous écoulement lorsque la contrainte est de nouveau appliquée. Nous remarquons une ressemblance avec les résultats à cisaillement constant de Divoux *et al.* [26] que nous avons détaillés dans le chapitre 1. Nous observons nous aussi trois régimes d'écoulement : tout d'abord, le cisaillement augmente de façon linéaire, régime décrit par Divoux comme du glissement total à la paroi, un second régime dit transitoire où Divoux observe des bandes de cisaillement, enfin le régime constant où l'écoulement est homogène. Nous n'avons pas de moyen d'observation de l'écoulement entre les deux géométries, nous ne pouvons donc pas confirmer les mesures de Divoux *et al.* En revanche, nous avons cherché à confirmer que cet effet correspondait à un vieillissement physique. Nous avons pour cela fait varier le temps d'attente du fluide pour trois contraintes proches de la contrainte seuil : 20, 30 et 40*Pa*. Les résultats obtenus pour les trois contraintes sont présentés sur la figure 4.18.

Nous observons tout d'abord que proche du seuil, pour une contrainte de 20*Pa*, le régime stationnaire ne semble pas atteint au bout d'une heure. Pour les deux autres contraintes,  $\tau_f$ augmente avec  $t_w$  et diminue avec la contrainte. Le temps caractéristique  $\tau_f$  est représenté



FIGURE 4.17 – Mesure dans une géométrie cône-plan du cisaillement  $\dot{\gamma}$  en fonction du temps pour une solution de carbopol (0.7%). Le fluide est soumis à une contrainte constante de 30Pa après avoir été mis au repos pendant  $t_w = 600s$ . En reprenant les notations utilisées par Divoux *et al.* [26], nous pouvons observer 3 régimes : linéaire, transitoire et constant. Le temps caractéristique  $\tau_f$  est défini comme le maximum de  $\frac{\partial \dot{\gamma}}{\partial t}$ .

en fonction du temps d'attente sur la figure 4.19 pour les deux contraintes. On peut ajuster les courbes de la figure 4.19 par  $t_w \propto \tau_f^n$  avec  $n \simeq 0.5$  pour  $\sigma = 30Pa$  et  $n \simeq 0.7$  pour  $\sigma = 40Pa$ . Cette augmentation du temps caractéristique avec le temps d'attente démontre que les propriétés de la suspension de carbopol ont évolué pendant le temps d'attente. La réponse transitoire en fluage est donc due à un rajeunissement sous écoulement et non à un effet viscoélastique. On en déduit que le carbopol ETD 2050 doit être considéré comme un système thixotrope, dont la structure évolue au repos et qui se rajeunit sous cisaillement. Pendant le rajeunissement, il est probable que l'écoulement soit hétérogène, comme le suggèrent les expériences de Divoux *et al.* [26].

#### 2.2 Tentative de modélisation

Les systèmes thixotropes sont généralement décrits par des modèles faisant intervenir un paramètre reflétant l'évolution de la structure du système ( $\lambda$ -modèle, voir chapitre 1). Nous avons cherché à reproduire nos expériences de fluage à l'aide d'une version de ces modèles. Le  $\lambda$ -modèle proposé par Coussot [34] est l'un des plus simples (voir chapitre 1) et se résume au système d'équations suivant :

$$\begin{cases} \eta = \eta_0 (1 + \lambda^n) \\ \frac{\partial \lambda}{\partial t} = \frac{1}{T} - \alpha \lambda \dot{\gamma} \end{cases}$$
(4.3)



FIGURE 4.18 – Mesures, dans une géométrie cône-plan, du cisaillement  $\dot{\gamma}$  en fonction du temps pour une solution de carbopol (0.7%) pour trois contraintes 20, 30 et 40*Pa* avec à chaque fois 5 temps d'attente :  $t_w = 60$  (en bleu foncé), 300 (en rouge), 600 (en noir), 1800 (en bleu clair), 6000s (en jaune). On repère par un trait droit brun les valeurs de  $\tau_f$ .

Nous avons représenté sur la figure 4.20 une résolution numérique de ces équations en utilisant des paramètres arbitraires. Le cisaillement en fonction du temps est tracé pour différents temps d'attente et contraintes. On retrouve qualitativement les deux observations décrites ci-dessus (voir figure 4.18) : le fluage est d'autant plus long que le temps d'attente est élevé et est plus rapide si la contrainte est plus élevée. Qui plus est, l'allure des fonctions de fluage est en bon accord avec l'expérience puisque l'augmentation du taux de cisaillement est dans un premier temps lente puis s'accélère significativement avant que l'état stationnaire soit atteint.

Les valeurs de paramètres pour  $T, n, \eta_0$  choisis permettent d'obtenir des ordres de gran-



FIGURE 4.19 – Temps caractéristique  $\tau_w(s)$  en fonction du temps d'attente  $t_f(s)$  représentés en log-log. Les cercles représentent la contrainte  $\sigma = 30Pa$ , les carrés la contrainte  $\sigma = 40Pa$ . En orange, l'ajustement réalisé à l'aide d'une loi de puissance de la forme  $at_w^n$  avec a = 41.5 et n = 0.48 pour  $\sigma = 30Pa$  et a = 0.9 et n = 0.7 pour  $\sigma = 30Pa$ . En insert, les mêmes courbes en échelle linéaire.

deurs comparables à ceux de l'expérience. Toutefois, il semble difficile d'obtenir un accord quantitatif avec les données expérimentales. De plus, si on s'intéresse à la loi d'écoulement  $(\sigma, \dot{\gamma})$ , le modèle ci-dessus prédit un cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$ , en dessous duquel l'écoulement n'est plus homogène. Or, les profils de vitesse obtenus en canal ne présentent pas de discontinuité de pente, ce qui indique qu'un tel cisaillement critique n'existe pas pour ce système. Il conviendrait de modifier le  $\lambda$ -modèle présenté ci-dessus, mais une étude plus complète de la thixotropie de cette solution semble nécessaire pour y parvenir et sort du cadre de ce travail. Pour cette étude complémentaire, il conviendrait par ailleurs d'avoir une approche locale, dans la mesure où les résultats de Divoux *et al.* [26] suggèrent que pour  $t < \tau_f$ , l'écoulement est inhomogène et que les propriétés de glissement dépendent également du temps.

# 3 Conclusions et perspectives

Dans ce chapitre, nous avons montré que proche du seuil, la loi rhéologique ne peut pas s'appliquer directement pour décrire l'écoulement d'un fluide à seuil dans un canal.

#### 3. Conclusions et perspectives



FIGURE 4.20 – Cisaillement  $\dot{\gamma}$  en fonction du temps obtenu par résolution numérique du  $\lambda$ -modèle avec pour paramètre n = 1.5,  $\eta_0 = 10$  Pa.s,  $\alpha = 20$ , et T = 20 s pour six temps d'attentes :  $t_w = 50$  s, 100 s, 150 s, 200 s, 250 s 300s pour une contrainte constante  $\sigma = 30$  Pa (bas) et  $\sigma = 40$  Pa (haut).

Il est nécessaire d'ajouter une vitesse de glissement, laquelle domine l'écoulement. En revanche, et malgré la relative petite taille des canaux, nous n'avons pas observé d'effets de confinement : les profils de vitesse sont en très bon accord avec les propriétés rhéologiques de la solution.

Nous avons mis en évidence un glissement important, même en dessous du seuil de contrainte  $\sigma_c$  en dessous duquel la solution n'est plus cisaillée. La vitesse de glissement varie globalement comme une fonction quadratique de la contrainte, en accord avec les descriptions antérieures et une modélisation élasto-hydrodynamique. Toutefois en dessous d'un seuil  $\sigma'_c < \sigma_c$ , nous observons que le fluide ne glisse plus, ce que nous avons interprété comme la conséquence d'une force d'adhésion. D'un point de vue pragmatique, si on cherche une loi phénoménologique pour la vitesse moyenne en fonction de la contrainte, on peut l'exprimer comme une loi de puissance en fonction de l'écart au seuil de glissement. Nous avons pour cela introduit un nombre de Bingham effectif, construit à l'instar du nombre de Bingham, mais en utilisant le seuil de glissement.

Par ailleurs, dans des géométries de boucles, nous avons montré que la présence d'un seuil de glissement conduisait à la formation de chemins préférentiels, dus à des différences de largeur ou de longueur entre les branches des boucles.

Enfin nous avons montré que le carbopol ETD 2050 était thixotrope, les propriétés

d'écoulement dépendent de l'histoire du fluide : la solution vieillit au repos et est rajeunie par le cisaillement.

Si la description de l'écoulement est suffisante pour pouvoir décrire les expériences réalisées en micromodèle que nous présentons dans le chapitre suivant, les questions ouvertes restent nombreuses. En particulier, une étude systématique des propriétés de glissement permettrait de confirmer l'hypothèse du rôle de l'adhésion sur l'existence d'un seuil pour le glissement. D'autre part, la caractérisation des conséquences du vieillissement (module élastique, par exemple) par des techniques de rhéométrie locale permettrait de mieux décrire les propriétés thixotropes du système. Dans la suite, nous avons systématiquement travaillé avec des rampes ou des paliers de pression descendants pour en limiter les conséquences sur les observations.

#### 3. Conclusions et perspectives

#### En résumé :

- On retrouve la loi de rhéologie dans le canal droit à condition d'ajouter une vitesse de glissement.
- On observe un seuil  $\sigma'_c$  d'écoulement plus faible que le seuil mesuré au rhéomètre  $\sigma_c$ , dû aux propriétés de glissement.
- Le carbopol ETD 2050 est thixotrope.

# Chapitre 5

# Écoulement de Carbopol dans un milieu poreux

## Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons nos travaux sur l'écoulement du carbopol dans le milieu poreux obtenu par microfabrication. Tout d'abord, nous décrivons le protocole expérimental. Nous étudions ensuite cet écoulement de deux points de vue. Nous appliquons la méthode d'observation et d'analyse développée dans le chapitre 3 à l'écoulement d'une solution de carbopol dans le micromodèle. Les cartes des vitesses permettent une analyse et une interprétation des mesures de la perte de charge en fonction de la vitesse de l'écoulement dans le milieu. Nous verrons que, à l'approche du seuil, le contraste entre les vitesses augmente traduisant l'apparition de régions dans lesquels l'écoulement se concentre. Les régions autour ne sont pas au repos, il y subsiste un écoulement très faible ( $\sim 0.1V$ ) mais mesurable. Nous terminerons le chapitre en comparant la loi d'écoulement avec celle mesurée dans le canal droit (cf. chapitre 4).

## 1 Protocole expérimental

Le milieu poreux utilisé est composé de  $110 \times 110$  canaux rectangulaires tournés à  $45^{\circ}$  dans un carré de 5*cm*. La largeur des canaux est répartie aléatoirement selon une loi lognormale où la largeur moyenne est fixée à  $200\mu m$ , l'écart type à  $100\mu m$  et la hauteur à  $600\mu m$ . La méthode de fabrication du poreux est présentée dans le chapitre 2. Le dispositif d'observation est identique à celui présenté au chapitre 3. Le milieu poreux est placé sur une grille ayant une taille de maille de  $20\mu m$  et est rétroéclairé par une dalle de lumière uniforme blanche. Les écoulements sont filmés par dessus à l'aide d'une caméra JAI munie d'un capteur CMOS composé de  $2456 \times 2058$  pixels. La résolution du système est de  $0.04 \ pixels/\mu m$ .

Le milieu poreux est tout d'abord saturé par de l'eau colorée. Le colorant bleu sert à identifier les parties solides et les canaux composant le réseau. Une fois rempli, il reste quelques bulles piégées à l'intérieur de la cellule. Nous créons alors une légère surpression dans le poreux à l'aide d'une seringue en fermant toutes les autres sorties. L'air piégé va ainsi diffuser à travers le PDMS. Cette étape dure quelques heures.

Le carbopol utilisé a une concentration de 0.7% auquel on a ajouté des billes de PMMA (0.3%) de  $6\mu m$  de diamètre. Il est ensuite injecté par un pousse-seringue (Nemesys) à un débit de  $1900\mu L.h^{-1}$ . Une fois la cellule remplie, on diminue le débit progressivement par paliers successifs afin de limiter les effets d'histoire (protocole semblable au canal droit présenté dans le chapitre 4). Nous exprimerons par la suite les débits en termes de vitesse moyenne, c'est à dire en posant  $V = \frac{Q}{N.S}$  où Q est le débit divisé par le nombre de canaux N (ici 110) et S la section moyenne d'un canal  $(1.2 \cdot 10^5 \mu m^2)$ . On mesure la pression aux

#### 2. Visualisation de l'écoulement

$V \;(\mu m.s^{-1})$		39.98	35.77	31.57	27.36	23.15	18.94	16.83	14.73	12.62		
Fréquence $(Htz)$		7.2	7.2	7.2	7.2	7.3	7.2	7.2	6.8	7.2	}	
Durée $(s)$		417	417	417	417	411	417	417	441	417		
10.52	8.42	6.31	4.21	3.16	2.10	1.68	1.37	1.05	0.84	0.63	0.42	0.21
3.7	3.7	3.7	1.9	1.9	1.3	1.1	0.75	1.5	1.5	1.1	1.1	1.1
811	811	811	1579	1579	2308	2727	4000	2000	2000	2727	2727	2727

FIGURE 5.1 – Tableau des fréquences d'acquisition de la caméra utilisées et de la durée d'un film en fonction de la vitesse moyenne de l'écoulement imposée. En jaune, les débits que nous présenterons plus en détail dans le reste de ce chapitre.

bornes du milieu à l'aide d'un capteur 5 *psi* présenté dans le chapitre 2. Pour chaque palier en débit, on réalise un film de 3000 images afin d'obtenir une bonne statistique sur la mesure de la vitesse. Ne pouvant augmenter le nombre d'images pour des raisons de post traitement, nous avons progressivement diminué la fréquence d'acquisition afin d'augmenter la durée des films et mesurer ainsi les plus faibles vitesses. La fréquence d'acquisition utilisée pour chaque débit est ainsi présentée dans le tableau 5.1.

Une fois l'expérience terminée, on injecte une solution de soude en réalisant des va-etvient avec la seringue. La soude va permettre de faire collapser les blobs de carbopol et de supprimer progressivement le seuil permettant le nettoyage et la réutilisation de la cellule.

# 2 Visualisation de l'écoulement

#### 2.1 Cartes des vitesses

En utilisant la méthode d'analyse présentée chapitre 3, nous obtenons des cartes des vitesses dont une partie est présentée figure 5.3 pour 6 débits différents. Nous avons pris soin de vérifier que l'inverse du temps caractéristique de décroissance de la fonction de corrélation de l'intensité lumineuse  $\langle \frac{1}{\tau_0} \rangle$  varie bien linéairement avec la vitesse moyenne imposée V. L'inverse du temps de décorrélation mesuré est représenté en fonction de la vitesse V sur la figure 5.2. Nous obtenons bien une variation linaire mais un coefficient directeur  $\frac{1}{a}$  avec  $a = 22.9 \mu m$  plus grand que celui mesuré avec le glycérol.

Sur les cartes des vitesses (figure 5.3), chaque valeur de pixel correspond à la vitesse mesurée divisée par la vitesse imposée V. Le code couleur permet de distinguer 4 zones : en noir, les murs et les vitesses nulles, de bleu foncé à bleu les vitesses inférieures à la vitesse moyenne, en bleu clair les vitesses égales à la vitesse moyenne, de vert à rouge les vitesses 2 à plus de 3 fois la vitesse moyenne.


FIGURE 5.2 –  $\langle \frac{1}{\tau_0} \rangle$  en  $s^{-1}$  en fonction de la vitesse imposée en  $\mu m.s^{-1}$ . En rouge, les débits représentés sur la figure 5.3. La ligne noire est l'ajustement linéaire des données, la pente de la droite est :  $\frac{1}{22.9} \mu m^{-1}$ 

La première carte de la figure 5.3, pour  $V = 14.7 \ \mu m.s^{-1}$ , ici le plus fort débit présenté, est globalement bleu clair. L'écoulement y est relativement homogène en comparaison avec la carte de vitesse du glycérol de l'article. Quand on diminue le débit, des zones bleues et des zones orange apparaissent (voir les cartes 2 et 3). Sur les cartes 4 et 5, deux zones apparaissent clairement l'une bleu foncé pour de faibles vitesses comprises entres 10 et 80% de la vitesse moyenne et en rouge des fortes vitesses de 2 à 3 fois la vitesse moyenne. Sur la dernière carte, 3 chemins connectant l'entrée et la sortie du milieu se dégagent nettement, le reste ayant des vitesses inférieures à 0.1V. On peut donc constater que plus le débit diminue, plus des chemins se distinguent et émergent. Les disparités de vitesse d'écoulement augmentent, jusqu'à avoir des zones d'écoulement très lentes contrastées par des zones d'écoulement très rapides.

## 2.2 Distribution des vitesses

Nous pouvons extraire des cartes les distributions des vitesses pour chaque débit imposé. Sur la figure 5.4, nous avons tracé les distributions des six cartes de la figure 5.3. Nous observons ainsi que pour les débits 14.7, 6.3 et  $3.2 \ \mu m.s^{-1}$ , les distributions se superposent assez bien. En revanche pour les débits 1.4, 0.84 et  $0.42 \ \mu m.s^{-1}$ , nous observons un décalage du maximum vers les faibles vitesses. Cela correspond à ce que l'on observe sur les cartes de vitesse 4, 5 et 6, la surface des zones bleues, représentant les zones de faibles vitesses, augmentent. Sur les mêmes cartes, les zones rouges se ramifient, ce que l'on observe aussi sur la figure 5.4 par un étalement des distributions de vitesse vers les grandes vitesses.



FIGURE 5.3 – Cartes des vitesses pour différents débits :  $V = 14.7, 6.3, 3.2, 1.4, 0.84, 0.42 \ \mu m.s^{-1}$  (de gauche à droite et de haut en bas). La barre colorée verticale donne le codage couleur de la vitesse locale mesurée normalisée par la vitesse moyenne



FIGURE 5.4 – Distribution des vitesses normalisées pour du carbopol à une concentration de 0.7% pour différentes vitesses moyennes V = 14.7 (bleu foncé), 6.3 (bleu) 3.2 (bleu clair), 1.4 (vert), 0.84 (jaune) et 0.42  $\mu m.s^{-1}$  (orange). La courbe noire a été obtenue avec du glycérol.

Pour mieux quantifier ce phénomène, nous avons calculé la densité de pixel N dont la vitesse est plus grande ou plus petite que la vitesse moyenne. Les données sont représentées par les carrés et les cercles de la figure 5.5. Ce nombre est défini suivant un critère arbitraire et nous l'avons donc estimé pour différents seuils. Afin d'être sûrs que ce critère représente bien la réalité des phénomènes observés, nous allons tout d'abord en définir trois et les comparer. Le premier est défini comme le nombre de pixels où la vitesse est supérieure à la vitesse moyenne  $N = \frac{Nbr_{pixel}(\frac{v}{V}>1)}{Nbr_{pixel}}$ . Le second  $N_1 = \frac{Nbr_{pixel}(\frac{v}{V}<1)}{Nbr_{pixel}}$  caractérise le nombre de  $\frac{Nbr_{pixel}(\frac{v}{V}>0, 5)}{Nbr_{pixel}}$ pixels où la vitesse est inférieure à la vitesse moyenne et le troisième  $N_2 = \frac{Nbr_{pixel}(\frac{v}{V} > 0.5)}{Nbr_{pixel}}$ caractérisant cette fois-ci le nombre de pixels où la vitesse est supérieure à la moitié de la vitesse moyenne. On représente ces trois nombres en fonction de la vitesse moyenne imposée sur la figure 5.5. Pour les vitesses les plus grandes, les deux valeurs sont proches indiquant qu'il y a quasi autant de pixels pour lesquels la vitesse est plus grande ou plus petite que la vitesse moyenne. Lorsque la vitesse est diminuée la densité de pixels ayant une vitesse plus petite que V augmente (voir les carrés de la figure 5.5) et la valeur des cercles diminue. Ce résultat est en accord avec les observations faites sur les distributions qui, comme nous l'avons vu, se désymétrisent avec un maximum qui se décale vers les petites vitesses (cf figure 5.4). La variation de la densité n'est pas continue, on remarque une nette rupture de pente pour une vitesse  $V_{rc} \sim 2.1 \ \mu m.s^{-1}$ . Une rupture de pente identique (losanges de la figure 5.5) est observée si on change le critère de vitesse et que nous choisissons de calculer

la densité de pixel ayant une vitesse plus grande que 0.5V.



FIGURE 5.5 – Cercles : densité, N, de pixels ayant une vitesse plus grande que la vitesse imposée V. Carrés : densité,  $N_1$  de pixels pour lesquels v(x, y) < V. Les losanges montrent la proportion,  $N_2$ , de pixels pour lesquels v(x, y) > 0.5V. Les données sont représentées en fonction de la vitesse moyenne V en  $\mu m.s^{-1}$ . La ligne noire verticale indique la vitesse  $V_{rc}$ séparant les deux régimes d'écoulement.

Cette vitesse particulière se situe entre l'image 3 et 4 de la figure 5.3. Si l'on compare ces deux cartes, trois chemins se dégagent nettement sur l'image 4 alors qu'ils sont moins marqués sur l'image 3. Ce changement de régime correspond à l'apparition du régime de chemins. Des chemins où l'écoulement est privilégié apparaissent, la vitesse d'écoulement diminuant dans le reste du milieu poreux. On observe bien deux comportements distincts pour les distributions de vitesse de la figure 5.4 du débit  $V = 3.2 \mu m.s^{-1}$  (bleu clair) et  $V = 1.4 \mu m.s^{-1}$  (en vert). Pour les débits supérieurs à  $V_{rc}$  le maximum des distributions de vitesse se trouve autour de  $\frac{v}{V} \approx 1$ . Au-delà, nous voyons un décalage du maximum vers les faibles vitesses et qui correspond à la zone de décroissance de la figure 5.5.



FIGURE 5.6 – À gauche, agrandissement d'une zone de la carte 6. Les deux cartes suivantes sont obtenues au même endroit. Elles sont le résultat de l'analyse de 500 images acquises après une attente de 1800 s



FIGURE 5.7 – Agrandissement d'une zone de l'image 6 de la figure 5.3. La barre couleur code la valeur de la vitesse mesurée normalisée par la vitesse imposée V.

## 2.3 Effet temporel

Plusieurs études ont montré le caractère thixotrope du carbopol. Pour montrer que la structure n'évolue pas pendant la durée de l'acquisition des vidéos, nous avons découpé le film de l'image 6 (figure 5.3) d'une durée de 2727s (3000 images) en 6 séquences de 454s (500 images). La figure 5.6 montre une partie agrandie de la carte faite en utilisant la première et dernière séquence. Les deux séquences sont séparées de 1800s. Malgré un bruit plus fort, on observe bien que les deux cartes sont similaires. Les chemins, où l'écoulement est privilégié, restent les mêmes. On ne constate pas de modification de l'organisation de l'écoulement sur le temps du film.



FIGURE 5.8 – En haut, intensité en fonction du temps sur la durée de la séquence de 2727s pour le pixel pour lequel  $\frac{v}{V} = 4$ . En bas à gauche, intensité en fonction du temps sur un intervalle de 400s. En bas à droite, fonction de corrélation en fonction de  $\tau$  pour le même pixel. L'analyse donne  $\tau_0 = 5.6 \ s$  soit  $\frac{v}{V} = 4$ .

#### 2.4 Discussion : pertinence de l'estimation des très faibles vitesses

La carte des vitesses 6 de la figure 5.3 présente des vitesses locales inférieures à un dixième de la vitesse d'écoulement soit  $0.042 \ \mu m.s^{-1}$ . Nous allons démontrer que cette mesure correspond bien à un déplacement du fluide et n'est pas un artefact. Comme nous pouvons l'observer sur un agrandissement de la carte 6 (figure 5.7), les zones de très faible vitesse d'écoulement sont parsemées de pixels de forte vitesse. Nous avons sélectionné deux pixels : l'un pour lequel nous avons mesuré une vitesse supérieure à 4 fois la vitesse moyenne et un second pour lequel la vitesse mesurée est 9% de la vitesse moyenne. Nous avons représenté sur la figure 5.8 et sur la figure 5.9 les intensités lumineuses mesurées ainsi que les fonctions de corrélation  $C(\tau)$  calculées.

Pour les deux pixels, on observe que le signal d'intensité est bruité. Malgré tout on observe bien une variation aux temps longs (~ 500 s), qui signifie que l'on a bien un mouvement. Lorsque l'on trace les fonctions de corrélation correspondantes, on remarque de fortes variations de la valeur de  $C(\tau)$ . Pour le premier pixel (cf figure 5.8), la fonction de corrélation est dominée par le bruit de la caméra. Le temps caractéristique  $\tau_0$  mesuré est en conséquence très faible ce qui se traduit par une vitesse anormalement forte. Ces fortes vitesses ne peuvent pas être supprimées en post-traitement car leurs vitesses sont du même ordre de grandeur que les vitesses mesurées le long des grandes structures. Pour le second pixel de la figure 5.9, la fonction de corrélation fluctue aussi, malgré tout la variation d'intensité au temps long domine et on mesure un  $\tau_0$  grand correspondant à une



FIGURE 5.9 – En haut, intensité en fonction du temps sur la durée de la séquence de 2727s le pixel pour lequel  $\frac{v}{V} = 0.09$ . En bas à gauche, intensité en fonction du temps sur un intervalle de 400s. En bas à droite, fonction de corrélation en fonction de  $\tau$  pour le même pixel. L'analyse donne  $\tau_0 = 235.4 \ s$  soit  $\frac{v}{V} = 0.09$ .



FIGURE 5.10 – Densité de pixels à zéro en fonction de la vitesse V en  $\mu m.s^{-1}$ .

vitesse petite.

Sur les cartes, nous mesurons aussi des vitesses nulles. Elles se concentrent autour de zones solides détectées par l'injection de l'eau colorée. Les pixels concernés sont donc des pixels qui n'ont pu être discriminés. Ce nombre ne doit pas être affecté par un changement de condition d'écoulement. C'est bien ce que nous voyons sur la figure 5.10 qui montre la densité de zéro en fonction de la vitesse moyenne de l'écoulement. La densité reste toujours



FIGURE 5.11 – À gauche, mesure de la pression en fonction du temps pour le glycérol dans le milieu poreux. À droite, pression en fonction de la vitesse moyenne V.

entre 10 et 20% indépendamment de la vitesse. On peut donc conclure que nous n'avons pas de chemins où la vitesse d'écoulement est nulle. Nous avons aussi mesuré la pression lors de cette expérience et allons donc comparer ces résultats à la contrainte mesurée.

## 3 Courbe d'écoulement

### 3.1 Mesure de la perte de charge dans le poreux

À l'aide des capteurs de pression, nous avons pour chaque palier de débit mesuré la pression en fonction du temps. Nous avons tout d'abord réalisé cette mesure à l'aide d'un fluide newtonien : du glycérol pur. À gauche de la figure 5.11, nous avons représenté la pression en fonction du temps. Nous observons des paliers de pression stables. En moyennant, nous obtenons la courbe débit pression pour le glycérol sur la figure 5.11 à droite. On obtient bien une droite en accord avec la loi de Darcy :

$$\nabla P = \frac{\mu}{k} V \tag{5.1}$$

où k est la perméabilité du milieu. Pour notre système, on obtient une perméabilité de  $k = 248.6 \times 10^{-8} m^2$  soit  $\sqrt{k} \sim 50 \ \mu m$ .

Nous présentons maintenant la courbe d'écoulement pour le carbopol sur la figure 5.12. Pour chaque changement de débit, nous observons une diminution forte de la pression puis une augmentation progressive vers un palier. Cette évolution est de plus en plus longue dès que l'on s'approche du seuil. Il devient ainsi difficile de mesurer une pression constante pour les pressions proches de la contrainte seuil. Une fois que nous constatons que la pression varie pour moins de 100 Pa autour d'une valeur constante, l'acquisition est lancée. Le



FIGURE 5.12 – À gauche, mesure de la pression en fonction du temps. Chaque diminution de débit est marquée par une brusque diminution de la pression suivie d'une augmentation lente vers un plateau. À droite, pression moyennée sur les plateaux en fonction de la vitesse moyenne en  $\mu m.s^{-1}$ . En rouge, les vitesses moyennes dont les cartes des vitesses sont présentées figure 5.3.

signal de pression est ensuite moyenné sur la durée du film. La figure 5.12 montre cette pression en fonction de la vitesse moyenne de l'écoulement. Dès que la vitesse devient plus petite que  $V_{rc}$ , la pression devient constante et varie très peu. Nous observons bien un seuil d'écoulement. En moyennant les valeurs des pressions pour les vitesses plus petites que  $0.5\mu m.s^{-1}$ , nous trouvons :  $\Delta P_s = 4969 \pm 100 \ Pa$ .

## 3.2 Étude du seuil d'écoulement

Nous allons maintenant comparer la valeur du seuil de pression à celles observées dans les géométries plus "simples". Comme pour nos précédentes expériences, nous allons définir une contrainte à la paroi effective pour le milieu poreux en fonction de la différence de pression  $\Delta P$ , de la largeur moyenne des canaux  $\langle w \rangle$ , et de la longueur L du milieu :

$$\sigma_w = \frac{\Delta P. \langle w \rangle}{2\sqrt{2.L}} \tag{5.2}$$

Le  $\sqrt{2}$  est introduit pour tenir compte de l'orientation à 45° du milieu poreux. L'utilisation de l'équation précédente nous donne une estimation du seuil d'écoulement à atteindre à la paroi pour la mise en écoulement 7.0 ± 0.2Pa. Ce seuil effectif est inférieur à la contrainte seuil de glissement dans le canal droit évalué à  $\sigma'_c = 9.0 \pm 0.5Pa$  (cf chapitre 4). La contrainte dans le poreux est aussi nettement inférieure à la contrainte seuil de 15 Pa obtenue au rhéomètre sans glissement. Notre résultat va donc dans le sens d'un seuil do-

#### 3. Courbe d'écoulement



FIGURE 5.13 – Chemin préférentiel déterminé en minimisant l'intégrale  $\min \int \frac{1}{w(s)} ds$ . La carte des largeurs w(x, y) générée pour la réalisation de la puce a été placée sur un réseau carré puis le chemin connectant l'entrée et la sortie de la puce a été extrait en utilisant un algorithme de minimisation [85].

miné par le glissement.

L'écart entre les seuils observés dans le canal droit et le poreux peut s'expliquer par la largeur caractéristique utilisée dans l'équation Eq.(5.2). Ici, nous avons pris la valeur moyenne des largeurs. Or, proche du seuil, l'écoulement se concentre sur des chemins qui lui sont le plus favorable, c'est-à-dire des chemins plus larges que le chemin moyen. Pour estimer cette largeur, nous sommes partis de la carte des ouvertures utilisées pour générer la puce.

Nous pouvons calculer l'ouverture moyenne du chemin le plus large, c'est à dire le dernier chemin pour lequel le fluide continuera à s'écouler comme représenté sur la figure 5.13. Cela revient à minimiser l'intégrale  $min \int \frac{1}{w(s)} ds$  et calculer une contrainte seuil à la paroi en utilisant cette nouvelle largeur. Le chemin obtenu est représenté sur la figure 5.13. Pour ce chemin la contrainte à la paroi seuil est 0.8 fois celle du canal droit. Le même rapport est trouvé entre la contrainte ( $7.0 \pm 0.2 Pa$ ) obtenue avec l'équation (5.2) et celle déterminée dans le canal droit ( $9.0 \pm 0.5 Pa$ ). Tout semble indiquer que le seuil d'écoulement dans le milieu poreux est lui aussi fixé par le seuil d'arrêt du glissement dans le chemin le plus large. Le seuil corrigé reste proche du premier seuil estimé ce qui indique que notre milieu a une hétérogénéité modérée.



FIGURE 5.14 – En haut, densité de pixels, N, ayant une vitesse plus grande que la vitesse imposée V - en  $\mu m.s^{-1}$  - en fonction  $Bi^{-1}$ . En dessous, courbe d'écoulement représentant la vitesse moyenne imposée en fonction du  $Bi^{-1}$ . La ligne pointillée verticale indique  $V_{rc}$ . La ligne pointillée horizontale, nous avons reporté la valeur de  $Bi^{-1}$  obtenue lorsque  $V = V_{RC}$ .

# 3.3 Loi d'écoulement en fonction du nombre de Bingham équivalent $Bi^{-1}$

Maintenant que nous connaissons la contrainte seuil, nous allons repartir du nombre sans dimension pris comme l'écart à la contrainte seuil effective normalisé par la contrainte seuil effective que l'on assimilera à l'inverse du nombre de Bingham  $Bi^{-1} = \frac{\sigma_w - \sigma'_c}{\sigma'_c}$  défini au chapitre 1. Nous pouvons ainsi représenter l'évolution de la vitesse moyenne ainsi que la densité N en fonction de ce paramètre comme le montre la figure 5.14.

La figure nous montre que l'expérience s'est déroulée pour un Bi équivalent compris entre 25 et 0.5 soit une contrainte à la paroi comprise entre  $\sigma_w = 1.04 \sigma'_c$  et  $\sigma_w = 3.2 \sigma'_c$ . Nous restons donc toujours relativement proches du seuil. On reporte en pointillé la vitesse moyenne pour laquelle on a observé un changement de pente de la densité N. On obtient  $Bi_{rc} = 5$ . Au-dessus de  $Bi_{rc}^{-1}$ , la courbe d'écoulement (figure 5.14) est ajustée par une loi de puissance égale à 1.13. La loi de puissance se prolonge en dessous de cette valeur, puis pour  $Bi^{-1} < 0.1$  s'écarte très largement. L'exposant observé est plus petit que celui obtenu pour la même concentration dans un canal droit (1.3 au lieu de 1.13 ici). Comme pour le canal droit, il est nettement plus faible que l'exposant attendu en supposant que localement l'écoulement suive la loi rhéologique d'H-B. Dans ce cas, l'exposant attendu serait de  $1/n \sim 2$ . L'exposant observé traduit donc - comme pour le canal droit - un régime d'écoulement dominé par le glissement.

On peut aller plus loin en comparant quantitativement les lois d'écoulement mesurées dans le canal droit et le poreux. Sur la figure 5.15, nous avons représenté pour les deux écoulements V en fonction du  $Bi_{eff}^{-1}$  équivalent. De plus, nous connaissons le ratio entre la contrainte seuil dans le poreux et la contrainte seuil dans le canal : il est de 0.8. Nous pouvons donc recalculer la largeur moyenne d'un canal droit ayant la même contrainte seuil que le poreux. Nous obtenons une largeur moyenne de  $250\mu m$ . Nous avons recalculé le  $Bi_{eff}^{-1}$  avec cette nouvelle largeur représentée par des triangles sur la figure 5.15. Nous pouvons observer que l'écoulement est plus rapide dans le canal que dans le milieu poreux, même si l'on augmente la largeur moyenne. Plusieurs phénomènes peuvent expliquer cette perte de charge supplémentaire : le premier se trouve dans la méthode de mesure. En canal droit, on mesure la vitesse moyenne équivalente à une fente infinie car on ne regarde que le milieu du canal. En poreux, en revanche, on mesure la vitesse moyenne réelle. Les deux géométries ne sont donc pas complètement comparables. La différence observée est néanmoins trop grande pour être expliquée par cette différence de mesure. Le second se trouve dans la forme de l'écoulement au niveau des intersections. La séparation du solide en glissement et sa redistribution dans les canaux peuvent "coûter" une énergie importante qui peut expliquer la résistance supplémentaire observée. On peut donc se demander si l'écoulement quasi-bouchon ne pose pas d'autres problèmes que nous n'observons pas dans le canal droit. Enfin, le glissement nécessite peut-être une longueur d'établissement non visible sur le canal droit.

## 4 Discussion, conclusions et perspectives

En développant des puces microfluidiques contenant un grand nombre de canaux de section variable, nous avons reproduit le désordre classiquement observé dans les milieux poreux. L'avantage de cette technique est de permettre une vision locale de l'écoulement. L'information mesurée à l'échelle du pore nous permet d'interpréter les données macro-scopiques obtenues en mesurant la perte de charge en fonction de la vitesse moyenne de l'écoulement. Beaucoup d'études ont porté sur cette échelle et ont confirmé l'existence d'une loi d'écoulement équivalente à celle de H-B à l'échelle du poreux. Dans ce chapitre, nous avons appliqué la mesure développée dans le chapitre 3 au carbopol pour une concen-



FIGURE 5.15 – Les carrés représentent la courbe d'écoulement dans le canal droit. Les cercles représentent la courbe d'écoulement dans le milieu poreux. Les triangles représentent la courbe d'écoulement dans le milieu poreux avec un  $Bi_{eff}^{-1}$  calculé avec une largeur moyenne de  $250\mu m$ .

tration donnée (0.7%) et une hétérogénéité donnée. La mesure des champs de vitesse nous permet d'obtenir des cartes de vitesse pour différents débits. Nous observons ainsi l'apparition de chemins où l'écoulement est privilégié. Nous n'observons pas de fluide à l'arrêt dans le milieu poreux. On peut donc supposer n'être qu'au début du régime de chemin. Il aurait fallu diminuer encore le débit ou bien augmenter le seuil et les hétérogénéités du milieu poreux. Nous avons défini un nombre sans dimension N afin de décrire le nombre de chemins. Nous avons observé qu'il décroit comme  $N \propto V^{0.3}$  au début du régime de chemin pour  $V_{RC} < 1.4 \mu m.s^{-1}$ .

Nous avons aussi pu obtenir la courbe débit pression que nous avons exprimée en termes de  $Bi^{-1}$  et V. Le seuil obtenu dans le milieu poreux est inférieur au seuil dans le canal droit. Ce phénomène est attendu, en effet l'écoulement, lorsque nous sommes proches du seuil, va être privilégié dans les canaux les plus larges. La largeur moyenne, proche du seuil dans le poreux, est donc supérieure à la largeur moyenne du milieu poreux. Connaissant l'hétérogénéité du milieu poreux, nous avons retrouvé à l'aide d'une simulation numérique la même valeur pour le ratio  $\frac{\sigma_{c,eff}}{\sigma'_c}$ . En connaissant le seuil de glissement dans un canal droit et l'hétérogénéité du milieu poreux, nous pouvons donc obtenir le seuil dans le milieu poreux. La courbe d'écoulement ( $Bi^{-1}, V$ ) présente aussi un changement de tendance pour  $Bi_{RC} = 5$  que nous avons obtenue en reportant  $V_{RC}$ . La mesure de la pression pour des Bi supérieurs à  $Bi_{RC}$  est trop imprécise pour pouvoir en déduire une loi de comportement reliant N au Bi. En comparant la courbe d'écoulement à celle obtenue dans un canal droit, on observe un écoulement plus important dans le canal ce qui peut s'expliquer par l'hétérogénéité du milieu poreux. On peut donc supposer que le glissement dépend assez fortement de la géométrie de l'écoulement. On ne peut donc pas juste transposer la loi d'écoulement du canal droit au milieu poreux.

Enfin, comme dans les travaux de Chevalier, nous n'observons pas de vitesse nulle dans le milieu poreux. On peut alors supposer que l'hétérogénéité de notre milieu poreux est encore trop faible pour pouvoir les observer. Il serait donc intéressant de changer la géométrie du milieu poreux afin d'augmenter son hétérogénéité. Écoulement de Carbopol dans un milieu poreux

## Conclusion et perspectives

## 5 Conclusions

Une détermination propre de la loi de Darcy décrivant l'écoulement des fluides complexes est essentielle pour améliorer la prédiction des écoulements naturels comme ceux de certains hydrocarbures ou d'écoulement d'intérêt industriel. À l'heure actuelle, les équations sont construites par analogie avec l'équation de Darcy "classique". Les équations utilisent des paramètres effectifs. Des modèles analytiques basés sur des représentations simplifiées (comme des faisceaux de canaux parallèles) des poreux permettent de les relier aux constantes rhéologiques des fluides et aux échelles caractéristiques du milieu.

Pour les fluides à seuil, une telle description permet de bien décrire les écoulements loin du seuil. La distance au seuil est mesurée par le nombre de Bingham (Bi) qui caractérise le rapport entre les contraintes élastiques et les contraintes visqueuses. Pour des pressions d'écoulement proches du seuil d'écoulement, l'écoulement se localise le long de chemins particuliers. La courbe d'écoulement ne peut plus être décrite par une loi de Darcy équivalente, mais doit tenir compte de l'hétérogénéité du milieu [86]. L'objectif de ma thèse était de réaliser des expériences dans ces conditions et ainsi confronter la réalité expérimentale aux hypothèses utilisées dans les modèles numériques.

Une telle approche nécessite d'être capable de visualiser aussi finement que possible les détails de la structure de l'écoulement. Les méthodes NMR ou MRI sont des outils qui peuvent être utilisés, par contre elles sont limitées à la mesure de la distribution des vitesses et ne donnent pas accès au détail de la structure des écoulements. L'accès à des échelles pertinentes pour les milieux naturels m'ont conduit à développer un dispositif basé sur la microfluidique.

Après m'être affranchi des problèmes de résolution des champs de vitesse à l'échelle de la puce en développant une méthode de vélocimétrie (cf Chapitre 3), j'ai réalisé des expériences à trois échelles différentes. L'échelle du rhéomètre m'a permis de vérifier la loi rhéologique du carbopol. Par contre cette dernière n'est mesurable que si des précautions sur la rugosité des surfaces sont prises. Pour des surfaces lisses le glissement masque complètement la mesure. Ce dernier reste prépondérant dans les cellules de PDMS. La raison principale est que le seuil de glissement (noté  $\sigma'_c$ ) est plus faible que le seuil d'écoulement ( $\sigma_c$ ).

Dans un canal droit comme dans le poreux, la loi d'écoulement varie comme une loi de puissance de l'écart au seuil avec des exposants de l'ordre de 1. On a donc une analogie très forte avec les écoulements décrits par une loi de Herschel-Bulkley : il existe un seuil puis une variation en loi de puissance. Pour comparer nos mesures avec les études antérieures, nous avons introduit un nombre de Bingham équivalent basé sur la contrainte de glissement et non plus sur la contrainte visqueuse. Nos résultats montrent que pour les forts Bingham le glissement est un phénomène qui peut modifier fortement le régime d'écoulement.

La comparaison entre nos observations à l'échelle du canal et du poreux, nous permet d'aller plus loin et de répondre à la question concernant la possibilité de modéliser l'écoulement dans le poreux à partir de la loi d'écoulement à l'échelle du canal. Alors que cette démarche est classiquement faite pour prédire l'écoulement à grande échelle par une équation de Darcy équivalente, pour notre cas cette démarche ne semble pas être la bonne. En effet les vitesses mesurées dans le poreux sont beaucoup plus faibles que celles mesurées dans le canal à contrainte équivalente. Ce résultat montre que les propriétés de glissement d'un réseau de canaux ne sont pas équivalentes à celle d'un long canal. Nous avons émis plusieurs hypothèses pour expliquer cet écart surprenant, celui que nous aimerions explorer dans le futur concerne les conséquences des intersections sur les propriétés d'écoulement : celles-ci en effet brisent nécessairement l'écoulement bouchon, et semblent modifier les propriétés de glissement. Nous pensons qu'il serait intéressant d'étudier les profils de vitesse d'un écoulement au voisinage d'une intersection unique.

En comparaison avec les résultats numériques de Talon *et al.*, nous retrouvons aussi une localisation des écoulements le long de quelques chemins à faible débit. Par contre, nous n'avons pas réussi à mettre en évidence l'influence de cette localisation sur les courbes d'écoulement macroscopiques. Au contraire, nous observons une seule loi de puissance avec un seul exposant. Ce résultat en apparence contradictoire avec l'observation d'une localisation s'explique par le fait qu'aux débits auxquels nous avons travaillé, le nombre effectif de chemins reste assez élevé et est du même ordre de grandeur que le nombre de chemins effectifs observé pour de grandes pressions. Il aurait fallu travailler avec des débits encore plus faibles que ceux étudiés, mais il devient alors impossible de mesurer avec une précision suffisante l'écart entre la pression et la pression seuil. Afin d'observer une influence de la localisation de l'écoulement sur la pression, nous pensons qu'il faudrait travailler sur des micromodèles à la fois de plus grande taille, et à la fois plus hétérogènes, ce qui semble être un véritable défi expérimental.

L'expérience dans le poreux nous révèle l'absence de région où la vitesse d'écoulement est strictement nulle. Ce résultat est peut-être à rapprocher des observations de Chevalier *et al.* [53]. Dans ce travail, les distributions de vitesses d'un carbopol en écoulement dans un empilement de billes ne révèlent aucun pic autour de zéro. L'analogie n'est pas complète, car les auteurs concluent à une absence de variation de la distribution des vitesses avec le Bingham. La gamme explorée  $(0.1 < B_i^{-1} < 1$  pour Chevalier *et al.*) est plus réduite que celle étudiée ici, mais si on se réfère à nos résultats, aurait dû être suffisante pour voir une modification de la distribution.

## 6 Perspectives

Comme nous l'avons vu, nos résultats soulèvent de nombreuses questions qui mériteraient de nouvelles approches et de nouvelles expériences pour mieux décrire l'écoulement d'un fluide à seuil en milieu poreux.

En effet, nous sommes encore loin de pouvoir prédire l'écoulement d'un fluide à seuil à faible débit dans un milieu poreux, même en disposant d'une connaissance fine de la géométrie. Afin de compléter les observations, il faudrait étendre les expériences en faisant varier différents paramètres.

Il conviendrait de faire varier le fluide, en modifiant la concentration en carbopol et en testant un autre fluide à seuil, afin de tester le caractère générique des observations. Il faudrait également faire varier la géométrie du milieu, en modifiant soit la structure du réseau, soit l'hétérogénéité de taille des pores. On s'attend en effet à ce que la formation de chemins préférentiels dépende de ces paramètres.

Enfin, nous avons vu que proche du seuil, l'écoulement était gouverné par le glissement, phénomène encore mal décrit de manière générale, surtout dans une géométrie complexe. Le glissement fait intervenir non seulement les propriétés du fluide, mais aussi celles de la paroi. La rugosité et la nature des surfaces influent d'ailleurs sur ce dernier et il serait intéressant de les faire varier en micromodèle afin de voir si on peut augmenter ou au contraire réduire les conséquences du glissement sur les observations.

En plus des perspectives directes énoncées ci-dessus, j'ai eu l'occasion pendant ma thèse d'aborder d'autres phénomènes, en marge de la problématique centrale. Ces derniers mériteraient également des approfondissements et font l'objet des paragraphes suivants.

## 6.1 Thixotropie

Ma thèse a soulevé de nombreuses questions. Nous avons notamment mis en évidence dans le chapitre 3 le caractère thixotrope du carbopol ETD 2050 contrairement aux autres carbopols utilisés dans la littérature. La thixotropie a un impact sur la valeur du seuil, mais aussi sur la rhéologie du fluide. Il a été nécessaire durant ce travail de prendre en compte ce phénomène et surtout d'adapter le protocole expérimental en conséquence. Tout d'abord au rhéomètre, nous avons montré l'impact du temps d'attente sous le seuil sur la rhéologie du fluide, comportement assez semblable aux prédictions du  $\lambda$ -modèle. Nous avons aussi montré que la valeur du seuil augmente dans le canal droit lors du démarrage. Nous n'avons pas trouvé à ce jour de travaux en canal droit sur la thixotropie. Il serait donc intéressant de mettre en évidence l'effet de la thixotropie dans le canal droit.

En effet, proche du seuil, l'écoulement est bouchon. Le cisaillement à l'intérieur du bouchon est nul et se retrouve entièrement à la paroi. On peut donc supposer que le fluide en écoulement se structure et "vieillit" durant l'écoulement. Il serait alors intéressant d'étudier ce bouchon dans un canal présentant plusieurs sections de largeur différente sur un canal suffisamment long afin d'avoir lubrification sur toute la largeur. À différentes pressions constantes, nous pourrions alors vérifier l'impact et l'évolution du vieillissement sur la largeur de la zone de cisaillement à différents endroits du canal.

Ensuite nous avons observé dans le milieu poreux à l'intersection de deux pores la mise en contact d'un écoulement bouchon et d'un écoulement cisaillé. Il serait alors intéressant d'étudier plus précisément cette zone en croix. En reprenant l'idée du montage [87] en faisant varier cette fois-ci la largeur de chaque canal ou le débit, il serait alors possible d'étudier plus précisément l'impact de ce type de configuration sur l'écoulement. Afin de vérifier l'impact de la thixotropie sur le bouchon, il me parait utile de réaliser cette étude aussi sur un fluide à seuil non thixotrope.

## 6.2 Migration viscoélastique

Au-delà des difficultés de la mise en place d'un dispositif original par la création de puce microfluidique répondant aux critères de dimensionnement (nombre de canaux ~ 10000 avec des profondeurs ~  $600\mu m$ ) imposés pour voir les phénomènes liés au couplage hétérogénéité - seuil d'écoulement, la nature viscoélastique du fluide a lui aussi été, probablement, à l'origine de phénomènes qui auraient mérité une étude à part entière.

Pour les plus forts débits, nous avons observé à l'entrée du milieu poreux une migration des billes. Le phénomène se voit très bien sur les images de la Fig.5.16 extraites du film d'une expérience. À l'échelle de la puce, trois bandes sombres apparaissent clairement sans aucun traitement d'image. La localisation s'explique probablement par une migration des

#### 6. Perspectives



FIGURE 5.16 – Localisation des billes dans la puce microfluidique. À gauche vue à l'échelle du réseau. À droite, grossissement sur l'entrée. Le regroupement des billes s'observe par l'apparition de bandes noires. Dans la puce, trois bandes existent : une au centre et deux sur les bords extérieurs. Dans les branches de l'injecteur, les billes se regroupent sur les parois. L'expérience est réalisée avec une concentration en carbopol de 0.7%. Les billes ont un diamètre de 20  $\mu m$  et leur concentration est de 0.3%. La vitesse moyenne de l'écoulement est de 40  $\mu$ .m.s<sup>-1</sup>. Dans ce régime, le glissement reste important, mais laisse place à un cisaillement des couches du carbopol.

billes dans le branchement d'entrée des canaux. Le grossissement sur cette zone est montrée sur la figure 5.16. On remarque que dès la première division du canal d'entrée en deux, les billes se concentrent sur les parois extérieures. Cette localisation subsiste lors des divisions suivantes et, au final, les billes se concentrent sur les bords de la puce.



FIGURE 5.17 – Migration de billes dans un canal droit de largeur  $200\mu m$ . L'expérience est réalisée dans les mêmes conditions que dans le milieu poreux. La concentration en carbopol est de 0.7%. Les billes ont un diamètre de  $20\mu m$  et leur concentration est de 0.3%. La vitesse moyenne de l'écoulement est de  $40\mu m.s^{-1}$ .

Nous avons reproduit ce phénomène dans un canal droit de largeur 200  $\mu m$ . On le voit dès l'entrée du canal ce qui le rend difficilement mesurable. Nous n'avons pas observé de

migrations semblables dans les écoulements du Chapitre 3 avec des billes de  $1\mu m$  dans des canaux de largeur identique. On peut expliquer ce phénomène par l'apparition d'une force normale poussant les billes vers l'extérieur de l'écoulement. Les auteurs [88, 89, 90] ont montré que pour les fluides viscoélastiques présentant une force normale positive mesurée au rhéomètre, les billes migrent vers le centre du canal. Nous observons un phénomène inverse ce qui impliquerait une force normale négative que nous n'avons pas réussi à mesurer. Une autre possibilité pourrait aussi venir de la géométrie de l'écoulement dans la zone d'injection dans la puce, qui donne à priori lieu à des profils de cisaillement assez complexes et tridimensionnels. Seule une étude systématique permettrait d'identifier l'origine du phénomène.

Pratiquement, ce phénomène peut impacter l'estimation des vitesses d'écoulement en augmentant la densité de billes dans les zones de faibles vitesses. Nous nous sommes assurés de réduire cet effet pour les expériences présentées ici en limitant la vitesse d'injection à  $40\mu m.s^{-1}$ . Nous avons aussi utilisé des billes de plus petit diamètre ( $6\mu m$ ). Nous avons aussi modifié les pattes des entrées en augmentant leurs largeurs à  $500\mu m$ .

## 6.3 Injection d'un fluide miscible ou non miscible dans un poreux saturé par un fluide à seuil

La dernière question soulevée durant ma thèse fut l'étude de l'injection d'un fluide miscible ou non miscible dans un fluide à seuil.

L'injection d'un fluide dans un milieu poreux saturé par un fluide à seuil représente un challenge pour de nombreux domaines industriels. Par exemple dans le domaine pétrolier, lors de la phase primaire de cimentation d'un puits de pétrole [91], les industriels cherchent à injecter du ciment afin de solidifier le contour du puits tout en chassant la boue accumulée autour. Ils voient alors apparaitre des « langues de ciment » : les parois sont recouvertes de boue, le ciment ne coulant qu'au centre de la constriction. Ce phénomène fragilise alors la construction et les industriels cherchent à l'éviter. Ce même problème peut aussi apparaitre lors de la dépollution de sol où l'on va chercher là aussi à évacuer un fluide pollué par un fluide sain, les deux étant bien souvent miscible. Plus pragmatiquement, ce problème est apparu aussi lors du nettoyage de nos cellules poreuses. Une fois les expériences terminées, les cellules sont saturées en carbopol. Afin de pouvoir les réutiliser, nous avons tenté l'injection d'eau ou de vinaigre. Nous observons alors un phénomène en deux temps. Tout d'abord, plusieurs chemins se créent à travers le poreux. Une fois que le chemin le plus avancé percole, alors tous les autres chemins se figent sans chasser le reste du fluide à seuil. Nous avons alors étudié durant le stage de Roland Gouzy ce phénomène dans des modèles simples [92] : une cellule de Hele-Shaw linéaire (figure 5.18) et une circulaire (figure 5.18).

#### 6. Perspectives



FIGURE 5.18 – Injection pour différents débits d'eau bleue dans une cellule de Hele-Shaw linéaire saturée en carbopol. La concentration en carbopol est de 0.7%. L'espacement de la cellule de Hele-Shaw est de 2mm. Figure extraite de [92].

Lorsqu'un fluide pousse un fluide plus visqueux, il apparait un phénomène d'instabilité nommé digitation visqueuse ou instabilité de Saffmann-Taylor [93]. En effet, l'interface entre les deux fluides se déstabilise pour laisser apparaître un motif en forme de doigt. Ce dernier peut varier en fonction de la nature des deux fluides (newtonien ou non newtonien). la géométrie de l'écoulement (tube, cellule de Hele-Shaw ou milieux poreux plus ou moins désordonnés) ainsi que le comportement entre les deux fluides (miscibilité...). Dans le cas de deux fluides newtoniens non miscibles, on peut entièrement caractériser cette instabilité par le rapport d'aspect de la géométrie et le nombre capillaire (Ca) caractérisé par le rapport entre les forces visqueuses et la tension de surface. Des travaux relatifs à ce sujet ont déjà été étudiés notamment dans le cas de déplacement de fluides non newtoniens nonmiscibles en cellule de Hele-Shaw [91, 94, 95, 96] où l'on apprend que les caractéristiques des instabilités sont semblables à celles dans les fluides non-newtoniens. Dans le cas de l'instabilité de Saffman-Taylor pour les fluides miscibles, la tension de surface est supposée nulle, il faut alors tenir compte de la diffusion qui mélange les fluides aux temps longs. Pour un régime non diffusif, la vitesse d'écoulement est alors suffisamment importante pour que les deux fluides, bien que miscibles, n'aient pas le temps de se mélanger. Il est alors possible de définir précisément une interface entre les fluides, de sorte que cette situation soit semblable à l'écoulement de deux fluides non miscibles avec une tension de surface faible ou nulle.

Le premier résultat fut obtenu dans la cellule de Hele-Shaw linéaire (figure 5.18). Nos résultats correspondent aux résultats trouvés dans la littérature. La largeur du doigt croit



FIGURE 5.19 – Injection d'eau bleue dans une cellule de Hele-Shaw circulaire saturée en carbopol dans le temps. La concentration en carbopol est de 0.7%. L'espacement de la cellule de Hele-Shaw est de 0.25mm. Le débit est de  $25\mu m.s^{-1}$ . Marquée en rouge, l'apparition des doigts. Figure extraite de [92].

avec le débit [94, 95] jusqu'à un plateau où la largeur ne change plus. Une fois que le doigt atteint la sortie, alors le chemin n'évolue plus.

Nous nous sommes intéressés ensuite à l'injection dans une cellule de Hele-Shaw circulaire. L'expérience a consisté à injecter dans ces deux cellules saturées en carbopol un fluide miscible : de l'eau déminéralisée, et un fluide non miscible : une huile fluorée. Nous nous sommes tout d'abord intéressés à la largeur du doigt en fonction du débit. Pour les bas débits, le fluide pousseur semble occuper toute la hauteur de la cellule contrairement aux hauts débits où l'interface semble plus diffuse, ce phénomène concerne autant l'interface huile-carbopol que eau-carbopol. Le mécanisme physique observé ressemble à une compétition force visqueuse/capillarité. Pour des fluides newtoniens, ce phénomène est décrit par Bretherton (modèle dérivé de la théorie de Landau-Levich). Pour des fluides à seuil, il n'existe pas de description complète, mais le modèle de Bretherton nous permet de décrire nos résultats. On construit un nombre capillaire avec une viscosité effective, et lors du tracé du ménisque dynamique on retrouve bien  $Ca^{1/3}$ . Enfin, en reprenant la démarche de Truzzolillo [97], nous avons comparé le nombre de doigts en fonction du débit d'injection. Le modèle fonctionne bien dans le cas de l'immiscible. En revanche, il nécessite l'ajout d'une tension de surface effective dans le cas du miscible afin d'expliquer l'évolution du nombre de doigts. Afin de coller à nos données, nous avons obtenu une tension de surface effective de 5mJ/m<sup>2</sup> dans le but de faire correspondre au mieux les points mesurés avec le modèle, ce qui pourrait infirmer le fait que la tension de surface entre deux fluides miscibles soit totalement nulle. Il serait alors intéressant d'aller plus loin et de changer les fluides utilisés afin de vérifier ces résultats. Le second point intéressant serait ensuite de modifier la géométrie soit en injectant dans une surface de type fracture soit au centre d'un milieu poreux afin de vérifier l'impact de la géométrie sur le nombre de doigts et sur leurs formes.

# Bibliographie

- [1] Élisabeth Guazzelli. Rhéologie des fluides complexes. Lecture Notes, 2001.
- [2] H. A. Barnes and K. Walters. The yield stress myth? *Rheologica Acta*, 24(4):323–326, 1985.
- [3] Howard A Barnes. The yield stress—a review or ' $\pi \alpha \nu \tau \alpha \ \rho \varepsilon \iota$ '—everything flows? Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 81(1):133–178, 1999.
- [4] Gianni Astarita. Letter to the editor : The engineering reality of the yield stress. Journal of Rheology (1978-present), 34(2) :275-277, 1990.
- [5] P. Coussot. Yield stress fluid flows : A review of experimental data. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 211:31 - 49, 2014.
- [6] Andreas MV Putz and Teodor I Burghelea. The solid-fluid transition in a yield stress shear thinning physical gel. *Rheologica Acta*, 48(6):673–689, 2009.
- [7] PCF Møller, A Fall, and D Bonn. Origin of apparent viscosity in yield stress fluids below yielding. *EPL (Europhysics Letters)*, 87(3) :38004, 2009.
- [8] Daniel Bonn and Morton M Denn. Yield stress fluids slowly yield to analysis. Science, 324(5933) :1401-1402, 2009.
- [9] Morton M Denn and Daniel Bonn. Issues in the flow of yield-stress liquids. *Rheologica* acta, 50(4):307-315, 2011.
- [10] Bingham E. Fluidity and plasticity. page 463, 1922.
- [11] Winslow H. Herschel and Ronald Bulkley. Konsistenzmessungen von gummibenzollösungen. Kolloid-Zeitschrift, 39(4):291–300, 1926.
- [12] Patrick Oswald, Michel Saint-Jean, and Michel Saint-Jean. Rhéophysique : Ou comment coule la matière. Belin, 2005.
- [13] MD Contreras and R Sanchez. Application of a factorial design to the study of specific parameters of a carbopol etd 2020 gel. part i. viscoelastic parameters. International journal of pharmaceutics, 234(1):139–147, 2002.

- [14] A Gomez-Carracedo, C Alvarez-Lorenzo, JL Gomez-Amoza, and A Concheiro. Glass transitions and viscoelastic properties of carbopol<sup>®</sup> and noveon<sup>®</sup> compacts. International journal of pharmaceutics, 274(1) :233-243, 2004.
- [15] A Rathapon, Anuvat Sirivat, Panida Vayumhasuwan, et al. Viscoelastic properties of carbopol 940 gels and their relationships to piroxicam diffusion coefficients in gel bases. *Pharmaceutical research*, 22(12):2134-2140, 2005.
- [16] J.M. Piau. Carbopol gels : elastoviscoplastic and slippery glasses made of individual swollen sponges. Meso- and macroscopic properties, constitutive equations and scaling laws. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanicss, 144 :1-29, 2007.
- [17] G Benmouffok-Benbelkacem, F Caton, C Baravian, and S Skali-Lami. Non-linear viscoelasticity and temporal behavior of typical yield stress fluids : Carbopol, xanthan and ketchup. *Rheologica acta*, 49(3) :305–314, 2010.
- [18] Julien Beaumont. Ecoulements de fluides viscoélastiques en géométries confinées : application à la récupération assistée des hydrocarbures. PhD thesis, Université Sciences et Technologies-Bordeaux I, 2013.
- [19] A. M. Leshansky, A. Bransky, N. Korin, and U. Dinnar. Tunable nonlinear viscoelastic "focusing" in a microfluidic device. *Phys. Rev. Lett.*, 98 :234501, Jun 2007.
- [20] Sergio Caserta, Gaetano D'Avino, Francesco Greco, Stefano Guido, and Pier Luca Maffettone. Migration of a sphere in a viscoelastic fluid under planar shear flow : Experiments and numerical predictions. Soft Matter, 7 :1100–1106, 2011.
- [21] J Zilz, RJ Poole, MA Alves, D Bartolo, B Levaché, and A Lindner. Geometric scaling of a purely elastic flow instability in serpentine channels. *Journal of Fluid Mechanics*, 712 :203–218, 2012.
- [22] Howard A Barnes. Thixotropy—a review. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 70(1):1-33, 1997.
- [23] Jan Mewis and Norman J. Wagner. Thixotropy. In Colloidal Suspension Rheology, pages 228–251. Cambridge University Press, 2011. Cambridge Books Online.
- [24] R. G. Larson. Constitutive equations for thixotropic fluids. Journal of Rheology, 59(3):595-611, 2015.
- [25] T. Divoux, V. Lapeyre, V. Ravaine, and S. Manneville. Wall slip across the jamming transition of soft thermoresponsive particles. ArXiv e-prints, August 2015.
- [26] Thibaut Divoux, Catherine Barentin, and Sebastien Manneville. From stress-induced fluidization processes to herschel-bulkley behaviour in simple yield stress fluids. Soft Matter, 7 :8409-8418, 2011.

- [27] Michel Cloitre, Régis Borrega, and Ludwik Leibler. Rheological aging and rejuvenation in microgel pastes. *Phys. Rev. Lett.*, 85:4819–4822, Nov 2000.
- [28] Guillaume Ovarlez and Xavier Chateau. Influence of shear stress applied during flow stoppage and rest period on the mechanical properties of thixotropic suspensions. *Phys. Rev. E*, 77 :061403, Jun 2008.
- [29] G. Ovarlez, S. Cohen-Addad, K. Krishan, J. Goyon, and P. Coussot. On the existence of a simple yield stress fluid behavior. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 193 :68 - 79, 2013. Viscoplastic Fluids : From Theory to Application.
- [30] Sébastien Manneville. Recent experimental probes of shear banding. Rheologica Acta, 47(3):301–318, 2008.
- [31] G. Ovarlez, S. Rodts, X. Chateau, and P. Coussot. Phenomenology and physical origin of shear localization and shear banding in complex fluids. *Rheologica Acta*, 48(8):831-844, 2009.
- [32] P. Coussot, J. S. Raynaud, F. Bertrand, P. Moucheront, J. P. Guilbaud, H. T. Huynh, S. Jarny, and D. Lesueur. Coexistence of liquid and solid phases in flowing soft-glassy materials. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :218301, May 2002.
- [33] S. Manneville, L. Bécu, and A. Colin. High-frequency ultrasonic speckle velocimetry in sheared complex fluids. *European Physical Journal Applied Physics*, 28 :361–373, December 2004.
- [34] Philippe Coussot. RHEOMETRY OF PASTES, SUSPENSIONS, AND GRANULAR MATERIALS. Wiley.
- [35] Ashutosh Mujumdar, Antony N. Beris, and Arthur B. Metzner. Transient phenomena in thixotropic systems. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 102(2):157-178, 2002. A Collection of Papers Dedicated to Professor {ANDREAS} {ACRIVOS} on the Occasion of his Retirement from the Benjamin Levich Institute for Physiochemical Hydrodynamics and the City College of the {CUNY}.
- [36] N Roussel, R Le Roy, and Ph Coussot. Thixotropy modelling at local and macroscopic scales. Journal of non-newtonian fluid mechanics, 117(2):85–95, 2004.
- [37] Sébastien Jarny. *Thixotropy of cement pastes*. Theses, Ecole des Ponts ParisTech, December 2004.
- [38] Étienne Guyon, Jean-Pierre Hulin, Luc Petit, and Pierre-Gilles de Gennes. Hydrodynamique physique. Savoirs actuels. InterEditions Meudon, Paris. Deuxième tirage corrigé : 1994.
- [39] Jean-Louis Barrat and Lydéric Bocquet. Large slip effect at a nonwetting fluid-solid interface. *Physical review letters*, 82(23):4671, 1999.

- [40] Howard A. Barnes. A review of the slip (wall depletion) of polymer solutions, emulsions and particle suspensions in viscometers : its cause, character, and cure. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 56(3) :221 – 251, 1995.
- [41] Steven P. Meeker, Roger T. Bonnecaze, and Michel Cloitre. Slip and flow in soft particle pastes. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :198302, May 2004.
- [42] José Pérez-González, JuanJavier López-Durán, BenjamínM. Marín-Santibáñez, and Francisco Rodríguez-Gonzalez. Rheo-piv of a yield-stress fluid in a capillary with slip at the wall. *Rheologica Acta*, 51(11-12) :937–946, 2012.
- [43] BrukeDaniel Jofore, Philipp Erni, Giovanni Vleminckx, Paula Moldenaers, and Christian Clasen. Rheology of microgels in single particle confinement. *Rheologica Acta*, 54(7):581–600, 2015.
- [44] Baudouin Geraud, Lyderic Bocquet, and Catherine Barentin. Confined flows of a polymer microgel. The European Physical Journal E, 36(3), 2013.
- [45] Antoine Poumaere, Miguel Moyers-González, Cathy Castelain, and Teodor Burghelea. Unsteady laminar flows of a carbopol gel in the presence of wall slip. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 205 :28-40, 2014.
- [46] Jyoti R Seth, Clémentine Locatelli-Champagne, Fabrice Monti, Roger T Bonnecaze, and Michel Cloitre. How do soft particle glasses yield and flow near solid surfaces? Soft Matter, 8(1):140-148, 2012.
- [47] Julie Goyon. Soft Glassy materials : solids which flow cooperatively. Theses, Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, October 2008.
- [48] Vincent Mansard. Non-local rheology of soft glassy materials. PhD thesis, Bordeaux 1, 2012.
- [49] Lydéric Bocquet, Annie Colin, and Armand Ajdari. Kinetic theory of plastic flow in soft glassy materials. *Phys. Rev. Lett.*, 103 :036001, Jul 2009.
- [50] Paulo R de Souza Mendes, Mônica F Naccache, Priscilla R Varges, and Flavio H Marchesini. Flow of viscoplastic liquids through axisymmetric expansions-contractions. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 142(1) :207-217, 2007.
- [51] Matthew T Balhoff and Karsten E Thompson. Modeling the steady flow of yield-stress fluids in packed beds. AIChE Journal, 50(12) :3034–3048, 2004.
- [52] Thibaud Chevalier. Flow of yield stress fluids in confined geometries. Theses, Université Paris-Est, October 2013.
- [53] T Chevalier, S Rodts, C Chevalier, and P Coussot. Quantitative exploitation of pfg nmr and mri velocimetry data for the rheological study of yield stress fluid flows at

macro-and micro-scales in complex geometries. *Experiments in fluids*, 56(1) :1868, 2015.

- [54] H. Darcy. Les fontaines publiques de la ville de dijon : exposition et application des principes à suivre et des formules à employer dans les questions de distributions d'eau. 1856.
- [55] Robert H Christopher and Stanley Middleman. Power-law flow through a packed tube. Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals, 4(4):422–426, 1965.
- [56] Thomas J Sadowski and R Byron Bird. Non-newtonian flow through porous media.
  i. theoretical. Transactions of The Society of Rheology (1957-1977), 9(2) :243-250, 1965.
- [57] George C Vradis and Angelos L Protopapas. Macroscopic conductivities for flow of bingham plastics in porous media. *Journal of Hydraulic Engineering*, 119(1):95–108, 1993.
- [58] George G Chase and Patanee Dachavijit. Incompressible cake filtration of a yield stress fluid. Separation Science and Technology, 38(4):745-766, 2003.
- [59] H Pascal. Rheological behaviour effect of non-newtonian fluids on steady and unsteady flow through a porous medium. International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics, 7(3):289-303, 1983.
- [60] T. Al-Fariss and K. L. Pinder. Flow through porous media of a shear-thinning liquid with yield stress. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 65(3):391–405, 1987.
- [61] Guillaume Malvault. Détermination expérimentale de la distribution de taille de pores d'un milieu poreux par l'injection d'un fluide à seuil ou analyse harmonique. PhD thesis, Paris, ENSAM, 2013.
- [62] Antonio Rodríguez de Castro, Abdelaziz Omari, Azita Ahmadi-Sénichault, and Denis Bruneau. Toward a new method of porosimetry : principles and experiments. *Transport* in porous media, 101(3) :349–364, 2014.
- [63] Matthew Balhoff. Modeling the flow of non-Newtonian fluids in packed beds at the pore scale. PhD thesis, Faculty of the Louisiana State University and Agricultural and Mechanical College In partial fulfillment of the Requirements for the degree of Doctor of Philosophy In The Gordon A. and Mary Cain Department of Chemical Engineering by Matthew Balhoff BS, Louisiana State University, 2005.
- [64] Taha Sochi. Pore-scale modeling of non-newtonian flow in porous media. arXiv preprint arXiv :1011.0760, 2010.

- [65] L. Talon and D. Bauer. On the determination of a generalized darcy equation for yield-stress fluid in porous media using a lattice-boltzmann trt scheme. *Eur. Phys. J. E*, 36(139), 2013.
- [66] Thibaud Chevalier and Laurent Talon. Generalization of darcy's law for bingham fluids in porous media : From flow-field statistics to the flow-rate regimes. *Phys. Rev. E*, 91 :023011, Feb 2015.
- [67] Xavier Clain. An empiric study of the injection of Herschel-Bulkley fluids in porous media. Theses, Université Paris-Est, October 2010.
- [68] Patrick Tabeling. Introduction to microfluidics. Oxford University Press, 2010.
- [69] Younan Xia, and George M. Whitesides. Soft lithography. Annual Review of Materials Science, 28(1):153-184, 1998.
- [70] M. A. Unger, H. P. Chou, T. Thorsen, A. Scherer, and S. R. Quake. Monolithic microfabricated valves and pumps by multilayer soft lithography. *Science*, 288 :113, 2000.
- [71] Lubrizol. Neutralizing Carbopol and Pemulen Polymers in Aqueous and Hydroalcoholic Systems, TDS-237. Lubrizol, 2009.
- [72] David Lee, Iris A. Gutowski, Arthur E. Bailey, Laurent Rubatat, John R. de Bruyn, and Barbara J. Frisken. Investigating the microstructure of a yield-stress fluid by light scattering. *Phys. Rev. E*, 83 :031401, Mar 2011.
- [73] David Lee, Iris A. Gutowski, Arthur E. Bailey, Laurent Rubatat, John R. de Bruyn, and Barbara J. Frisken. Investigating the microstructure of a yield-stress fluid by light scattering. *Phys. Rev. E*, 83 :031401, Mar 2011.
- [74] L. Baudonnet, D. Pere, P. Michaud, J.-L. Grossiord, and F. Rodriguez. Effect of dispersion stirring speed on the particle size distribution and rheological properties of carbomer dispersions and gels. *Journal of Dispersion Science and Technology*, 23(4):499-510, 2002.
- [75] IrisA. Gutowski, David Lee, JohnR. de Bruyn, and BarbaraJ. Frisken. Scaling and mesostructure of carbopol dispersions. *Rheologica Acta*, 51(5):441-450, 2012.
- [76] Baudouin Géraud. Mouillage et Dynamique confinée de Fluides Complexes. Theses, Université Claude Bernard Lyon 1, October 2013.
- [77] Felix K. Oppong, Laurent Rubatat, Barbara J. Frisken, Arthur E. Bailey, and John R. de Bruyn. Microrheology and structure of a yield-stress polymer gel. *Phys. Rev. E*, 73 :041405, Apr 2006.
- [78] John C. Crocker and David G. Grier. Methods of digital video microscopy for colloidal studies. Journal of Colloid and Interface Science, 179(1) :298 – 310, 1996.

- [79] Daniel Blair and Eric Dufresne. The matlab particle tracking code repository, Dec 2008. http://site.physics.georgetown.edu/matlab/.
- [80] T. Divoux, D. Tamarii, C. Barentin, S. Teitel, and S. Manneville. Yielding dynamics of a Herschel-Bulkley fluid : a critical-like fluidization behaviour. *Soft Matter*, 8 :4151, 2012.
- [81] Philippe Coussot, Laurent Tocquer, C. Lanos, and Guillaume Ovarlez. Macroscopic vs local rheology of yield stress fluids. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, (158) :85–90, 2009.
- [82] Thibaut Divoux, Catherine Barentin, and Sebastien Manneville. Stress overshoot in a simple yield stress fluid : An extensive study combining rheology and velocimetry. *Soft Matter*, 7 :9335–9349, 2011.
- [83] Li-Hua Luu. Drop impact of yield-stress fluids : rheology, splash and cratering. Theses, Université de Provence - Aix-Marseille I, February 2011.
- [84] Jyoti Ravishanker Seth. On the rheology of dense pastes of soft particles. The University of Texas at Austin, 2008.
- [85] Auradou H. L. Talon and A. Hansen. Relation between first arrival time and permeability in self-affine fractures. EPL, 97(68009), 2012.
- [86] CB Shah and YC Yortsos. Aspects of flow of power-law fluids in porous media. AIChE Journal, 41(5) :1099–1112, 1995.
- [87] Mario Cachile, Laurent Talon, Juan M Gomba, Jean-Pierre Hulin, and Harold Auradou. Stokes flow paths separation and recirculation cells in x-junctions of varying angle. *Physics of Fluids (1994-present)*, 24(2):021704, 2012.
- [88] AM Leshansky, A Bransky, N Korin, and U Dinnar. Tunable nonlinear viscoelastic "focusing" in a microfluidic device. *Physical review letters*, 98(23) :234501, 2007.
- [89] G d'Avino, PL Maffettone, F Greco, and MA Hulsen. Viscoelasticity-induced migration of a rigid sphere in confined shear flow. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 165(9):466-474, 2010.
- [90] G. D'Avino and P.L. Maffettone. Particle dynamics in viscoelastic liquids. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 215 :80 - 104, 2015.
- [91] Céline Gabard. Déplacements de fluides miscibles non-newtoniens en conduite cylindrique verticale. PhD thesis, 2001.
- [92] Roland Gouzy. Digitation visqueuse de fluides miscibles et non-miscibles dans un fluide à seuil. Rapport de stage, Université de Bordeaux, 2015.
- [93] PG Saffman. Viscous fingering in hele-shaw cells. Journal of Fluid Mechanics, 173:73– 94, 1986.

- [94] Anke Lindner. L'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides complexes : relation entre les propriétés rhéologiques et la formation de motifs. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2000.
- [95] Philippe Coussot. Saffman-taylor instability in yield-stress fluids. Journal of Fluid Mechanics, 380 :363-376, 1999.
- [96] Anke Lindner, Philippe Coussot, and Daniel Bonn. Viscous fingering in a yield stress fluid. *Physical Review Letters*, 85(2):314, 2000.
- [97] Domenico Truzzolillo, Serge Mora, Christelle Dupas, and Luca Cipelletti. Offequilibrium surface tension in colloidal suspensions. *Physical review letters*, 112(12) :128303, 2014.



ÉCOLE DOCTORALE Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG)

Titre : Écoulement d'un fluide à seuil dans un milieu poreux

Mots clefs : fluide à seuil, vitesse de glissement, thixotropie, milieu poreux, carte de vitesse

Résumé : Solides élastiques au repos, les fluides à seuil s'écoulent comme un liquide au-delà d'une certaine contrainte. Plusieurs applications industrielles concernent l'écoulement de ces fluides dans des milieux poreux. On peut citer par exemple les émulsions dans le processus de récupération du pétrole, les opérations de cimentation dans le sol, ou le nettoyage d'un sol contaminé par une boue. Pour ces applications, il est nécessaire de connaître la pression nécessaire pour un débit voulu à la sortie du milieu poreux. Dans de tels cas, l'écoulement est perturbé par la complexité de la géométrie. Les modèles développés pour décrire la loi de Darcy supposent une loi rhéologique appliquée localement, mais ces modèles décrivent mal ce type d'écoulement. De plus, des effets complexes peuvent s'ajouter comme le glissement à la paroi ou la thixotropie. Dans cette thèse, nous étudions l'écoulement de carbopol (ETD 2050) à travers différentes géométries. Tout d'abord au rhéomètre, nous montrons que le fluide, sous certaines conditions, correspond bien à un fluide à seuil modèle. Nous démontrons que le protocole expérimental utilisé est très important et qu'un comportement thixotropique peut apparaître s'il n'est pas respecté. Ce comportement apparaît notamment lorsque le fluide reste sous le seuil, l'impact augmentant avec le temps d'attente. Ensuite, nous comparons la loi d'écoulement obtenue au rhéomètre à l'écoulement dans un canal droit obtenu par microfabrication. Nous montrons alors l'importance du glissement proche du seuil et ses conséquences sur la loi d'écoulement. Enfin nous étudions l'écoulement du carbopol dans un milieu poreux. Le milieu poreux de 5x5cm est obtenu par microfabrication. La largeur moyenne des canaux est égale à celle du canal droit. Nous avons développé une nouvelle méthode de mesure des champs de vitesse. Nous montrons l'apparition d'une chenalisation de l'écoulement à travers quelques canaux du milieu poreux. Nous comparons ensuite la loi d'écoulement du milieu poreux à celle obtenue dans le canal droit. On remarque que la vitesse d'écoulement est plus faible dans le milieu poreux que dans le canal droit.

#### Title : Flow of a yield stress fluid in a porous medium

Keywords : Yield stress fluid, slip velocity, thixotropy, porous media, velocity mapping

Abstract : Elastic solids at rest, yield stress fluids flow like a liquid beyond a certain stress. Many industrial applications required the flow of these fluids in porous media, for example: the emulsion flow in oil recovery processes, the cementing operations in the ground, or the cleaning of sludge in a contaminated soil. For many applications, it could be interesting to know the pressure required for a desired flow rate. In such cases, the flow behavior of the fluid is complicated by the complexity of the geometry. The models developed to describe Darcy's law assume a rheological law applied locally, but these models poorly describe this type of flow. Furthermore, complex effects can be added like the wall slip or the thixotropy. In this thesis, we study the flow of carbopol (ETD 2050) through different geometries. First we show that the fluid, for some conditions, corresponds to model yield stress fluids. The experimental protocol used is very important and a thixotropic behavior can appear

if it is not respected. This behavior appears especially when the fluid remains below the yield stress, the impact increases with the waiting time. We then compare the flow law obtained by rheometer in a straight channel obtained by microfabrication. We show the importance of the wall slip near the yield stress and the impact on the flow law. Finally, using a new method to measure the velocity fields developed during this thesis, we study the flow of carbopol in a porous medium. This porous medium of 5x5cm is obtained by microfabrication. The mean width of the channels is equivalent to the one of the straight channel. We show the emergence of a channeling flow through some channels of the porous medium. We then compare the flow law of the porous medium to the one obtained in the straight channel. It can be observed that the flow rate is lower in the porous medium than in the straight channel.

