



N° d'ordre NNT : 2017LYSE1176

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE LYON
opérée au sein de
l'Université Claude Bernard Lyon 1

École Doctorale ED34
Matériaux de Lyon (Matériaux)

Spécialité de doctorat : Mécanique des Fluides

Soutenue publiquement le 19/09/2017, par :
Andrea Titta

**Simulations level-set d'un amas de
bulles cisailées : écoulement et
dynamique des tensioactifs**

Devant le jury composé de :

Cantat Isabelle, Professeur, Université de Rennes 1

Legendre Dominique, Professeur, INP Toulouse

Matas Jean-Philippe, Professeur, Université Lyon 1

Rouyer Florence, Maître de Conférences, Université Paris Est

Rapporteuse

Rapporteur

Président du jury

Examinatrice

Biance Anne-Laure, Chargée de Recherche, Institut Lumière Matière (UMR 5306) Directrice de thèse

Spelt Peter, Professeur, Université Lyon 1

Co-directeur de thèse

Detcheverry François, Chargé de Recherche, Institut Lumière Matière (UMR 5306) Invité

Le Merrer Marie, Chargée de Recherche, Institut Lumière Matière (UMR 5306) Invitée

UNIVERSITE CLAUDE BERNARD - LYON 1

Président de l'Université

Président du Conseil Académique

Vice-président du Conseil d'Administration

Vice-président du Conseil Formation et Vie Universitaire

Vice-président de la Commission Recherche

Directrice Générale des Services

M. le Professeur Frédéric FLEURY

M. le Professeur Hamda BEN HADID

M. le Professeur Didier REVEL

M. le Professeur Philippe CHEVALIER

M. Fabrice VALLÉE

Mme Dominique MARCHAND

COMPOSANTES SANTE

Faculté de Médecine Lyon Est – Claude Bernard

Faculté de Médecine et de Maïeutique Lyon Sud – Charles Mérieux

Faculté d'Odontologie

Institut des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques

Institut des Sciences et Techniques de la Réadaptation

Département de formation et Centre de Recherche en Biologie Humaine

Directeur : M. le Professeur G.RODE

Directeur : Mme la Professeure C. BURILLON

Directeur : M. le Professeur D. BOURGEOIS

Directeur : Mme la Professeure C. VINCIGUERRA

Directeur : M. X. PERROT

Directeur : Mme la Professeure A-M. SCHOTT

COMPOSANTES ET DEPARTEMENTS DE SCIENCES ET TECHNOLOGIE

Faculté des Sciences et Technologies

Département Biologie

Département Chimie Biochimie

Département GEP

Département Informatique

Département Mathématiques

Département Mécanique

Département Physique

UFR Sciences et Techniques des Activités Physiques et Sportives

Observatoire des Sciences de l'Univers de Lyon

Polytech Lyon

Ecole Supérieure de Chimie Physique Electronique

Institut Universitaire de Technologie de Lyon 1

Ecole Supérieure du Professorat et de l'Education

Institut de Science Financière et d'Assurances

Directeur : M. F. DE MARCHI

Directeur : M. le Professeur F. THEVENARD

Directeur : Mme C. FELIX

Directeur : M. Hassan HAMMOURI

Directeur : M. le Professeur S. AKKOUCHE

Directeur : M. le Professeur G. TOMANOV

Directeur : M. le Professeur H. BEN HADID

Directeur : M. le Professeur J-C PLENET

Directeur : M. Y. VANPOULLE

Directeur : M. B. GUIDERDONI

Directeur : M. le Professeur E.PERRIN

Directeur : M. G. PIGNAULT

Directeur : M. le Professeur C. VITON

Directeur : M. le Professeur A. MOUGNIOTTE

Directeur : M. N. LEBOISNE

Remerciements

Je remercie tout d'abord mes encadrants de thèse : Anne-Laure Biance, Peter Spelt, Marie Le Merrer et François Detcheverry pour m'avoir suivi et aidé pendant ces années de thèse. Merci aussi pour les échanges que l'on a pu avoir, et dont j'ai beaucoup appris.

Je remercie aussi Isabelle Cantat et Dominique Legendre pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ma thèse, ainsi que Florence Rouyer et Jean-Philippe Matas pour avoir accepté d'examiner mon travail.

Mes remerciements vont aussi à l'équipe Liquides et Interfaces de l'ILM et au LMFA pour m'avoir accueilli pendant ces années de ma thèse.

Merci également aux doctorants et anciens doctorants de l'équipe Liquides et Interfaces, qui ont suivi de près ou de loin mon travail de thèse, et avec qui j'ai pu aussi échanger sur d'autres sujets.

Merci à Nicolas Bruot et à Baptiste Blanc pour avoir partagé le bureau du deuxième étage, même si c'était pendant une courte période. Merci à Bahareh pour avoir partagé le bureau du premier étage, et pour ses encouragements pendant les moments difficiles de ma thèse. Merci aussi à Zlatko pour sa disponibilité et son aide concernant mes questions sur le code numérique, et pour les moments agréables passés en dehors du travail.

Sans oublier je remercie aussi la Région Rhone-Alpes pour avoir financé mon travail de thèse.

Et enfin merci Papà, Maman, Azzurra et Clarisse pour m'avoir soutenu, encouragé et épaulé pendant toutes ces années depuis que l'on se connaît, et d'avoir été présents et à l'écoute pendant les moments difficiles. Ma thèse est aussi la vôtre.

Table des matières

Introduction générale	7
1 Les mousses liquides : état de l'art	9
1.1 Structure d'une mousse : matériau multi-échelle hors équilibre	10
1.2 Un matériau macroscopique	13
1.3 Statique et écoulement à l'échelle des films et des bulles	18
1.4 Tensioactifs et interfaces	21
1.5 Problématique générale	26
2 Formulation du problème et méthode level-set	27
2.1 Écoulements avec tensioactifs	28
2.2 Principe de la méthode level-set	32
2.3 Formulation du problème et résolution numérique	33
2.4 Les équations sous forme distribuée et adimensionnée	36
2.5 Implémentation numérique des équations	40
3 Tests du code numérique avec tensioactifs	45
3.1 Goutte immobile	46
3.2 Goutte cisailée	50
3.3 Ajustement sur le système étudié : bulles cisillées	57
4 Résultats et discussion	63
4.1 Résultats sans viscosité de surface	63
4.2 Résultats préliminaires avec viscosité de surface constante	89
Conclusion générale	93

Introduction générale

Les mousses liquides sont des matériaux complexes largement utilisés, aussi bien au quotidien que pour certaines applications spécifiques. Par exemple, comme elles sont majoritairement composées d'air, l'industriel peut mettre à profit leur légèreté, leur faible coût, leurs propriétés d'isolation thermique ou phonique. Par ailleurs, une mousse est un matériau divisé, composé de petites bulles de gaz dans une matrice liquide. Elle a donc une grande surface spécifique, et de ce fait, elle est utilisée en cosmétique, en détergence, pour dépolluer les sols ou les eaux et dans l'industrie médicale.

Pour fabriquer une mousse, il faut introduire des bulles de gaz dans une matrice liquide, par exemple par une agitation vive. Mais pour qu'elle soit stable, la matrice liquide doit contenir des agents de surface ou tensioactifs qui visent à stabiliser les films liquides entre les bulles ainsi formées. L'industriel sait quel tensioactif utiliser pour quelle application : une mousse qui doit être stable au repos n'aura pas la même physicochimie qu'une mousse qui doit s'écouler rapidement puis se casser. Différentes études plus fondamentales ont cherché à comprendre le rôle des tensioactifs sur les propriétés rhéologiques des mousses. En particulier, lorsqu'une mousse s'écoule, les bulles se déplacent les unes par rapport aux autres, ce qui modifie la structure de la mousse. Lors de ces réarrangements structuraux, les bulles sont déformées et le liquide entre les bulles s'écoule. Selon le tensioactif utilisé, deux situations limites sont généralement rencontrées expérimentalement : une situation où les interfaces se comportent presque comme des interfaces solides, incompressibles, non glissantes (désignées comme « rigides »), et une situation où elles sont libres (désignées comme « mobiles »).

Les écoulements mis en jeu lors de la déformation de fins films liquides est un phénomène largement étudié en mécanique des fluides. Même si ici il s'agit d'écoulements entre surfaces libres, différentes approximations (l'incompressibilité, l'approximation de lubrification, de faible courbure, la quasistationnarité) permettent souvent une résolution complète et analytique des équations du mouvement. Mais l'ajout de tensioactifs va modifier ces dynamiques. En effet, leur répartition le long de la surface peut générer une contrainte interfaciale supplémentaire, qui va affecter (et être affectée) par les écoulements sous-jacents. L'effet des tensioactifs est caractérisé par leur coefficient de diffusion en volume et en surface, leur capacité à s'adsorber aux interfaces, les contraintes Marangoni qu'ils peuvent engendrer, et une

viscosité de surface intrinsèque. Ces problèmes couplés plus complexes ont été considérés théoriquement mais dans des situations modèles (un film de savon parallèle qui se draine, une bulle qui oscille, ou qui remonte dans un liquide, une onde capillaire qui se propage le long d'une interface).

Notre but est de mieux comprendre la rhéologie des mousses en étudiant le processus élémentaire de réarrangement des bulles. C'est un problème qui implique à la fois la présence de tensioactifs et une géométrie complexe, qui interdit notamment l'approximation de lubrification. Il nous faut donc dépasser les approches précédentes. Nous allons utiliser une méthode numérique qui donne une description complète des phénomènes à l'œuvre, et nous permet d'étudier le rôle joué par les tensioactifs, ainsi que l'origine des dissipations observées. Nos simulations portent sur un amas de quatre bulles, un système modèle d'une mousse liquide.

Ce manuscrit est divisé en quatre chapitres. Dans le premier, nous donnons des éléments bibliographiques sur les mousses liquides, en décrivant leur structure multi-échelle, leurs propriétés mécaniques, physico-chimiques et rhéologiques. Dans le deuxième chapitre, nous présentons les équations physiques qui gouvernent la dynamique de l'écoulement et des interfaces, et les propriétés physicochimiques des tensioactifs. Nous décrivons la méthode numérique utilisée, de type level-set, et nous expliquons comment nous l'avons implémentée. Le troisième chapitre décrit les tests numériques effectués sur le code en considérant des situations simples déjà étudiées dans la littérature. Pour notre configuration spécifique - l'amas de quatre bulles -, nous effectuons des tests et améliorons le code numérique. Enfin, dans le quatrième chapitre, nous discutons les résultats obtenus pour un amas de bulles cisillées. Nous étudions l'effet des paramètres physiques tels que le nombre capillaire (le taux de cisaillement), le nombre de Biot (la dynamique d'échange des tensioactifs) et le nombre de Péclet (leur capacité à diffuser), sur la réponse mécanique du système. Notre résultat principal est que la présence de tensioactifs influence le mécanisme de réarrangement des bulles, en changeant la nature de l'écoulement.

Les mousses liquides : état de l'art

Sommaire

1.1	Structure d'une mousse : matériau multi-échelle hors équilibre	10
1.1.1	L'échelle macroscopique de la mousse	11
1.1.2	L'échelle des bulles	12
1.1.3	L'échelle des films liquides	12
1.1.4	L'échelle des interfaces liquide/gaz	13
1.2	Un matériau macroscopique	13
1.2.1	Un matériau hors équilibre	13
1.2.2	Un fluide complexe : rhéologie	16
1.3	Statique et écoulement à l'échelle des films et des bulles	18
1.3.1	Films à l'équilibre	18
1.3.2	Entraînement de films	18
1.3.3	Dynamique des T1	19
1.4	Tensioactifs et interfaces	21
1.4.1	Équation d'état de l'interface	21
1.4.2	Mécanique des interfaces	23
1.5	Problématique générale	26

Les mousses sont des assemblées de bulles de gaz dans une matrice liquide. Elles sont utilisées dans plusieurs applications tel que le bâtiment (précurseurs de mousses solides pour l'isolation thermique et phonique), le forage pétrolier, l'extraction par moussage afin de pouvoir récupérer les minerais. On les retrouve aussi dans le secteur des cosmétiques, et dans le secteur alimentaire, comme par exemple dans les mousses au chocolat. La mousse est un matériau complexe du fait de son caractère multi-échelle, et du fait des phénomènes physiques qui se produisent au sein de sa structure. Elle peut se comporter comme un solide ou peut s'écouler comme un fluide, en fonction de la sollicitation mécanique appliquée.

C'est aussi un matériau hors équilibre, qui n'est pas stable d'un point de vue thermodynamique, et qui tend donc à disparaître. Les mécanismes qui pilotent la stabilité d'une mousse et son effondrement restent encore largement incompris au niveau fondamental. De plus, la stabilité et la rhéologie des mousses sont des points importants dans des applications industrielles telles que le bâtiment car les mousses solides, fabriquées à partir des mousses liquides, peuvent s'effondrer pendant l'étape de solidification. Ce premier chapitre fixe les notions importantes dans la description d'une mousse en particulier du point de vue de la mécanique, point de vue adopté dans ce travail de thèse.

Avant de présenter en détail la structure d'une mousse, nous introduisons la notion de tension de surface, phénomène à l'origine aussi bien du caractère élastique de la mousse macroscopique que d'un certain nombre de mécanismes de vieillissement de ces matériaux (mûrissement et coalescence).

La tension de surface

Afin de créer une interface entre deux phases (ici un liquide et un gaz), un certain coût énergétique est nécessaire, proportionnel à l'aire interfaciale créée et qui a pour effet de réduire l'aire d'une interface et donc de la tendre. Ce coût énergétique par unité de surface est appelé tension de surface ou tension superficielle, de symbole γ . Une manifestation de la tension de surface est l'existence d'un saut de pression au passage d'une interface courbée, décrit par la loi de Laplace, établie par le scientifique français Pierre-Simon de Laplace (1749-1827) :

$$\Delta P = \gamma C = \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right), \quad (1.1)$$

où C est la courbure de l'interface, R_1 et R_2 sont ses rayons de courbure principaux. Le fluide à l'intérieur de la courbure est en surpression par rapport au fluide extérieur : une bulle dans une mousse est ainsi en surpression par rapport au liquide environnant.

1.1 Structure d'une mousse : matériau multi-échelle hors équilibre

La structure d'une mousse s'organise au niveau de quatre échelles schématisées sur la figure 1.1 : l'échelle macroscopique variant de l'ordre du centimètre au mètre, l'échelle des bulles comprise entre la centaine de microns et le centimètre, l'échelle des films liquides

1.1. STRUCTURE D'UNE MOUSSE : MATÉRIAU MULTI-ÉCHELLE HORS ÉQUILIBRE 11

variant du micromètre au millimètre, et enfin l'échelle des interfaces liquide/gaz se situant entre le nanomètre et le micromètre [1]. Dans cette section, nous allons donc décrire ces différentes échelles.

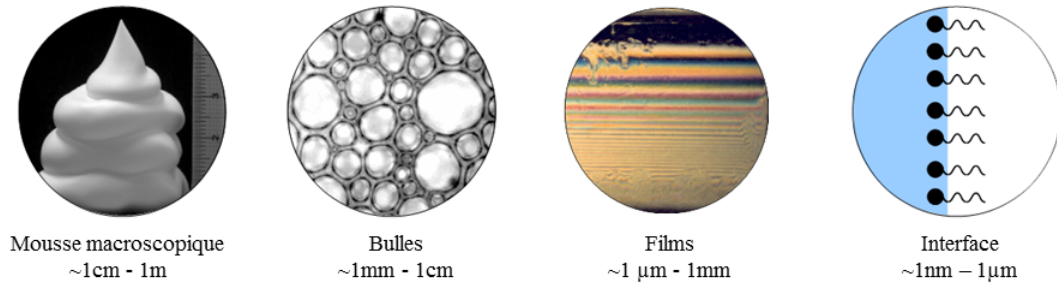


FIGURE 1.1 – Différentes échelles d'une mousse

1.1.1 L'échelle macroscopique de la mousse

L'échelle macroscopique considère la mousse dans son ensemble, sans aller dans les détails de sa structure complexe, et la traite comme un matériau continu. En particulier, la mousse est un fluide de rhéologie complexe. Elle peut en effet se comporter comme un solide ou comme un liquide ; ces propriétés seront détaillées dans la section suivante. C'est aussi un milieu qui diffuse la lumière et un matériau léger composé globalement de plus de gaz que de liquide. Cette dernière caractéristique est quantifiée par la fraction liquide volumique qui est le rapport entre le volume de liquide contenu dans la mousse et le volume total de la mousse que l'on note ici ϕ_l ($\phi_l = \frac{V_{\text{liquide}}}{V_{\text{mousse}}}$). En fonction de la fraction liquide, on parle de :

- $\phi_l > \phi_l^*$: liquide bulleux
- $0.05 \lesssim \phi_l < \phi_l^*$: mousse humide.
- $\phi_l \lesssim 0.05$ ou 0.01 (cf. [1] p.33) : mousse sèche.

ϕ_l^* est la valeur de la fraction liquide volumique pour laquelle il y a la transition du liquide bulleux à la mousse humide. Cette transition est appelée transition de blocage (ou *jamming* en anglais) : les bulles se touchent et se déforment pour $\phi \leq \phi_l^*$, ce qui confère à la mousse son caractère élastique. La valeur de ϕ_l^* change en fonction de la structure de la mousse ; par exemple pour une structure 2D ordonnée hexagonale, $\phi_l^* = 1 - \frac{\pi}{2\sqrt{3}}$, tandis que $\phi_l^* = 0.36$ pour une structure 3D désordonnée ([1] p.205).

1.1.2 L'échelle des bulles

Si maintenant nous allons plus en détail dans la structure d'une mousse, nous atteignons d'abord l'échelle des bulles. Par exemple, dans une mousse sèche, les bulles présentent une forme polyédrique due au fait qu'elles sont écrasées les unes contre les autres (figure 1.2). Elles peuvent s'arranger de façon ordonnée ou désordonnée. Elles peuvent être de même taille (mousse dite monodisperse) ou avoir des tailles différentes (mousse polydisperse). Les faces des bulles sont appelées films liquides, qui s'intersectent par trois au niveau de différentes arêtes. Ces arêtes sont appelées bords de Plateau, en souvenir du physicien et mathématicien belge Joseph Antoine Ferdinand Plateau (1801-1883). À leur tour, les bords de Plateau se rencontrent par quatre aux sommets de la bulle; ces sommets sont appelés vertex ou nœuds.

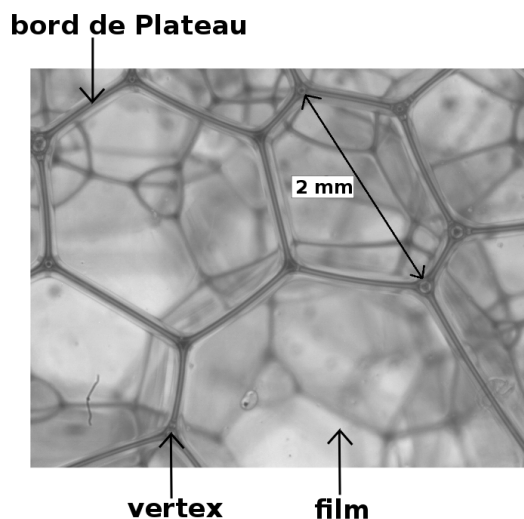


FIGURE 1.2 – Mousse au niveau de l'échelle des bulles

1.1.3 L'échelle des films liquides

En continuant notre exploration à travers la structure de la mousse, nous atteignons l'échelle des fins films liquides, qui séparent et facettent les bulles. Leur extension dépend de la fraction liquide. Dans un liquide bulleux, les bulles ne se touchent pas et aucun film liquide n'est observé. Quand la fraction liquide diminue, leur extension augmente, pour enfin recouvrir quasiment toute la surface de la bulle pour les mousses très sèches. Au niveau de ces films, une autre échelle importante est leur épaisseur (c'est elle qui confère les irisations colorées que l'on peut parfois observer à la surface des bulles). Cette épaisseur diffère, selon si l'on se trouve dans un cas statique ou dynamique. Si un écoulement est créé dans les films (cas dynamique), l'épaisseur de ces derniers est de l'ordre de $1 \mu\text{m}$. À l'équilibre (cas statique), l'épaisseur est fixée par la présence de tensioactifs (que l'on décrira dans la section suivante) et est de l'ordre de 30 nm.

1.1.4 L'échelle des interfaces liquide/gaz

Nous considérons enfin l'échelle la plus petite de la structure de la mousse (interfaces liquide/gaz) au niveau de laquelle nous allons décrire les molécules qui tendent à les stabiliser. Lorsqu'un film liquide est créé, il a tendance à être instable. En effet, sous l'effet des forces attractives de van der Waals, ce dernier tend à s'amincir, les interfaces finissent par se rencontrer et le film se casse. Afin de stabiliser ces interfaces, des molécules appelées tensioactifs sont utilisées. Les tensioactifs sont des molécules composées d'une tête polaire et d'une chaîne carbonée. La tête va spontanément vers les molécules d'eau : elle est dite hydrophile. En revanche la chaîne carbonée est hydrophobe. Les tensioactifs sont donc des molécules amphiphiles (figure 1.3).

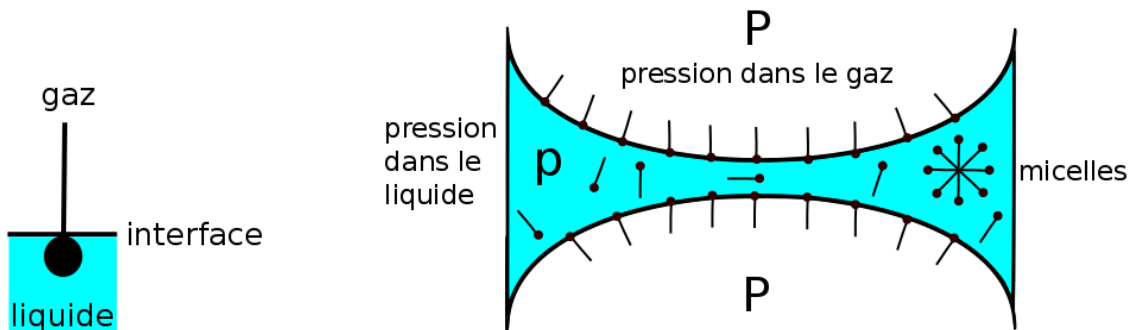


FIGURE 1.3 – À gauche : tensioactif au niveau d'une interface. Sa tête est hydrophile, tandis que sa queue est hydrophobe. À droite : interfaces liquide/gaz d'une mousse.

Les tensioactifs vont s'adsorber aux interfaces, avec la tête dans l'eau et la chaîne carbonée dans le gaz, et vont donc les recouvrir entièrement en formant une monocouche [1] (figure 1.3). Les têtes polaires se repoussent, et éloignent les interfaces les unes des autres. Cet éloignement stabilise les interfaces liquide/gaz sur la distance de répulsion par les têtes polaires. Cette monocouche de tensioactifs stabilise donc les interfaces et empêche leur rupture. Les tensioactifs sont solubles et il existe un équilibre entre la quantité d'espèces dissoutes et la couverture de surface. Au delà d'un certain seuil, la surface est complètement recouverte et les espèces dissoutes se réorganisent en structures mésoscopiques, appelées micelles.

1.2 Un matériau macroscopique

1.2.1 Un matériau hors équilibre

Lorsqu'une mousse vieillit dans le temps, malgré la présence des tensioactifs qui ont un effet stabilisant, elle peut se déstabiliser à cause de certains mécanismes que nous allons présenter dans cette partie.

Mûrissement

Comme on l'a vu précédemment, la mousse est constituée de bulles ayant la même taille, ou ayant des tailles différentes (mousse monodisperse ou polydisperse). Lorsque la structure de la mousse est polydisperse, les petites bulles ont une pression plus grande que celle des grandes bulles à cause de la courbure de l'interface (*loi de Laplace*). Il se crée alors un gradient de pression qui fait que le gaz contenu dans les petites bulles se transfère dans les grandes bulles, par dissolution et par diffusion dans le liquide.

Les petites bulles se vident dans les grandes jusqu'à disparaître (figure 1.4). Ainsi la taille moyenne des bulles augmente au cours du temps [1]. Ce phénomène est communément appelé mûrissement. Au cours de celui-ci, la mousse est toujours polydisperse et la distribution de taille des bulles atteint un régime autosimilaire [2]. La vitesse du mûrissement est affectée par plusieurs grandeurs physiques caractérisant la mousse [1], comme la fraction liquide (une mousse sèche mûrit plus vite qu'une mousse humide), ou la solubilité du gaz dans le liquide.

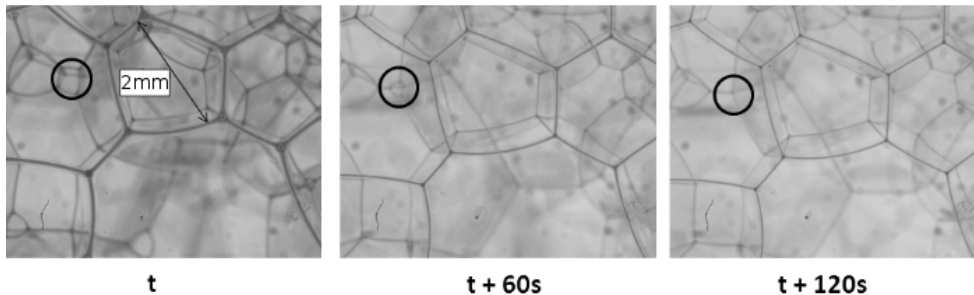


FIGURE 1.4 – Illustration du phénomène de mûrissement : photographies successives d'une mousse de TTAB à 1.5 g/L (colonne de mousse d'environ 20 cm de hauteur) proche d'une paroi. La petite bulle repérée par le cercle voit son volume diminuer puis disparaître.

Drainage

Si nous créons une mousse en agitant un mélange d'eau et de liquide vaisselle par exemple, nous pouvons nous apercevoir que la mousse créée est plus humide en bas et plus sèche en haut. En dessous de la mousse, les bulles sont sphériques, détachées les unes des autres et flottent dans le liquide : c'est ce qu'on appelle le liquide bulleux. Si notre regard remonte, nous pouvons nous apercevoir que la mousse présente plutôt un aspect humide, avec des bulles qui se touchent presque entre-elles et prennent une forme sphérique écrasée ; on peut voir entre les bulles un film liquide assez épais qui les sépare : cette partie de la mousse est considérée comme humide. Enfin si nous posons notre regard sur la partie supérieure de la mousse, les films liquides sont très fins et les bulles ne présentent plus une forme sphérique mais une forme polyédrique : c'est la partie sèche de la mousse (figure 1.5).

Si nous laissons quelques minutes la mousse au repos, nous pouvons nous apercevoir que les films liquides présents dans la moitié du haut de la mousse s'affinent de plus en plus ;

en conséquence la fraction liquide diminue au cours du temps [3]. Ce phénomène est appelé drainage gravitaire, illustré par la figure 1.6 (à distinguer du drainage forcé où le moteur de l'écoulement est par exemple un débit constant de solution moussante [1]).

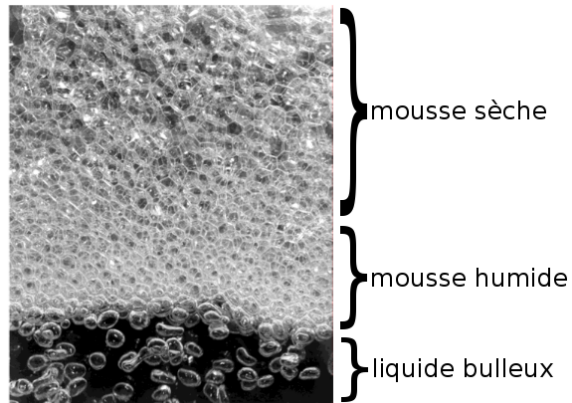


FIGURE 1.5 – Photographie d'une mousse [4] (source : J.J. Cilliers). En bas de la mousse les bulles sont sphériques alors qu'en haut elles présentent une forme polyédrique.

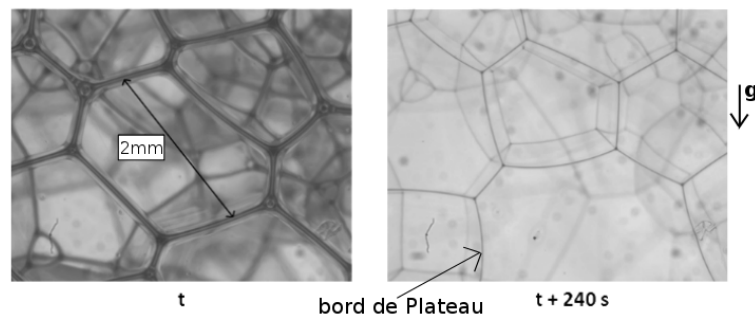


FIGURE 1.6 – Illustration du phénomène de drainage gravitaire : photographies d'une colonne de mousse, d'environ 20 cm de hauteur, prise à environ 10 cm au dessus du bain à deux instants. L'épaisseur des bords de Plateau diminue à cause du drainage de liquide vers le bas.

Coalescence

La minimisation de l'énergie interfaciale dans une mousse produit un phénomène qui tend aussi à la déstabiliser ; ce phénomène est la coalescence, c'est-à-dire la fusion de deux bulles voisines en une seule suite à la rupture du film liquide les séparant, ce qui a pour effet de réduire l'aire interfaciale. Le liquide qui était présent dans les bords de Plateau du film commun, se redistribue dans les autres bords de Plateau et se draine [3, 5].

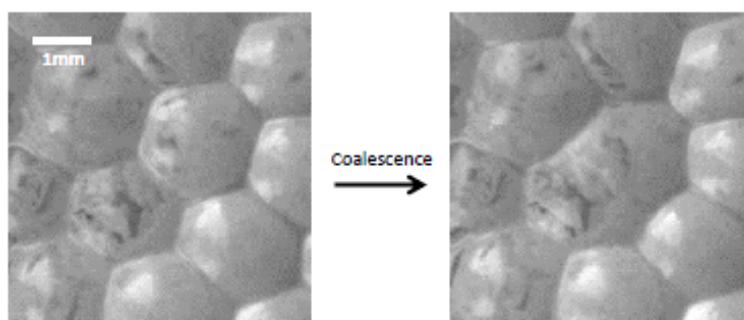


FIGURE 1.7 – Phénomène de coalescence [3].

1.2.2 Un fluide complexe : rhéologie

La mousse, bien que composée essentiellement de gaz et de liquide, présente un comportement de fluide complexe intermédiaire entre un solide et un fluide visqueux [6]. Si nous appliquons une certaine contrainte à la mousse, elle se déforme soit de façon élastique soit de façon plastique. La contrainte limite qui fixe le seuil entre élasticité et plasticité s'appelle contrainte seuil notée σ_y . Ce comportement est illustré sur la figure 1.8, qui montre en particulier que la contrainte seuil s'annule à la transition de déblocage pour $\phi_l = \phi_l^*$. Plus la fraction liquide est basse et plus le caractère solide de la mousse va ressortir, lorsque une contrainte lui est appliquée; au contraire plus la fraction liquide est élevée et plus le caractère liquide de la mousse sera prédominant [7]. De plus, σ_y est proportionnel à l'échelle de contrainte donnée par la tension de surface, c'est-à-dire la pression de Laplace γ/r où r est le rayon des bulles [6, 7]. Dans cette partie nous allons présenter les différents comporte-

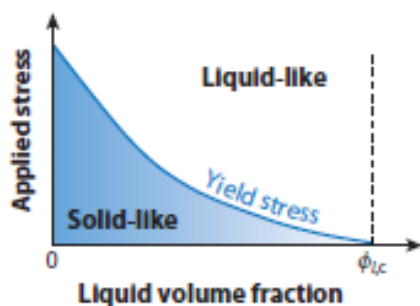


FIGURE 1.8 – Graphique montrant le comportement solide ou liquide de la mousse, dépendant de la contrainte appliquée et de la fraction liquide (extrait de [7]). $\phi_{l,c}$ représente la fraction liquide au point de transition liquide-solide (ϕ_l^* avec nos notations).

ments rhéologiques de la mousse (comportement solide ou fluide). Le type de déformation présenté ici est le cisaillement (figure 1.9).

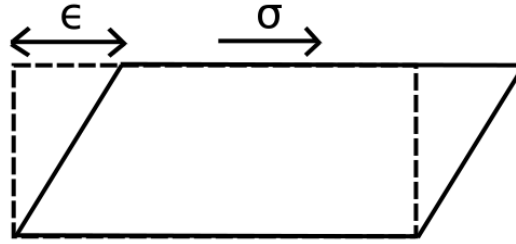


FIGURE 1.9 – Cisaillement d'un corps quelconque sous une contrainte σ , qui se déforme de ϵ .

Comportement solide de la mousse : régime élastique

Lorsqu'une mousse au repos est cisailée avec une contrainte $\sigma < \sigma_y$, elle se déforme en emmagasinant de l'énergie, puis restitue cette énergie en retournant à son état d'équilibre : c'est une réponse élastique qui est obtenue dans ce cas précis. Ce type de comportement est décrit par la loi de Hooke [1] :

$$\sigma = G \epsilon, \quad (1.2)$$

σ est la contrainte, G est le module de cisaillement statique, et ϵ est la déformation. En pratique, afin d'étudier la réponse viscoélastique d'une mousse, on lui impose une déformation sinusoïdale de pulsation ω . La contrainte σ et la déformation associée ϵ sont alors reliées par le module de cisaillement complexe noté G^* :

$$G^*(\omega) = G'(\omega) + iG''(\omega). \quad (1.3)$$

La partie réelle G' décrit le caractère élastique de la mousse donc la capacité à emmagasiner de l'énergie, tandis que la partie imaginaire G'' décrit le caractère visqueux de la mousse donc la capacité à dissiper de l'énergie [1]. En particulier, à basse fréquence, G' tend vers une constante $G_0 \sim (\gamma/r)f(\phi_l)$ où $f(\phi_l)$ une fonction décroissante de la fraction liquide, qui tend vers 0 au *jamming* ($\phi_l = \phi_l^*$) [6]. Ce comportement révèle que l'élasticité trouve son origine dans l'énergie des interfaces liquide-gaz.

Comportement liquide de la mousse : régime visqueux

Pour $\sigma > \sigma_y$, la mousse va s'écouler comme un liquide. Ce comportement fluide de la mousse est décrit par la loi empirique de Herschel-Bulkley reliant la contrainte σ et le taux de déformation $\dot{\epsilon}$ [6] :

$$\begin{aligned} \dot{\epsilon} &= 0 & \text{si } \sigma < \sigma_y, \\ \sigma &= \sigma_y + \xi \dot{\epsilon}^n & \text{si } \sigma \geq \sigma_y, \end{aligned} \quad (1.4)$$

où ξ est la consistance et n un exposant inférieur à 1. Cette loi correspond à un comportement rhéofluidifiant (viscosité diminuant avec le taux de cisaillement), n varie avec les propriétés des interfaces, notamment avec leur rigidité [7] qui dépend de la physico-chimie des tensioactifs. Ces propriétés interfaciales sont caractérisées par la rhéologie de surface (élasticité de surface et viscosité de surface de la couche de tensioactifs) présentée plus loin.

1.3 Statique et écoulement à l'échelle des films et des bulles

1.3.1 Films à l'équilibre

Comme déjà mentionné plus haut, les tensioactifs stabilisent les interfaces et donc les films liquides, un film étant composé de deux interfaces. Les films se trouvent alors dans un état d'équilibre. L'origine de cet état d'équilibre vient du type d'interaction entre les molécules tensioactives, et peut être décrit à cette échelle à l'aide d'une pression de disjonction du film notée Π , qui s'écrit :

$$\Pi = \Pi_{elec} + \Pi_{vdW} \quad (1.5)$$

Le terme Π_{elec} représente la pression de disjonction due à l'interaction répulsive d'origine électrostatique si la tête hydrophile des tensioactifs est chargée; Π_{vdW} est la pression de disjonction correspondant à l'interaction attractive (forces d'attraction de van der Waals). Dans ce type de cas, l'épaisseur du film liquide stabilisé est de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres (~ 30 nm).

1.3.2 Entraînement de films

La dynamique de l'écoulement à l'échelle des films liquides et des bulles est un point important pour comprendre l'origine du comportement macroscopique d'une mousse. Plusieurs études au niveau de l'échelle des films liquides ont été réalisées et ont montré le rôle crucial de la condition hydrodynamique à l'interface liquide/gaz sur ces écoulements [8]. Cette dernière dépend du mode de sollicitation mais aussi de la nature des tensioactifs. L'influence de ces propriétés de surface sur la dissipation visqueuse dans les films liquides par exemple a fait l'objet d'études. En particulier, le cisaillement de mousses contre une paroi, entraînant le glissement ou non des bulles proches de la paroi a été étudié [9].

Ce problème est analogue à la situation considérée par Bretherton [10] qui a étudié une bulle qui glisse dans un tube capillaire horizontal et vertical, et déterminé ainsi sa dynamique le long du tube, en fonction de ses propriétés de surface. Il a aussi déterminé l'évolution de l'épaisseur du film liquide qui se forme entre la bulle et la paroi, comme nous allons le voir. Cette situation est aussi proche du problème de Landau-Levich présenté ci-dessous.

Le comportement d'un film liquide proche d'une paroi solide qui se déplace à vitesse constante \mathbf{U} est étudié à l'aide du modèle de Landau, Levich et Derjaguin, (*LLD*). Ce modèle prédit l'évolution de l'épaisseur du film liquide plat au niveau de la paroi solide, mais il prédit aussi l'évolution des forces visqueuses dans le ménisque [8]. La situation considérée par le modèle *LLD* est le tirage d'une plaque solide verticale à vitesse constante \mathbf{U} d'un bain liquide de viscosité μ_l [11], comme le montre le schéma de la Figure 1.10.

Dans un premier temps, le liquide considéré est pur, donc sans tensioactifs (tension de surface constante). La dissipation visqueuse est supposée se réaliser dans le ménisque dynamique, et la contrainte tangentielle à l'interface liquide-gaz est nulle. L'expression analytique de l'évolution de l'épaisseur de film liquide h est [8, 12] :

$$h = k r_m Ca^{\frac{2}{3}}. \quad (1.6)$$

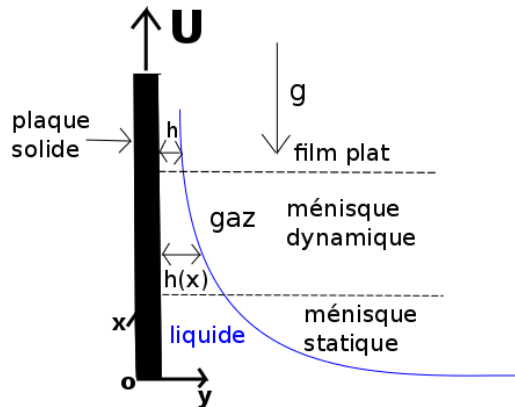


FIGURE 1.10 – Schéma de l'expérience de tirage d'une plaque solide hors d'un bain liquide.

C'est la loi de Landau-Levich. k est une constante, r_m est le rayon de courbure du ménisque statique et $Ca = \mu_l U / \gamma$ est le nombre capillaire, nombre sans dimension qui compare effets visqueux et tension de surface. De même, l'évolution des forces visqueuses f_{visc} exercées par la plaque sur le ménisque s'écrit :

$$f_{\text{visc}} = c \gamma Ca^{\frac{2}{3}}, \quad (1.7)$$

où c est une constante, et γ est la tension de surface. D'autres études ont montré une déviation à la loi de Landau-Levich concernant l'épaisseur de film liquide qui pourrait s'expliquer par une influence des tensioactifs [8, 12, 13]. Cette loi peut prédire dans certains cas le mouvement des bulles proches d'une paroi solide [10], une situation rencontrée est lorsque une mousse s'écoule entre deux plaques. Des études ont montré que l'exposant de la force en fonction du nombre capillaire varie suivant le type de solution utilisé [8], donc les tensioactifs pourraient avoir un effet sur l'évolution de ces lois. En effet, les tensioactifs changent la condition aux limites à l'interface liquide-gaz ; celle-ci passe d'une condition de contrainte nulle à une condition de non-glissement (interface rigide).

En présence de tensioactifs et en l'absence de paroi solide, une loi semblable à la loi de Landau-Levich est utilisée dans ce cas : il s'agit de la loi de Frankel. Frankel [14], s'est basé sur le modèle de *LLD* afin de pouvoir estimer l'épaisseur d'un film liquide h tiré à partir d'une solution de tensioactifs. Cette loi est notamment utilisée afin de pouvoir évaluer l'épaisseur d'un film liquide créé [15]. En effet, l'épaisseur du nouveau film liquide, noté h^* , varie en loi de puissance en fonction de Ca :

$$h^* \sim Ca^{\frac{2}{3}}. \quad (1.8)$$

1.3.3 Dynamique des T1

Précédemment, nous avons vu que l'écoulement au niveau des bulles et des films pouvait se faire par exemple par entraînement du liquide proche d'une paroi solide. Mais, ce n'est

pas le seul mécanisme à l'origine de l'écoulement du liquide dans les mousses ; il existe en effet d'autres mécanismes qui conduisent au même résultat : ils sont connus sous le nom de *réarrangements topologiques* qui se produisent au sein de la mousse. Dans ce paragraphe nous allons décrire ces réarrangements.

Un réarrangement topologique est un événement qui change la structure de la mousse, donc sa topologie [1]. Il en existe trois types à savoir la coalescence (disparition du film liquide entre deux bulles, conduisant à la fusion de ces deux bulles en une seule), et les réarrangements appelés T1 ou T2. Le réarrangement topologique de type T2 est un événement qui conduit à l'apparition ou à la disparition de bulles lorsque le volume de celles-ci est différent, donc lorsqu'on est confronté à une mousse polydisperse par exemple. Ce type de processus survient donc pendant le mûrissement de la mousse, lorsque le gaz présent dans les petites bulles se transfère dans les grandes. Les T2 ne seront pas étudiés ici et nous allons nous focaliser au niveau des réarrangements de type T1. Le réarrangement topologique de type T1 est un événement élémentaire de réarrangement de bulles, qui consiste en un changement de bulle voisine. Si nous considérons en effet une bulle en particulier (bulle n°1 par exemple du schéma descriptif de la figure 1.11), après un T1 elle aura changé de bulles voisines.

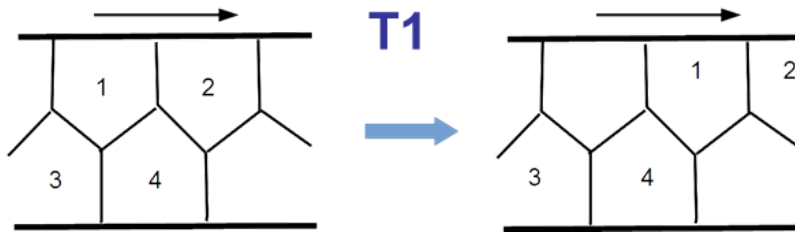


FIGURE 1.11 – schéma descriptif du T1.

Un T1 survient lorsque la mousse est cisailée (cf. figure 1.11) avec une contrainte supérieure à la contrainte seuil (pour $\sigma > \sigma_y$), entraînant une modification plastique (irréversible) de la structure. Cette déformation à l'échelle macroscopique de la mousse se traduit par une déformation des bulles, et par une disparition/réapparition des films liquides. Le T1 peut aussi se produire dans certains cas sous l'effet du mûrissement. En effet, pendant un T1, un film liquide disparaît, puis un nouveau apparaît perpendiculairement à l'ancien en se relaxant. Pendant ce réarrangement, la mousse se trouve dans une situation instable qui ne respecte plus les lois de Plateau, et sa structure évolue donc vers une situation stable de plus faible énergie. Ce mécanisme de réarrangement est important pour l'étude de la stabilité de la mousse [16], car il peut arriver que le film liquide se casse pendant cette dynamique, entraînant l'éclatement des bulles et donc conduisant à l'effondrement de la mousse toute entière. La dynamique des T1 a aussi une importance dans l'étude des propriétés rhéologiques (dissipation dans les films liquides [17, 18]).

Plusieurs aspects de la dynamique du T1 ont fait l'objet d'études. Par exemple l'étude du temps de relaxation du film liquide au moment de la création de celui-ci [18, 19]. En

effet, il a été montré que ce temps de relaxation dépend de la viscosité de surface et de l'élasticité de surface, donc dépend de la nature du tensioactif utilisé [18]. Il a été montré aussi que pendant la création du nouveau film, une accélération de celui-ci au début de sa création, puis une décélération à la fin de sa création étaient observées ; une accélération et une évolution plus graduée se font aussi pour les tensioactifs se répartissant sur le nouveau film [19]. Un autre aspect qui a été étudié est le temps de réarrangement du T1, mettant en évidence une dépendance de ce temps avec la rigidité des interfaces (viscosité de surface), de la viscosité de volume, de la taille des bulles et de la fraction volumique liquide [17, 20].

D'autres études se sont focalisées sur la disparition et l'apparition du film pendant le T1, mettant en évidence deux types de comportements. Le premier comportement serait un mécanisme de tirage du film depuis les bords de Plateau, et le deuxième une élongation et un amincissement de celui-ci [21] ; dans ce deuxième cas, une transition existerait entre les deux régimes, où l'épaisseur mesurée ne correspondrait pas à la loi de Frankel. Il y aurait donc un régime transitoire entre l'ancien film et le nouveau. Pendant ces réarrangements, des mécanismes de dissipation visqueuse se produisent dans les films et dans le liquide. Le modèle de Denkov prend en compte la dissipation dans le liquide et dans les bords de Plateau, dans le cas d'un cisaillement exercé au niveau des bulles de forme quasi-statique avec des interfaces rigides [22]. Ce modèle prédit que la dissipation de surface est importante pour les systèmes avec un important module dilatationnel de surface.

1.4 Tensioactifs et interfaces

1.4.1 Équation d'état de l'interface

Les tensioactifs, décrits précédemment, sont des molécules qui stabilisent les interfaces de la mousse ; ils diminuent la tension de surface γ d'une interface [23]. Si les tensioactifs sont solubles dans la phase liquide, des phénomènes d'échanges entre l'interface et le volume entrent en jeu. Ce sont des phénomènes appelés adsorption et désorption ; si le flux de tensioactifs va du volume vers l'interface, on dit que ces molécules sont adsorbées à l'interface. γ est donc modifiée, jusqu'à ce que les tensioactifs remplissent toute l'interface et ne puissent plus être adsorbés. Au-delà de cette concentration de saturation en tensioactifs à l'interface appelée Concentration Micellaire Critique (CMC), γ est constante comme le montre la figure 1.12, et ces molécules forment des micelles dans la phase liquide. Si au contraire le flux de molécules tensioactives va de l'interface vers le volume, ces dernières sont désorbées de l'interface. Dans le cas où les tensioactifs sont insolubles dans le liquide, ces dynamiques d'adsorption et de désorption sont absentes.

Thermodynamique de l'interface

Il est important de définir ici une pression de surface (Π_s) qui va nous servir à établir la relation entre la tension de surface et la concentration en surface f des tensioactifs. Π_s est donc définie comme la différence entre la tension de surface du liquide pur γ_0 , et la tension de surface γ :

$$\Pi_s = \gamma_0 - \gamma. \quad (1.9)$$

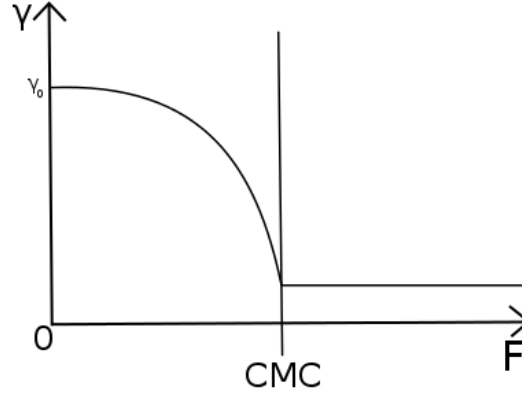


FIGURE 1.12 – Schéma montrant la variation de γ en fonction de F , la concentration en volume des tensioactifs ; γ_0 est la tension de surface du liquide pur.

Une relation entre γ , f et la concentration en volume des tensioactifs F , est l'équation de Gibbs qui découle d'un bilan thermodynamique de l'interface. Cette équation décrit l'isotherme d'adsorption de l'interface, pour une solution idéale sans interaction :

$$d\gamma = -fd\mu = -fk_B T d[\ln(F)]. \quad (1.10)$$

μ est le potentiel chimique dans le cas d'une solution idéale sans interaction [1] : $\mu = \mu_0 + k_B T \ln(F)$, k_B est la constante de Boltzmann, f et F sont respectivement les concentrations à l'interface et dans le volume en tensioactifs, et T est la température (constante dans ce cas).

Modèle de Langmuir

Pour déterminer la relation entre γ et f , nous avons besoin d'une équation supplémentaire qui décrit la dynamique d'adsorption et de désorption des tensioactifs : c'est le modèle de Langmuir. Ce modèle suppose que les tensioactifs sont adsorbés et désorbés, et qu'il n'y a pas d'interaction entre les molécules [1]. Ainsi le modèle de Langmuir s'écrit [23] :

$$\frac{df}{dt} = r_a F^s \left(1 - \frac{f}{f_\infty}\right) - r_d \frac{f}{f_\infty}. \quad (1.11)$$

f_∞ est la concentration en tensioactifs à l'interface saturée, F^s la concentration volumique en tensioactifs près de l'interface, r_a et r_d sont respectivement les coefficients d'adsorption et de désorption. Si l'on considère que la concentration volumique près de l'interface est la même que celle loin de l'interface ($F^s = F$), et que l'on se trouve à l'équilibre c'est-à-dire à f constant, on peut déduire de l'équation (1.11) :

$$F \frac{r_a}{r_d} = \frac{\frac{f}{f_\infty}}{\left(1 - \frac{f}{f_\infty}\right)}. \quad (1.12)$$

Enfin en combinant les équations (1.10) et (1.12), et en utilisant la définition de la pression de surface Π_s (équation (1.9)), on obtient la relation entre la tension de surface γ et la concentration volumique F en tensioactifs.

$$\Pi_s = \gamma_0 - \gamma = k_B T f_\infty \ln \left(1 + F \frac{r_a}{r_d} \right), \quad (1.13)$$

ainsi que la relation entre γ et la concentration surfacique en tensioactifs f (équation d'état de l'interface) :

$$\Pi_s = \gamma_0 - \gamma = k_B T f_\infty \ln \left(\frac{f_\infty}{f_\infty - f} \right). \quad (1.14)$$

C'est cette équation d'état que nous utiliserons dans la suite de ce travail pour coupler la dynamique des tensioactifs (concentration interfaciale f) et la mécanique des interfaces (tension de surface dynamique γ qui influe sur les conditions aux limites hydrodynamiques). Il existe cependant d'autres équations d'état de l'interface, prenant en compte les interactions entre les molécules [24].

Effet Marangoni

Suite à l'advection des tensioactifs sous écoulement, il se crée des gradients de tension de surface dus à l'hétérogénéité en concentration de tensioactifs à l'interface (γ n'est pas constant). Ce phénomène modifie le saut de contrainte à l'interface en créant une contrainte tangentielle à l'interface, appelée force de Marangoni \mathbf{F}_{Ma} , en souvenir du physicien italien Carlo Giuseppe Matteo Marangoni (1840-1925). Elle s'écrit suivant une coordonnée x [23] :

$$F_{Ma,x} = \frac{\partial \gamma}{\partial x} \quad (1.15)$$

C'est par l'intermédiaire de cette contrainte Marangoni, ainsi que par le saut de pression de Laplace, que la dynamique des tensioactifs est capable de modifier la dynamique de l'écoulement.

1.4.2 Mécanique des interfaces

Lors d'une sollicitation mécanique (contrainte bidimensionnelle, homogène à une tension de surface) l'interface se déforme. Elle peut se déformer de façon à ce que son aire varie (compression/dilatation) ou de sorte que sa forme change, sans modification d'aire (cisaillement). La réponse de l'interface à ces contraintes de compression/dilatation ou de cisaillement se traduit par une viscoélasticité interfaciale qui dépend de la nature du tensioactif utilisé, et de l'échelle de temps de la sollicitation mécanique.

Déformation par compression/dilatation

Comme énoncé précédemment, la déformation de l'interface à des contraintes de compression ou de dilatation se traduit par un changement d'aire de celle-ci (figure 1.13).

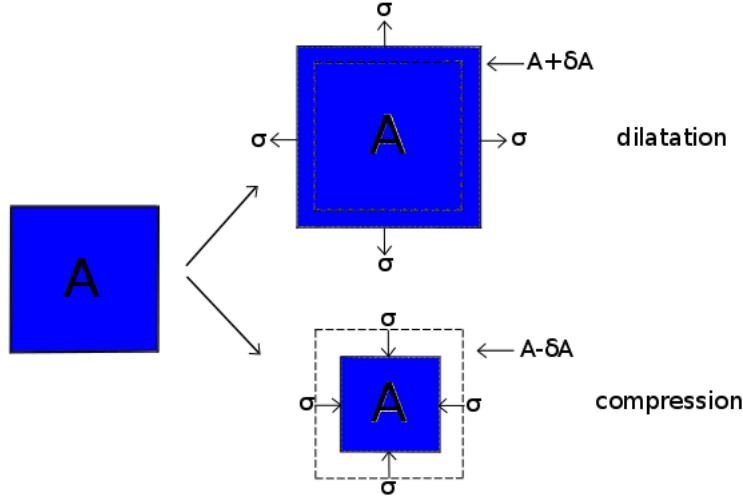


FIGURE 1.13 – Schéma illustrant la déformation par dilatation ou par compression d'une interface d'aire A .

Dans le cas d'une interface purement visqueuse, la loi rhéologique qui relie la contrainte σ au taux de déformation en compression/dilatation $\widehat{\delta A/A}$ s'écrit :

$$\sigma = \mu_d \widehat{\delta A/A}, \quad (1.16)$$

où μ_d est la viscosité dilatationnelle de surface. Si l'interface est purement élastique, on peut définir un module élastique dilatationnel de surface E_d à travers la relation suivante :

$$\sigma = E_d \delta A/A. \quad (1.17)$$

Si nous considérons que les tensioactifs sont insolubles ; le module élastique dilatationnel de surface est égal alors au module élastique de Gibbs-Marangoni, noté E_{GM} [1] :

$$E_{GM} = -\frac{d\gamma}{d \ln f}. \quad (1.18)$$

À l'inverse, si les tensioactifs sont solubles, la déformation de l'interface est sensible à la fréquence de sollicitation mécanique. Le module dilatationnel de surface devient complexe (E^*), et peut être décomposé en une partie réelle et une partie imaginaire :

$$E^*(\omega) = E'(\omega) + iE''(\omega). \quad (1.19)$$

La partie réelle $E'(\omega)$ est le module élastique en phase avec la déformation, tandis que la partie imaginaire $E''(\omega)$ représente le module de perte qui est lié à la viscosité dilatationnelle de surface par $E''(\omega) = \omega \mu_d$.

Dans la limite où la dynamique des tensioactifs est uniquement pilotée par la diffusion dans le volume (adsorption/désorption immédiate), Lucassen et Van Den Tempel [25] ont

calculé la réponse viscoélastique de l'interface en compression/dilatation. Ils démontrent que la réponse est pilotée par le rapport entre la période des oscillations et le temps caractéristique $t_{\text{diff}} = (df/dF)^2/D_v$. À haute fréquence, le module élastique tend vers le module de Gibbs-Marangoni, tandis que le module de perte tend vers 0. À basse fréquence, les deux modules s'annulent tandis qu'à des fréquences intermédiaires, le module de perte qui caractérise la réponse visqueuse passe par un maximum.

Déformation par cisaillement

La déformation par cisaillement induit une modification de la forme de l'interface mais pas de son aire, comme le montre la figure 1.14.

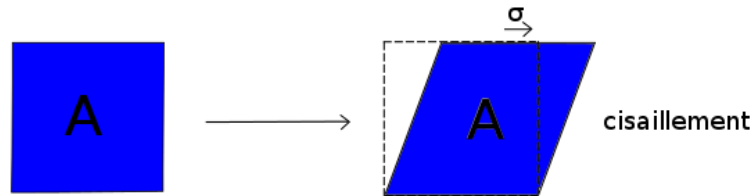


FIGURE 1.14 – Schéma illustrant la déformation par cisaillement d'une interface d'aire A.

La contrainte associée à cette déformation peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\sigma = E_{cis}\epsilon + \mu_{cis}\dot{\epsilon}. \quad (1.20)$$

E_{cis} est le module élastique de cisaillement de surface, et μ_{cis} est la viscosité de cisaillement de surface. Pour des tensioactifs usuels, l'élasticité de cisaillement de surface est nulle, et la viscosité de surface de cisaillement est plus faible que celle de compression/dilatation. Comme pour le cas de compression/dilatation, nous pouvons définir un module complexe de cisaillement noté H^* , traduisant la réponse au cisaillement pour une fréquence de sollicitation donnée :

$$H^*(\omega) = H'(\omega) + iH''(\omega). \quad (1.21)$$

$H'(\omega)$ représente la partie en phase avec la déformation tandis que $H''(\omega)$ représente la partie en déphasage par rapport à la déformation, et est lié à la viscosité de cisaillement de surface par : $H''(\omega) = \omega\mu_{cis}$.

Les modules d'élasticité et de viscosité sont associés à des phénomènes d'interaction entre les molécules tensioactives, et à des phénomènes d'échanges entre l'interface et le volume dans le cas d'une dilatation/compression. Différentes méthodes expérimentales (viscosimètres de surface en cisaillement [23], bulles oscillantes [26], propagation d'ondes capillaires [24]) ont permis de mesurer des grandeurs comme l'élasticité, la viscosité élongationnelle et la viscosité de cisaillement. Des valeurs de viscosité de surface de cisaillement très faibles ont ainsi été mesurées [23]. En fonction du tensioactif utilisé, elles peuvent aussi varier de plusieurs ordres de grandeur. Par exemple, le module dilatationnel de surface peut

varier de 3.4 mN/m à 200 mN/m quand on ajoute un acide gras peu soluble à des mélanges de tensioactifs ioniques [26].

1.5 Problématique générale

Ce premier chapitre pose les notions de base sur les mousses ; il présente les aspects mécaniques, physico-chimiques et rhéologiques, et établit le couplage entre ces différents aspects, ce qui est très important dans la caractérisation de la dynamique des mousses. Un point essentiel qui pourrait éclaircir la compréhension de la dynamique et de l'évolution de la mousse, serait d'étudier l'aspect physico-chimique et rhéologique de celle-ci au niveau des petites échelles. À l'échelle de quelques bulles, connaître la dynamique des tensioactifs et leur couplage avec les écoulements apporterait une meilleure connaissance des phénomènes physiques qui déterminent ce qui se passe au niveau de l'échelle macroscopique de la mousse. D'un point de vue expérimental, il est très difficile de connaître la répartition en tensioactifs et leur évolution au sein de la mousse, et d'un point de vue analytique il n'est pas possible de prendre en compte entièrement cette dynamique et le couplage avec la partie rhéologique, à cause de la complexité des équations d'évolution correspondantes. Cependant, on peut lever cette difficulté en effectuant des simulations numériques couplant les dynamiques des fluides et des tensioactifs. C'est l'objet de ce travail de thèse qui va être présenté dans la suite.

Formulation du problème et méthode level-set

Sommaire

2.1	Écoulements avec tensioactifs	28
2.1.1	Effets physiques des tensioactifs : un aperçu	28
2.1.2	Panorama des méthodes numériques	29
2.2	Principe de la méthode level-set	32
2.3	Formulation du problème et résolution numérique . . .	33
2.3.1	La dynamique de l'écoulement	33
2.3.2	Physico-chimie du modèle : la dynamique des tensioactifs	34
2.3.3	Viscosité de surface	36
2.4	Les équations sous forme distribuée et adimensionnée .	36
2.4.1	Nombres sans dimension dans la simulation	36
2.4.2	Forme distribuée des équations	38
2.4.3	Forme adimensionnée des équations	38
2.5	Implémentation numérique des équations	40
2.5.1	Équation de la fonction level-set	41
2.5.2	Équations de Navier-Stokes	41
2.5.3	Équations de transport des tensioactifs	42

Nous allons à présent aborder le problème spécifique étudié au cours de cette thèse : l'influence des tensioactifs sur la dynamique d'un T1. Nous présentons d'abord quelques écoulements où l'effet des tensioactifs a été mis en évidence et évoquons les méthodes numériques permettant de les appréhender. Ensuite ce chapitre introduit la méthode level-set utilisée, et présente les équations physiques complètes du problème. Enfin, nous présentons les schémas de discrétisation utilisés dans le code.

2.1 Écoulements avec tensioactifs

2.1.1 Effets physiques des tensioactifs : un aperçu

Cette section présente quelques situations décrivant l'effet des tensioactifs déjà mis en évidence sur des systèmes comme les gouttes, les bulles ou les films liquides.

Mouvement d'une bulle ou d'une goutte. Une des premières situations concerne le mouvement d'une goutte (voir p.5 dans [27]). En 1911, Rybczynski et Hadamard prédisent que pour un écoulement de Stokes, la vitesse de sédimentation d'une goutte est plus importante que celle d'une sphère solide de taille égale. En effet, une condition de non-glissement s'applique à la sphère solide, tandis que l'écoulement est possible à la surface de la goutte. Cependant, des expériences menées en 1916 montrent que des gouttes de rayon suffisamment petit se déplacent à la même vitesse que des sphères solides. Pour expliquer cette différence entre les prédictions théoriques et les résultats expérimentaux, Boussinesq avança l'hypothèse de l'existence d'une viscosité de surface (1913). En reprenant la théorie de la viscosité de surface établie par Plateau (1871), il trouva une expression analytique de la vitesse de sédimentation d'une goutte sphérique, qui prédisait qu'une goutte suffisamment petite se comportait comme une sphère solide. Plus tard Frumkin et Levich (1947 et 1962) attribuent le comportement de sphères solides des gouttes et leur vitesse de sédimentation plus faible à la présence d'agents tensioactifs sur leur surface et s'accumulant à l'arrière de la goutte, créant ainsi des gradients Marangoni.

De façon analogue, cet effet des tensioactifs est aussi à l'œuvre dans le cas de l'ascension d'une bulle. Il y a en effet un ralentissement de la vitesse d'ascension de la bulle à cause de l'accumulation des tensioactifs à l'arrière de celle-ci, formant ainsi une zone dite stagnante et aboutissant à une condition de non-glissement. Parmi plusieurs études, nous pouvons citer les travaux de Cuenot *et al* [28], pour le cas d'une bulle ascendante dans du liquide contaminé par des tensioactifs faiblement solubles. Des situations analogues au cas que l'on vient de décrire prennent en compte la déformation de la bulle, et fournissent une description plus réaliste des processus hydrodynamiques [29]. Nous pouvons citer aussi le cas de simulations numériques d'un écoulement axi-symétrique autour d'une bulle d'air sphérique dans une solution de tensioactifs [30]. Il a été montré que la vitesse d'ascension de la bulle est proche de celle pour le cas d'une solution pure dans une certaine gamme de concentration en tensioactifs. Au-delà de cette gamme de concentration, la vitesse d'ascension de la bulle diminue. Ce résultat physique peut avoir des conséquences au niveau macroscopique, plus

précisément les tensioactifs peuvent changer la structure de l'écoulement par exemple au niveau des écoulements dits bulleux [31].

Déformation de gouttes. Les tensioactifs peuvent aussi jouer un rôle important dans la déformation de gouttes, par exemple dans un écoulement extensionnel [32]. Des effets contraires peuvent se produire. D'une part, une accumulation de tensioactifs au niveau de la partie terminale de la goutte entraîne une baisse de la tension de surface et donc une augmentation de la déformation. D'autre part, la dilution des tensioactifs à cause de l'augmentation de l'aire interfaciale de la goutte tend à augmenter la tension de surface et donc à réduire la déformation. Nous pouvons évoquer aussi le cas d'une goutte soumise à un écoulement de cisaillement [33]. Il a été observé que la goutte est plus déformée lorsque l'échange de tensioactifs entre l'interface et le volume devient important. En effet, cette rapide adsorption et désorption entraîne une forte diminution de la tension de surface, qui se manifeste par une déformation plus importante de la goutte. Il a été observé aussi une déformation plus importante lorsque les effets de diffusion sont dominants par rapports aux effets d'advection, c'est-à-dire quand les tensioactifs se répartissent d'une manière plus homogène le long de l'interface. Au contraire, si les effets d'advection l'emportent sur la diffusion, la concentration en tensioactifs à l'interface est plus hétérogène, ce qui fait que la déformation de la goutte est moins significative.

Une autre situation abordée a été aussi l'étude du phénomène de « tip streaming » au niveau d'une goutte en présence de tensioactifs [34]. Les tensioactifs s'accumulent aux pôles de la goutte, conduisant à la déformation de celle-ci, avec l'apparition d'extrémités pointues, et la croissance d'un filament de liquide. D'autres études numériques se sont focalisées sur l'effet des tensioactifs au niveau de la formation d'une goutte [35]. En effet le profil de la goutte change suivant qu'une espèce ou un mélange de tensioactifs est utilisé dans le modèle. De plus, la répartition de concentration en tensioactifs dépend des phénomènes couplés d'advection et de diffusion qui se produisent à l'interface de la goutte. Enfin, les tensioactifs peuvent aussi inhiber la coalescence, comme c'est le cas lors de la collision entre deux gouttes [36]; l'inhibition de la coalescence est due au ralentissement du drainage du film liquide entre les deux gouttes, qui s'explique notamment par l'immobilisation de l'interface.

Dynamique d'un film liquide. L'influence des tensioactifs se fait aussi sentir dans la dynamique de film liquide, par exemple lorsque une couche de tensioactifs insoluble s'étale à la surface de celui-ci [37]. L'épaisseur du film liquide et la concentration en tensioactifs lors de l'étalement sont très sensibles à la présence de tensioactifs. Il se forme des filaments de liquide et de canaux de fluide à la surface du film peu après l'étalement de la monocouche de tensioactifs.

2.1.2 Panorama des méthodes numériques

Dans les simulations d'écoulements diphasiques, nous pouvons identifier deux types de problèmes : l'évolution des interfaces, et le fait d'imposer les conditions aux limites aux interfaces (conditions de saut de contraintes aux interfaces par exemple) ce qui résulte être

complexe car les interfaces sont en mouvement. Mais ces difficultés peuvent être abordées avec les méthodes dites « continuous surface tension methods » [38], qui sont utilisées avec les méthodes numériques traitant le problème d'évolution des interfaces, et qui permettent de bien définir les conditions aux limites aux interfaces à travers un terme source dans les équations du mouvement. Dans la suite, nous décrivons quelques méthodes numériques traitant les deux types de problèmes énoncés ci-dessus, pour les écoulements avec tensioactifs, et discutons brièvement leurs avantages et inconvénients. Nous considérons seulement les méthodes numériques au niveau desquelles les équations de Navier-Stokes sont résolues sur une grille fixe. Mais la grille peut aussi évoluer pendant la simulation [39]. Le tableau 2.1 résume ces différentes méthodes avec quelques références clés. Une introduction à ces méthodes peut être trouvé dans [40].

classe	méthode	revue	insoluble	soluble
“interface-tracking”	“front-tracking”	[41]	[42]	[43]
	“immersed boundary”	[44]	[45]	
“interface-capturing”	“level-set”	[46]	[47]	
	“diffuse-interface”	[48]		[33]
	“volume of fluid”	[49]	[50]	[51]

TABLE 2.1 – Méthodes numériques utilisées pour les écoulements diphasiques avec tensioactifs.

D'un point de vue numérique, décrire la dynamique des tensioactifs couplée à celle des interfaces et de l'écoulement est un vrai défi. Le mouvement des tensioactifs est caractérisé par une équation d'évolution à l'interface dans le cas où ces molécules sont insolubles. S'ils sont solubles, s'ajoute une équation d'évolution dans le liquide ; il se crée alors des échanges entre l'interface et le volume. Il faut aussi pouvoir prendre en compte la forme changeante des interfaces, qui peuvent s'étirer, se compresser, se casser, et donc changer de topologie. La description de ces phénomènes complexes nécessite de recourir à des méthodes numériques. Nous présentons brièvement la littérature prenant en compte ces problèmes dans ce type de méthode numérique ; une courte revue supplémentaire peut être trouvée dans Teigen *et al.* [33]. On peut distinguer les méthodes de type *interface tracking*, et celles de type *interface capturing*.

Méthodes de type « interface-tracking » ou « front-tracking ». Ce type d'approche utilise pour représenter l'interface soit un maillage différent que celui utilisé dans les autres parties du domaine, soit des points connectés entre eux. Dans cette famille, nous pouvons citer la méthode boundary integral qui a été utilisée par exemple dans l'étude de la déformation et de la rupture d'une goutte sous l'effet de tensioactifs insolubles [52] ou solubles [53]. Cependant, cette méthode peut être utilisée seulement pour les écoulements de Stokes ou pour les écoulements potentiels, ce qui limite son usage. Il existe également la méthode dite front-tracking avec laquelle a été étudié l'effet de tensioactifs solubles sur la

scission d'une bulle, ou sur la déformation et le mouvement de bulles dans un tube [43]. Une méthode numérique qui est liée à la méthode front-tracking est la méthode appelée immersed boundary. Elle a été utilisée notamment pour étudier l'effet de tensioactifs insolubles sur la déformation d'une goutte dans un écoulement cisailé [45]. La différence entre la méthode front-tracking et la méthode immersed boundary réside dans la façon selon laquelle les conditions de saut de contrainte à l'interface sont imposées.

Méthodes de type « interface-capturing ». L'autre famille de méthodes numériques appelée interface capturing ne définit pas de façon explicite l'interface, mais le fait de manière implicite à travers une fonction. La méthode Volume-of-Fluid (VOF) en est un exemple ; elle a été utilisée pour étudier l'effet de tensioactifs solubles sur la dynamique d'ascension d'une bulle [51]. La méthode Level-set, qui sera présentée plus tard dans ce chapitre, fait aussi partie de la famille interface capturing. Elle a été appliquée pour étudier certains problèmes de mécanique des fluides comme par exemple la dynamique des bulles [46]. Enfin, un dernier type d'approche est la méthode diffuse-interface qui a été utilisée pour étudier la déformation d'une goutte dans un écoulement cisailé, sous l'effet de tensioactifs solubles [33], ou encore pour l'étude d'autres situations telles que les ondes capillaires, la nucléation de gouttes, les écoulements thermocapillaires [48].

Avantages de la méthode level-set. Par rapport aux autres méthodes numériques, la méthode level-set présente certains avantages. Elle modélise facilement des quantités comme la tension de surface ou la courbure ce qui n'est pas le cas par exemple de la méthode VOF [46]. Cette fonction distance est lissée à travers l'interface, ce qui fait que la transition entre les fluides pour les différentes quantités comme ρ et μ par exemple, se fait de manière continue et non pas de façon abrupte, évitant ainsi un changement brutal à travers l'interface, ce qui n'est pas le cas de la méthode VOF. De plus une autre différence avec la méthode VOF est qu'il n'y a pas besoin avec la méthode level-set de reconstruire l'interface. Un autre avantage est de ne pas nécessiter de travail supplémentaire pour prendre en compte avec précision des changements topologiques [54]. Cet effort supplémentaire est en revanche nécessaire par exemple pour les méthodes *front-tracking*. De plus, le passage de la 2D à la 3D est une opération simple à réaliser avec la méthode level-set. Dans la prochaine section, nous allons présenter plus en détail la méthode numérique qui a été l'outil principal de ce travail de thèse. La conservation de la masse s'est révélée être de moins bonne qualité avec les anciennes versions de la méthode level-set, en particulier lorsqu'elle était comparée à la méthode VOF, mais des améliorations significatives ont été réalisées au niveau des versions modernes de la méthode level-set [55]. En tout cas, la conservation de la masse totale sera l'objet de tests dans ce travail de thèse. Enfin, les courants parasites sont généralement plus importants avec la méthode level-set qu'avec la méthode VOF, mais avec des versions modernes de la méthode level-set ces courants peuvent être gardés à un niveau acceptable [55]. Le rôle des tensioactifs sur ces courants sera aussi l'objet de tests dans ce travail.

2.2 Principe de la méthode level-set

La méthode level-set est une méthode numérique utilisée en simulation de mécanique des fluides, afin de décrire notamment les systèmes diphasiques [54]. Cette méthode a été aussi appliquée dans d'autres domaines notamment au niveau du design des têtes d'impression des imprimantes à jet d'encre, ou encore en science des matériaux dans la représentation de films fins polycristallins facetés [46]. Le principe général est d'identifier les différentes régions fluides par une fonction distance que l'on appellera $\phi(\mathbf{x}, t)$ (fonction level-set), qui prend des valeurs positives dans le fluide 1 et des valeurs négatives dans le fluide 2. La démarcation entre les fluides (interface) correspond à l'iso-contour $\phi(\mathbf{x}, t) = 0$ (cf. figure 2.1). Nous avons donc :

$$\phi(\mathbf{x}, t) = \begin{cases} d & \text{dans le fluide 1 (liquide),} \\ -d & \text{dans le fluide 2 (gaz),} \\ 0 & \text{le long de } \Gamma \text{ (interface),} \end{cases} \quad (2.1)$$

où d est la distance à l'interface la plus proche et \mathbf{n} est le vecteur normal à l'interface pointant vers le fluide 1 (figure 2.1). Cette méthode permet de connaître l'évolution de

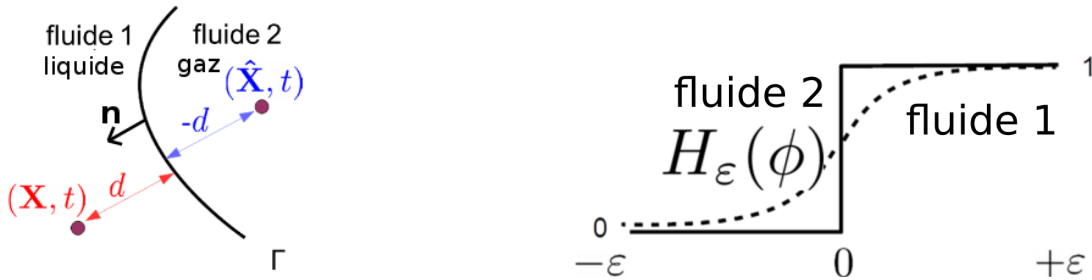


FIGURE 2.1 – Fonction level-set dans deux fluides différents (gauche), et allure de la fonction de Heaviside lissée à travers l'interface (droite).

l'interface au cours du temps, ce qui est important dans le cadre de ce travail de thèse, qui vise à étudier la répartition de concentration en tensioactifs le long de l'interface en mouvement. La fonction level-set est advectée par le champ de vitesse \mathbf{u} de l'écoulement, et évolue à l'interface selon :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi = 0. \quad (2.2)$$

L'équation (2.2) est une condition cinématique valable uniquement à l'interface, c'est à dire lorsque $\phi = 0$. Le champ de vitesse \mathbf{u} est déterminé en résolvant les équations qui gouvernent l'écoulement; ces équations seront présentées plus tard dans la section 2.3.1. Les quantités caractérisant chaque fluide comme par exemple la masse volumique ρ et la viscosité μ , varient de manière continue à travers l'interface et peuvent s'écrire de la façon suivante :

$$\rho(\phi) = \rho_1 H_\epsilon(\phi) + \rho_2 (1 - H_\epsilon(\phi)), \quad (2.3)$$

$$\mu(\phi) = \mu_1 H_\epsilon(\phi) + \mu_2 (1 - H_\epsilon(\phi)), \quad (2.4)$$

avec $\rho_1, \rho_2, \mu_1, \mu_2$ étant respectivement les masses volumiques et viscosités des fluides 1 et 2. $H_\epsilon(\phi)$ est une fonction de Heaviside lissée continue à travers l'interface comme le montre la figure 2.1, construite à partir de ϕ et est de la forme :

$$H_\epsilon(\phi) = \begin{cases} 0 & \text{si } \phi < -\epsilon, \\ \frac{1}{2} \left(1 + \frac{\phi}{\epsilon} + \frac{1}{\pi} \sin \left(\frac{\pi\phi}{\epsilon} \right) \right) & \text{si } |\phi| \leq \epsilon, \\ 1 & \text{si } \phi > \epsilon. \end{cases} \quad (2.5)$$

La fonction level-set étant définie partout dans le domaine, les quantités caractérisant chaque fluide qui sont construites à partir de celle-ci sont donc définies dans tout le domaine. Les propriétés de chaque fluide sont alors connues partout. Dans les simulations il faut que ϕ soit une fonction distance, donc il faut que la condition $|\nabla\phi| = 1$ soit satisfaite. Mais si la fonction level-set est simplement advectée par le fluide, cette condition n'est pas vérifiée. Pour avoir $|\nabla\phi| = 1$, une étape importante dans les simulations est donc de réinitialiser la fonction level-set en résolvant l'équation suivante à chaque pas de temps [56] :

$$\frac{\partial\phi}{\partial\tau} + \text{sgn}(\phi_0)(|\nabla\phi| - 1) = 0, \quad (2.6)$$

avec ϕ_0 la fonction level-set non réinitialisée et τ un pseudo-temps. Cette réinitialisation permet de déterminer le vecteur normal à l'interface \mathbf{n} (figure 2.1), qui est défini de la façon suivante :

$$\mathbf{n} = \frac{\nabla\phi}{|\nabla\phi|}. \quad (2.7)$$

Si cette étape était ignorée, alors les quantités telles que par exemple $\rho(\phi)$, $\mu(\phi)$ seraient mal évaluées et seraient donc fausses.

Cette formulation permet donc de garder ϕ définie comme une fonction distance, mais en contrepartie des problèmes de conservation de la masse sont observés, car la réinitialisation peut causer un mouvement des interfaces si des précautions ne sont pas prises concernant le choix de la discrétisation numérique (e.g., [55]) (voir section 4.5 de [40] pour plus de discussions). Bien que « réinitialiser la fonction level-set » pourrait être réalisé en vérifiant à chaque point de la grille quelle est la distance qui les sépare de l'interface, cela se révélerait être très coûteux d'un point de vue numérique. C'est pour cela qu'il est beaucoup plus efficace d'utiliser l'équation (2.6). Plus de détails sur la méthode level-set sont disponibles dans les références [46, 57, 58].

2.3 Formulation du problème et résolution numérique

2.3.1 La dynamique de l'écoulement

L'écoulement étudié au sein de la mousse est un écoulement diphasique, puisqu'il comporte deux fluides : le liquide situé dans les films et le gaz situé dans les bulles. Nous supposons l'écoulement incompressible et régi par l'équation de Navier-Stokes :

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (2.8)$$

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma}, \quad (2.9)$$

où $\boldsymbol{\sigma}$ est le tenseur des contraintes qui s'écrit pour un fluide newtonien et incompressible : $\boldsymbol{\sigma} = -p\mathbf{I} + \mu(\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T)$. L'équation de Navier-Stokes s'écrit alors :

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = -\nabla p + \nabla \cdot \left(\mu(\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T) \right). \quad (2.10)$$

Une partie des conditions aux limites est donnée par le saut de contrainte à l'interface :

$$[\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}] = -\gamma C \mathbf{n} - \nabla_s \gamma. \quad (2.11)$$

Ici, $[X] = X_{\text{liquide}} - X_{\text{gaz}}$ désigne le saut à l'interface, \mathbf{n} est le vecteur normal sortant à l'interface orienté du gaz vers le liquide (cf. figure 2.1), $C = -\nabla \cdot \mathbf{n}$ est la courbure de l'interface et $\nabla_s = \mathbf{I}_s \cdot \nabla = (\mathbf{I} - \mathbf{n} \otimes \mathbf{n}) \cdot \nabla$ est l'opérateur gradient de surface, avec \mathbf{I}_s qui est la matrice identité projetée sur l'interface. ρ et μ sont la masse volumique et la viscosité du fluide, qui changent suivant la phase (liquide ou gazeuse). $[\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}]$ est le saut de contrainte à travers l'interface, appelé aussi force interfaciale \mathbf{F} , et qui représente les effets de tension de surface. Nous reconnaissons dans l'équation (2.11) le terme de Laplace $-\gamma C \mathbf{n}$, qui représente le saut de contrainte normale (pression en l'absence d'écoulement) lorsqu'une interface courbée est traversée et le terme de Marangoni $-\nabla_s \gamma$ qui décrit les effets de gradients de tension de surface.

2.3.2 Physico-chimie du modèle : la dynamique des tensioactifs

Nous savons que dans une mousse la dynamique de l'écoulement est couplée à celle du transport des tensioactifs. En effet, ces molécules sont solubles dans la phase liquide, ce qui amène à un échange entre le volume et l'interface caractérisé par les phénomènes d'adsorption et de désorption. Il existe donc deux équations décrivant la dynamique des tensioactifs dans le liquide et à l'interface. La première est l'équation de transport des tensioactifs dans la phase liquide, qui décrit l'advection par l'écoulement et la diffusion [33] :

$$\frac{\partial F}{\partial t} + \nabla \cdot (F \mathbf{u}) = D_F \nabla^2 F, \quad (2.12)$$

où F est la concentration en tensioactifs dans le liquide et D_F est le coefficient de diffusion dans le liquide. La seconde équation décrit l'advection-diffusion des tensioactifs à la surface [59] :

$$\frac{df}{dt} - \mathbf{u} \cdot \nabla_s f + f(\mathbf{u} \cdot \mathbf{n})(\nabla_s \cdot \mathbf{n}) = -\nabla_s \cdot (f \mathbf{u}_s) + D_f \nabla_s^2 f, \quad (2.13)$$

où f est la concentration surfacique en tensioactifs à l'interface, D_f est le coefficient de diffusion à l'interface, d/dt est la dérivée matérielle à l'interface (et en supposant valide l'équation (2.16)). Le terme source j décrit l'adsorption et la désorption des tensioactifs [33] :

$$j(f, F) = r_a F_s (f_\infty - f) - r_d f, \quad (2.14)$$

où r_a et r_d sont les coefficients d'adsorption et de désorption, f_∞ est la concentration maximale de tensioactifs à l'interface, et F_s est la concentration de tensioactifs dans le volume qui est proche de l'interface. La tension de surface dépend de la concentration en tensioactifs à l'interface. Une équation d'état simple est celle de *Langmuir* présentée au chapitre 1 et s'écrit [33] :

$$\gamma(f) = \gamma_0 \left[1 + \frac{RTf_\infty}{\gamma_0} \ln \left(1 - \frac{f}{f_\infty} \right) \right], \quad (2.15)$$

avec R et T qui sont respectivement la constante des gaz parfaits et la température. γ_0 est la tension de surface d'une interface sans tensioactifs et f_∞ est la concentration de saturation en tensioactifs à l'interface.

Il reste à préciser les conditions aux limites pour les concentrations en tensioactifs. À l'interface liquide-gaz, nous avons [60] :

$$D_F \nabla F \cdot \mathbf{n} = -j, \quad (2.16)$$

qui représente le flux de tensioactifs allant du volume vers l'interface. Pour la quantité de tensioactifs dans le volume, nous avons dans le liquide et aux plaques la condition suivante :

$$\mathbf{n}_{pl} \cdot \nabla F = 0. \quad (2.17)$$

Dans ce cas il y a absence de flux de F aux plaques, dans la direction normale à celles-ci. De même, pour la concentration interfaciale de tensioactifs f , au niveau des contacts de l'interface avec les plaques (ligne triple), la condition est :

$$\mathbf{t} \cdot \nabla f = 0, \quad (2.18)$$

avec \mathbf{t} qui est le vecteur tangentiel à l'interface liquide/gaz (figure 2.2). Cette relation traduit une absence de flux de f dans la direction tangentielle à l'interface.

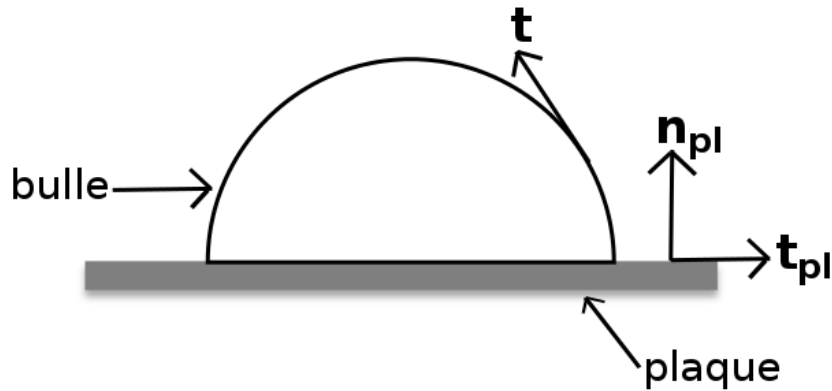


FIGURE 2.2 – Vecteur tangentiel (\mathbf{t}) en un point quelconque de l'interface, vecteurs normal (\mathbf{n}_{pl}) et tangentiel (\mathbf{t}_{pl}) à la plaque.

2.3.3 Viscosité de surface

La viscosité de surface est décrite par le tenseur des contraintes visqueuses interfaciales $\boldsymbol{\sigma}_s$. Pour la dynamique d'une interface fluide newtonienne, c'est à dire pour une variation linéaire de la contrainte visqueuse interfaciale avec le taux de déformation, $\boldsymbol{\sigma}_s$ est donné par le tenseur de Boussinesq-Scriven [27, 61] :

$$\boldsymbol{\sigma}_{bs} = (K^s - \mu^s)(\text{tr} \mathbf{D}_s) \mathbf{I}_s + 2\mu^s \mathbf{D}_s, \quad (2.19)$$

où K^s est la viscosité dilatationnelle de surface, μ^s la viscosité de cisaillement, et \mathbf{D}_s est le tenseur taux de déformation interfacial, qui est lié à la vitesse interfaciale \mathbf{u}_s par :

$$\mathbf{D}_s = \frac{1}{2} \left[(\nabla_s \mathbf{u}_s) \cdot \mathbf{I}_s + \mathbf{I}_s \cdot (\nabla_s \mathbf{u}_s)^T \right]. \quad (2.20)$$

À 2D, le tenseur de Boussinesq-Scriven se simplifie en $\boldsymbol{\sigma}_{bs} = (K^s + \mu^s)(\nabla_s \cdot \mathbf{u}) \mathbf{I}_s$, si bien que la force interfaciale $\mathbf{F} = \nabla \cdot (\gamma \mathbf{I}_s + \boldsymbol{\sigma}_{bs})$ a pour composantes [62] :

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{F} = -C\gamma - C\mu_{tot} \nabla_s \cdot \mathbf{u}, \quad (2.21)$$

$$\mathbf{t} \cdot \mathbf{F} = -\mathbf{t} \cdot \nabla_s \gamma - \mathbf{t} \cdot \nabla_s [\mu_{tot} (\nabla_s \cdot \mathbf{u})]. \quad (2.22)$$

où \mathbf{t} est le vecteur unitaire tangent à l'interface et $\mu_{tot} = (K^s + \mu^s)$ est la viscosité de surface totale. Avec les termes de viscosité de surface variable, la force interfaciale pour des écoulements en 2D peut se mettre sous la forme suivante :

$$\mathbf{F} = -\gamma_{\text{eff}} C \mathbf{n} - \nabla_s \gamma_{\text{eff}}, \quad (2.23)$$

avec $\gamma_{\text{eff}} = \gamma + \mu_{tot} (\nabla_s \cdot \mathbf{u})$. Nous retrouvons l'équation (2.11), mais avec γ_{eff} au lieu de γ . Dans ce travail de thèse, nous avons considéré uniquement le cas où μ_{tot} est constant. La force interfaciale \mathbf{F} peut alors s'écrire sous la forme suivante :

$$\mathbf{F} = -\gamma_{\text{eff}} C \mathbf{n} - \nabla_s \gamma - \mu_{tot} \nabla_s (\nabla_s \cdot \mathbf{u}). \quad (2.24)$$

2.4 Les équations sous forme distribuée et adimensionnée

2.4.1 Nombres sans dimension dans la simulation

Ici nous faisons une liste des nombres sans dimension intervenant dans la simulation numérique, et qui sont :

- Le nombre de Reynolds : $Re \equiv \frac{\rho_l H U}{\mu_l}$. Il compare les effets non linéaires en vitesse (effets inertiels) et les effets visqueux ; H est la longueur caractéristique du système et U est la vitesse caractéristique de l'écoulement, ρ_l est la masse volumique du liquide, et μ_l sa viscosité.

2.4. LES ÉQUATIONS SOUS FORME DISTRIBUÉE ET ADIMENSIONNÉE 37

- Le nombre capillaire : $Ca_0 \equiv \frac{\mu_l U}{\gamma_0}$. C'est le rapport des effets visqueux et des effets de tension de surface, γ_0 étant la tension de surface en l'absence de tensioactifs. Nous pouvons en fait définir deux nombres capillaires : Ca_0 et Ca_{eq} , $Ca_{eq} = \mu_l U / \gamma_{eq}$ correspondant à une situation d'équilibre du système, que ce soit avec tensioactifs ($\gamma_{eq} = \gamma(f_{eq})$) ou sans ($\gamma_{eq} = \gamma_0$).
- Le nombre de Biot : $Bi \equiv \frac{r_d H}{U}$. Il représente la compétition entre l'échange de tensioactifs et la dynamique de déformation des interfaces; r_d est le coefficient de désorption.
- Le nombre de Péclet dans le liquide : $Pe_F \equiv \frac{U H}{D_F}$. Il compare les effets d'advection et les effets de diffusion dans le volume; D_F est le coefficient de diffusion dans le liquide.
- Le nombre de Péclet à l'interface : $Pe_f \equiv \frac{U H}{D_f}$. Il compare les effets d'advection et les effets de diffusion en surface; D_f est le coefficient de diffusion à l'interface.
- Le nombre de Boussinesq : $Bo = \frac{\mu_{tot}}{\mu_l H}$. Il compare à 2D les effets de viscosité de surface aux effets de viscosité en volume; μ_{tot} est la viscosité de surface totale, qui est la somme du coefficient dilatationnel de surface et du coefficient de viscosité de cisaillement.
- Le nombre d'élasticité : $\beta = \frac{R T f_\infty}{\gamma_0}$ qui mesure la sensibilité de la tension de surface due à la concentration des tensioactifs à l'interface. Plus β est grand et plus la déformation est importante.
- $\chi = \frac{f_e}{f_\infty}$ est le rapport entre la concentration d'équilibre des tensioactifs au niveau de l'interface, et la concentration en tensioactifs à l'interface saturée.
- La profondeur d'adsorption : $h = \frac{f_e}{H F_e}$ qui compare les quantités de tensioactifs en surface et dans le liquide dans un volume de profondeur H . F_e est la concentration d'équilibre des tensioactifs dans le liquide.
- $\frac{\rho_l}{\rho_g}$ et $\frac{\mu_l}{\mu_g}$ sont respectivement les rapports des masses volumiques et des viscosités, dans le liquide et dans le gaz.

Ces nombres vont donc nous permettre d'introduire les équations sous forme adimensionnée. Avant de les présenter, nous présentons leur forme distribuée.

2.4.2 Forme distribuée des équations

Cette forme va permettre la résolution des équations dans tout le domaine étudié, ce qui est plus simple pour l'implémentation numérique. Ceci peut être réalisé en introduisant $\delta_\Gamma = |\nabla H_\epsilon|$ qui représente la fonction de Dirac à une dimension à l'interface liquide/gaz, avec H_ϵ qui est la fonction de Heaviside lissée définie précédemment par l'équation (2.5). Par exemple, au lieu de résoudre l'équation pour F dans le liquide, avec δ_Γ elle peut être résolue dans tout le domaine d'étude représenté par les interfaces, et les phases liquides et gazeuses. F est ainsi défini partout dans le domaine, aussi dans le gaz, comme la quantité en tensioactifs par unité de volume de liquide. De même, f représente en réalité la quantité de tensioactifs par unité de surface de l'interface, même aux points loin des interfaces. Le même raisonnement peut être appliqué pour l'équation de Navier-Stokes. L'équation de Navier-Stokes pour un fluide incompressible s'écrit alors :

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = -\nabla p + \nabla \cdot \left(\mu (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T) \right) + \gamma C \mathbf{n} \delta_\Gamma + \nabla_s(\gamma) \delta_\Gamma, \quad (2.25)$$

\mathbf{n} est défini ici comme $\nabla \phi / |\nabla \phi|$. Les conditions aux limites (2.11) sont incluses dans (2.25) et représentent le terme source de l'équation de quantité de mouvement. Ce terme source qui représente le terme capillaire a été généralisé ici en prenant la divergence du tenseur des contraintes interfaciales $\mathbf{T}_s = \gamma \delta_\Gamma \mathbf{I}_s$. En effet $\nabla \cdot \mathbf{T}_s = \gamma C \delta_\Gamma \mathbf{n} + \nabla_s(\gamma) \delta_\Gamma = -\delta_\Gamma [\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}]$. Ensuite si f est résolu dans tout le domaine et pas seulement à l'interface, l'équation d'évolution correspondante s'écrit, dans la forme de distribution, de la façon suivante [33] :

$$\frac{\partial}{\partial t}(f \delta_\Gamma) + \nabla \cdot (f \delta_\Gamma \mathbf{u}) = D_f \nabla \cdot (\delta_\Gamma \nabla f) + \delta_\Gamma j. \quad (2.26)$$

Enfin, si F est aussi résolu dans tout le domaine, l'équation de transport (2.12) pour F s'écrit [33] :

$$\frac{\partial}{\partial t}(H_\epsilon F) + \nabla \cdot (H_\epsilon F \mathbf{u}) = D_F \nabla \cdot (H_\epsilon \nabla F) - \delta_\Gamma j, \quad (2.27)$$

avec les conditions aux limites à l'interface qui correspondent au terme source (équation (2.14)) présentes directement dans l'équation. Au niveau des plaques, les conditions de flux des tensioactifs sont les mêmes que celles définies précédemment à la section 2.3.2. Pour la force interfaciale \mathbf{F} avec les termes de viscosité de surface, son expression sous forme distribuée se résume à l'équation (2.23) en présence de la fonction δ_Γ .

2.4.3 Forme adimensionnée des équations

Les échelles de longueur et de temps pour l'adimensionnement sont données par H et H/U . L'équation adimensionnée de la fonction level-set peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\frac{\partial \phi}{\partial \tilde{t}} + \tilde{\nabla} \cdot (\phi \tilde{\mathbf{u}}) = 0. \quad (2.28)$$

2.4. LES ÉQUATIONS SOUS FORME DISTRIBUÉE ET ADIMENSIONNÉE 39

Concernant l'écoulement, l'équation de Navier-Stokes pour un fluide incompressible sous forme adimensionnée et distribuée s'écrit $\tilde{\nabla} \cdot \tilde{\mathbf{u}} = 0$ et

$$\begin{aligned} \tilde{\rho} \left(\frac{\partial \tilde{\mathbf{u}}}{\partial \tilde{t}} + (\tilde{\mathbf{u}} \cdot \tilde{\nabla}) \tilde{\mathbf{u}} \right) &= -\tilde{\nabla} \tilde{p} + \frac{1}{Re} \tilde{\nabla} \cdot \left(\tilde{\mu} (\tilde{\nabla} \tilde{\mathbf{u}} + (\tilde{\nabla} \tilde{\mathbf{u}})^T) \right) \\ &+ \frac{1}{Ca_0 Re} \left[\tilde{\gamma} \tilde{C} \tilde{\nabla} H_\epsilon + \tilde{\nabla}_s (\tilde{\gamma}) \tilde{\delta}_\Gamma \right], \end{aligned} \quad (2.29)$$

où $\tilde{\nabla} H_\epsilon = \mathbf{n} \tilde{\delta}_\Gamma$. La pression adimensionnée \tilde{p} est liée à la pression p , par la relation : $\tilde{p} = \frac{p}{\rho_l U^2}$. La masse volumique $\tilde{\rho}$ et la viscosité $\tilde{\mu}$ varient de façon continue à travers l'interface. Elles s'expriment à l'aide de la fonction de Heaviside lissée de la manière suivante :

$$\tilde{\rho} = H_\epsilon + \rho_g (1 - H_\epsilon), \quad (2.30)$$

$$\tilde{\mu} = H_\epsilon + \mu_g (1 - H_\epsilon), \quad (2.31)$$

avec ρ_g et μ_g étant respectivement la masse volumique et la viscosité dans le gaz. L'équation des tensioactifs à l'interface sous forme adimensionnée est [33] :

$$\frac{\partial}{\partial \tilde{t}} (\tilde{f} \tilde{\delta}_\Gamma) + \tilde{\nabla} \cdot (\tilde{f} \tilde{\delta}_\Gamma \tilde{\mathbf{u}}) = \frac{1}{Pe_f} \tilde{\nabla} \cdot (\tilde{\delta}_\Gamma \tilde{\nabla} \tilde{f}) + \tilde{\delta}_\Gamma \tilde{j}, \quad (2.32)$$

où le terme source adimensionné \tilde{j} s'écrit [33] :

$$\tilde{j} = Bi \left[\frac{\chi}{1 - \chi} \tilde{F}_s \left(\frac{1}{\chi} - \tilde{f} \right) - \tilde{f} \right]. \quad (2.33)$$

Par ailleurs, l'équation de transport des tensioactifs dans le liquide sous forme sans dimension est [33] :

$$\frac{\partial}{\partial \tilde{t}} (H_\epsilon \tilde{F}) + \tilde{\nabla} \cdot (H_\epsilon \tilde{F} \tilde{\mathbf{u}}) = \frac{1}{Pe_F} \tilde{\nabla} \cdot (H_\epsilon \tilde{\nabla} \tilde{F}) - h \tilde{\delta}_\Gamma \tilde{j}. \quad (2.34)$$

Ensuite, la tension de surface adimensionnée $\tilde{\gamma} \equiv \gamma/\gamma_0$ (γ_0 est la tension de surface dans le cas sans tensioactifs) s'exprime en fonction de la concentration interfaciale en tensioactifs adimensionnée \tilde{f} selon [33] :

$$\tilde{\gamma}(\tilde{f}) = 1 + \beta \ln(1 - \chi \tilde{f}). \quad (2.35)$$

Enfin, la force interfaciale \mathbf{F} avec les termes de viscosité de surface dans le cas où la viscosité de surface est variable, s'écrit sous forme adimensionnée ainsi :

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{F}} &= \frac{-1}{Ca_0 Re} \tilde{\gamma} \tilde{C} \tilde{\delta}_\Gamma \mathbf{n} - \frac{1}{Ca_0 Re} (\tilde{\nabla}_s \tilde{\gamma}) \tilde{\delta}_\Gamma - \tilde{C} \mu_{tot} (\tilde{\nabla}_s \cdot \tilde{\mathbf{u}}) \tilde{\delta}_\Gamma \mathbf{n} \\ &- \tilde{\nabla}_s \left[\mu_{tot} (\tilde{\nabla}_s \cdot \tilde{\mathbf{u}}) \right] \tilde{\delta}_\Gamma. \end{aligned} \quad (2.36)$$

Les équations qui gouvernent l'écoulement et la dynamique des tensioactifs sont posées. Nous allons donc présenter dans la suite l'implémentation numérique de ces équations. Pour pouvoir alléger la notation des équations implémentées, elles seront présentées sans caractère \sim au dessus des différentes quantités, étant donné que l'implémentation numérique des équations se fait avec des quantités sans dimensions.

2.5 Implémentation numérique des équations

Les équations du modèle, notamment les équations de transport des tensioactifs, ont été implémentées dans un code numérique déjà existant sous le nom de *Two-Phase Level-set* (TPLS). Celui-ci utilise la méthode level-set décrite précédemment, couplée avec les équations de Navier-Stokes pour un fluide incompressible. Ce code numérique modélisait au départ l'écoulement 3D de Poiseuille laminaire de deux phases fluides (deux couches de liquides de masses volumiques et viscosités différentes) dans un canal [63]. La méthode level-set et le modèle de l'écoulement avaient donc déjà été validés. À partir de ce code, le modèle des tensioactifs a été ajouté afin de pouvoir décrire la dynamique de ces molécules dans le système étudié.

Afin de pouvoir implémenter les équations, la méthode de discrétisation de différences finies a été utilisée. Dans la suite on notera, au niveau de la discrétisation des équations, le temps t_n avec un indice n et la position spatiale (x_i, y_j, z_k) avec les indices i, j et k . Le pas de temps sera noté Δt et le pas d'espace de la grille de calcul (grille avec un maillage régulier) sera noté $\Delta x = \Delta y = \Delta z$ ($\Delta x, \Delta y$ et Δz sont respectivement les pas d'espace dans les directions x, y et z de la grille).

La grille utilisée dans les simulations se nomme MAC (*Marker And Cell*). Ce type de grille (figure 2.3) peut être utilisée dans les simulations de mécanique des fluides incompressible. La grille MAC a la particularité de décomposer le domaine numérique en cellules avec les vitesses définies aux bords de celles-ci. Les quantités scalaires en revanche comme la pression, la viscosité, la concentration en tensioactifs dans le volume, sont définies aux centres des cellules. Dans cette section nous allons présenter la discrétisation des équations utilisées dans ce code numérique, à savoir l'équation d'advection de la fonction level-set (équation (2.2)), les équations de Navier-Stokes, et les équations d'évolution des tensioactifs.

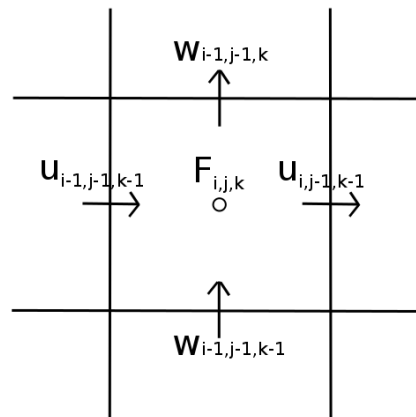


FIGURE 2.3 – Grille de type MAC.

2.5.1 Équation de la fonction level-set

L'équation discrétisée de la fonction level-set s'écrit :

$$\frac{\phi^{n+1} - \phi^n}{\Delta t} = -\nabla \cdot (\phi \mathbf{u})^{n+\frac{1}{2}}. \quad (2.37)$$

Le terme convectif de cette équation ($\nabla \cdot (\phi \mathbf{u})^{n+\frac{1}{2}}$) est implémenté en utilisant un schéma d'Adams-Bashforth d'ordre 3, qui détermine la valeur de ce terme au temps $n+\frac{1}{2}$ connaissant ses valeurs aux temps n , $n-1$ et $n-2$. L'équation (2.37) se réécrit donc ainsi :

$$\frac{\phi^{n+1} - \phi^n}{\Delta t} = -\left(\frac{23}{12} \nabla \cdot (\phi \mathbf{u})^n - \frac{4}{3} \nabla \cdot (\phi \mathbf{u})^{n-1} + \frac{5}{12} \nabla \cdot (\phi \mathbf{u})^{n-2}\right). \quad (2.38)$$

Afin de pouvoir implémenter les dérivées spatiales (discrétisations spatiales) de ϕ , un schéma d'ordre 5 appelé Weighted-Essentially-Non-Oscillatory (WENO) est utilisé dans le code. Pour plus d'informations concernant ce type de schéma numérique, voir [55, 64]. La réinitialisation de la fonction level-set (équation (2.6)) dans le code numérique a été réalisée en suivant la technique de réinitialisation de Sussman et Fatemi [65], ce qui est une amélioration de la méthode utilisée dans le code TPLS sans tensioactifs, présentée dans [63]. Pour les résultats de tests basiques, voir [55].

2.5.2 Équations de Navier-Stokes

L'implémentation numérique des équations de Navier-Stokes pour un fluide incompressible est réalisée comme suit :

$$\nabla \cdot \mathbf{u}^{n+1} = 0, \quad (2.39)$$

et

$$\begin{aligned} \frac{\mathbf{u}^{n+1} - \mathbf{u}^n}{\Delta t} = & -(\mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u})^{n+\frac{1}{2}} - \frac{1}{\rho^{n+1}} \nabla p + \frac{1}{\rho^{n+1}} \left[\frac{1}{2} (\mathbf{F}^{n+1} + \mathbf{F}^n) \right] \\ & + \frac{1}{\rho^{n+1} Re} \left[\nabla \cdot (\mu \nabla \mathbf{u}) + \nabla \cdot (\mu (\nabla \mathbf{u})^T) \right]^{n+\frac{1}{2}}. \end{aligned} \quad (2.40)$$

Le terme convectif de cette équation est aussi implémenté avec un schéma d'Adams-Bashforth d'ordre 3. Les termes visqueux ont été implémentés avec deux schémas : un schéma de Crank-Nicholson (schéma d'ordre 2 en temps et en espace) a été utilisé pour les termes diffusifs ; alors que un schéma d'Adams-Bashforth d'ordre 3 a été utilisé pour les autres termes visqueux. La pression a été implémentée avec la condition d'incompressibilité en utilisant la méthode de projection, avec tout d'abord un solveur visqueux semi-implicite afin d'obtenir une vitesse intermédiaire ; puis une équation de Poisson pour la pression a été résolue afin que la vitesse \mathbf{u}^{n+1} vérifie la relation (2.39). Pour plus d'informations concernant ces implémentations, le lecteur est invité à consulter les travaux de Ó Náraigh *et al.* (2014) [63]. Enfin, la force interfaciale \mathbf{F} a été discrétisée avec un schéma classique en différences finies centré, et a été implémentée au même endroit que les vitesses au niveau de la grille, afin que le calcul numérique soit plus précis pour cette quantité.

2.5.3 Équations de transport des tensioactifs

Tout d'abord vient l'implémentation de l'équation de transport des tensioactifs à l'interface, qui a été discrétisée comme suit [33] :

$$\begin{aligned} \frac{(\delta_\Gamma f)^{n+1} - (\delta_\Gamma f)^n}{\Delta t} &= -\nabla \cdot (\mathbf{u} \delta_\Gamma f)^{n+\frac{1}{2}} + \frac{1}{Pe_f} \left[\frac{1}{2} \left(\nabla \cdot (\delta_\Gamma \nabla f)^{n+1} + \nabla \cdot (\delta_\Gamma \nabla f)^n \right) \right] \\ &\quad + \frac{1}{2} \left((\delta_\Gamma j)^{n+1} + (\delta_\Gamma j)^n \right). \end{aligned} \quad (2.41)$$

Le terme convectif est traité de la même manière que l'équation de la fonction level-set. Plus précisément, un schéma d'Adams-Bashforth d'ordre 3 a été utilisé, et pour les dérivées spatiales de la quantité $\delta_\Gamma f$ un schéma de type WENO d'ordre 5 a été employé. Pour le terme diffusif et le terme source, le type de schéma qui a été choisi a été celui de Crank-Nicholson ; le terme $\delta_\Gamma j$ a été discrétisé avec un schéma en différences finis centré. Lorsque (2.41) a été implémentée dans le code, l'expression qui a été utilisée pour δ_Γ a été la suivante : $\delta_\Gamma = |\nabla H_\epsilon| + \alpha$, avec α un paramètre utilisé pour éviter la division par zéro dans le code numérique ($\alpha = 10^{-2}$ dans ce travail). Des tests étudiant l'effet de ce paramètre seront présentés plus tard dans ce travail.

La discrétisation du terme diffusif au temps n en (i, j, k) à été réalisée avec des différences finis centré d'ordre 2 :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot (\delta_\Gamma \nabla f)_{i,j,k}^n &= \frac{1}{2 \Delta x^2} \left[(\delta_{\Gamma_i}^n + \delta_{\Gamma_{i+1}}^n)(f_{i+1}^n - f_i^n) - (\delta_{\Gamma_{i-1}}^n + \delta_{\Gamma_i}^n)(f_i^n - f_{i-1}^n) \right] \\ &\quad + \frac{1}{2 \Delta y^2} \left[(\delta_{\Gamma_j}^n + \delta_{\Gamma_{j+1}}^n)(f_{j+1}^n - f_j^n) - (\delta_{\Gamma_{j-1}}^n + \delta_{\Gamma_j}^n)(f_j^n - f_{j-1}^n) \right] \\ &\quad + \frac{1}{2 \Delta z^2} \left[(\delta_{\Gamma_k}^n + \delta_{\Gamma_{k+1}}^n)(f_{k+1}^n - f_k^n) - (\delta_{\Gamma_{k-1}}^n + \delta_{\Gamma_k}^n)(f_k^n - f_{k-1}^n) \right] \end{aligned} \quad (2.42)$$

La discrétisation de $\delta_\Gamma j$ au temps n , en (i, j, k) est :

$$\begin{aligned} \delta_\Gamma j^n &= \left(\left[\frac{1}{4 \Delta x^2} (H_{\epsilon_{i+1}}^n - H_{\epsilon_{i-1}}^n)^2 + \frac{1}{4 \Delta y^2} (H_{\epsilon_{j+1}}^n - H_{\epsilon_{j-1}}^n)^2 \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \frac{1}{4 \Delta z^2} (H_{\epsilon_{k+1}}^n - H_{\epsilon_{k-1}}^n)^2 \right]^{\frac{1}{2}} + \alpha \right) j^n. \end{aligned} \quad (2.43)$$

Nous pouvons noter que cette équation a été discrétisée par différences finis centré.

Ensuite nous avons la discrétisation de l'équation des tensioactifs dans le volume qui s'écrit [33] :

$$\begin{aligned} \frac{(H_\epsilon F)^{n+1} - (H_\epsilon F)^n}{\Delta t} &= -\nabla \cdot (\mathbf{u} H_\epsilon F)^{n+\frac{1}{2}} \\ &\quad + \frac{1}{Pe_F} \left[\frac{1}{2} \left(\nabla \cdot (H_\epsilon \nabla F)^{n+1} + \nabla \cdot (H_\epsilon \nabla F)^n \right) \right] \\ &\quad - \frac{1}{2} \left((\delta_\Gamma h j)^{n+1} + (\delta_\Gamma h j)^n \right). \end{aligned} \quad (2.44)$$

Les traitements numériques des termes convectif, diffusif et d'échange ont été les mêmes que ceux employés dans l'implémentation de l'équation (2.41). Lorsque (2.44) a été implémentée dans le code numérique, au lieu d'utiliser H_ϵ pour cette équation, il a été utilisé à la place $\sqrt{H_\epsilon^2 + \alpha^2}$ afin de pouvoir éviter la division par zéro. La discrétisation du terme diffusif de cette équation au temps n , en (i,j,k) est donc :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot (H_\epsilon \nabla F)_{i,j,k}^n &= \frac{1}{2 \Delta x^2} \left[(H_{\epsilon_i}^n + H_{\epsilon_{i+1}}^n)(F_{i+1}^n - F_i^n) - (H_{\epsilon_{i-1}}^n + H_{\epsilon_i}^n)(F_i^n - F_{i-1}^n) \right] \\ &+ \frac{1}{2 \Delta y^2} \left[(H_{\epsilon_j}^n + H_{\epsilon_{j+1}}^n)(F_{j+1}^n - F_j^n) - (H_{\epsilon_{j-1}}^n + H_{\epsilon_j}^n)(F_j^n - F_{j-1}^n) \right] \\ &+ \frac{1}{2 \Delta z^2} \left[(H_{\epsilon_k}^n + H_{\epsilon_{k+1}}^n)(F_{k+1}^n - F_k^n) \right. \\ &\left. - (H_{\epsilon_{k-1}}^n + H_{\epsilon_k}^n)(F_k^n - F_{k-1}^n) \right]. \end{aligned} \quad (2.45)$$

C'est une discrétisation par différences finis centré d'ordre 2, comme pour l'équation (2.42). La discrétisation du terme $\delta_\Gamma h j$ au temps n , en (i,j,k) est :

$$\begin{aligned} \delta_\Gamma^n h j^n &= \left[\frac{1}{4 \Delta x^2} (H_{\epsilon_{i+1}}^n - H_{\epsilon_{i-1}}^n)^2 + \frac{1}{4 \Delta y^2} (H_{\epsilon_{j+1}}^n - H_{\epsilon_{j-1}}^n)^2 \right. \\ &\left. + \frac{1}{4 \Delta z^2} (H_{\epsilon_{k+1}}^n - H_{\epsilon_{k-1}}^n)^2 \right]^{\frac{1}{2}} h j^n. \end{aligned} \quad (2.46)$$

L'équation (2.46) à été discrétisée en utilisant des différences finis centré.

Dans ce chapitre, nous avons présenté la méthode numérique qui permet de décrire la déformation des interfaces au cours du temps ; nous avons donné les équations du modèle, qui décrivent la dynamique de l'écoulement couplée avec le transfert des molécules tensioactives entre le volume et l'interface. La méthode numérique et le modèle sont donc posés. Avant d'appliquer notre méthode au problème de T1, nous avons validé notre implémentation des tensioactifs, c'est l'objet du prochain chapitre.

Tests du code numérique avec tensioactifs

Sommaire

3.1	Goutte immobile	46
3.1.1	Stabilité du champ de vitesse	46
3.1.2	Concentrations en tensioactifs	48
3.2	Goutte cisailée	50
3.2.1	Effet des paramètres numériques	50
3.2.2	Comparaison avec les résultats de Teigen et al. [33]	54
3.3	Ajustement sur le système étudié : bulles cisillées . . .	57
3.3.1	Configuration étudiée	57
3.3.2	Conservation de la quantité de tensioactifs : conditions de flux de tensioactifs aux plaques	58
3.3.3	Déplacement de la ligne de contact	61

Le code numérique avec le modèle des tensioactifs utilisé dans ce travail de thèse est une extension d'un code déjà existant sans tensioactifs, et qui avait fait l'objet de plusieurs validations numériques dans des travaux antérieurs [55,63,66]. Après avoir ajouté au code ce qui concerne les tensioactifs, nous avons procédé à des tests pour nous assurer que l'implémentation était correcte, et aussi pour s'assurer que les résultats produits étaient justes et cohérents. Tout d'abord, nous avons testé la stabilité de notre code numérique en étudiant le cas d'une goutte en l'absence d'écoulement. Ensuite, nous nous sommes intéressés au cas d'une goutte cisillée, et nous avons pu quantitativement comparer nos résultats à ceux existant dans la littérature [33]. Enfin, pour notre système d'étude (un amas de quatres bulles

cisaillées), nous avons modifié certaines des conditions aux limites appliquées au niveau des bords pour satisfaire les conditions de conservation dans le système.

Ces différentes validations et améliorations du code numérique nous permettent d'avoir confiance dans les résultats présentés dans le chapitre suivant. Notons que tous ces tests ont été effectués sans prendre en compte les effets de viscosité de surface introduits précédemment. Le nombre de Boussinesq est donc fixé à zéro.

3.1 Goutte immobile

Des premiers tests ont été réalisés sur une goutte immobile, en l'absence d'écoulement, le but étant de s'assurer de la stabilité du code numérique dans ce cas de figure très simple. Nous considérons une goutte de rayon $R=0.25$ dans une boîte de longueur 3 et de hauteur unité. Les valeurs des nombres sans dimension sont $Re = 8$, $Ca = 1$, $Bi = 0.2$, $Pe_F = 8$, $Pe_f = 80$, $\beta = 0.3$, $\chi = 0.5$, $h = 0.125$. Les viscosités et les masses volumiques du fluide dans la goutte et du fluide environnant sont les mêmes. Le champ de vitesse initial est nul ($\mathbf{u}(t = 0) = 0$), et l'on s'attend donc à ce que la goutte reste immobile. En réalité un écoulement est créé à cause de l'erreur numérique. Ces courants parasites (*spurious currents*) ont été étudiés en l'absence de tensioactifs [55, 67, 68].

Nous avons voulu tester le rôle des tensioactifs sur le développement de ces courants parasites. Pour cela, nous avons considéré deux situations. Dans le premier cas, correspondant au formalisme décrit dans le chapitre 2, la tension interfaciale γ dépend de la concentration locale en tensioactifs f . Les tensioactifs seront désignés alors comme actifs. Dans le second cas, nous avons fixé une tension de surface constante, qui ne dépend plus de f . Les tensioactifs sont alors désignés comme passifs. Pour ces deux configurations, nous allons tout d'abord présenter les résultats liés au champ de vitesse, et ensuite ceux montrant les champs de concentration en tensioactifs.

3.1.1 Stabilité du champ de vitesse

Le champ de vitesse, dans les cas où les tensioactifs sont actifs et passifs, est visible sur la figure 3.1. On constate que, dans les deux cas, un léger écoulement est créé, en particulier proche de l'interface. Pour être plus quantitatifs, nous représentons maintenant l'évolution de la valeur maximale des composantes du champ de vitesse (figure 3.2). Si un léger écoulement apparaît, il cesse d'augmenter très rapidement après le début de la simulation et reste très faible puisque la valeur maximale des composantes sature autour de 0.0002, aussi bien dans le cas actif que passif. En résumé des courants parasites sont visibles, mais ils restent cependant négligeables devant 1.

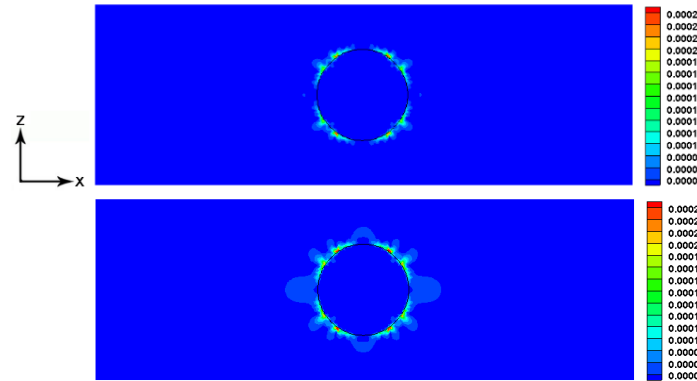


FIGURE 3.1 – Norme du champ de vitesse à l'instant final $t_{sim} = 2$ pour des tensioactifs actifs (haut) et passifs (bas).

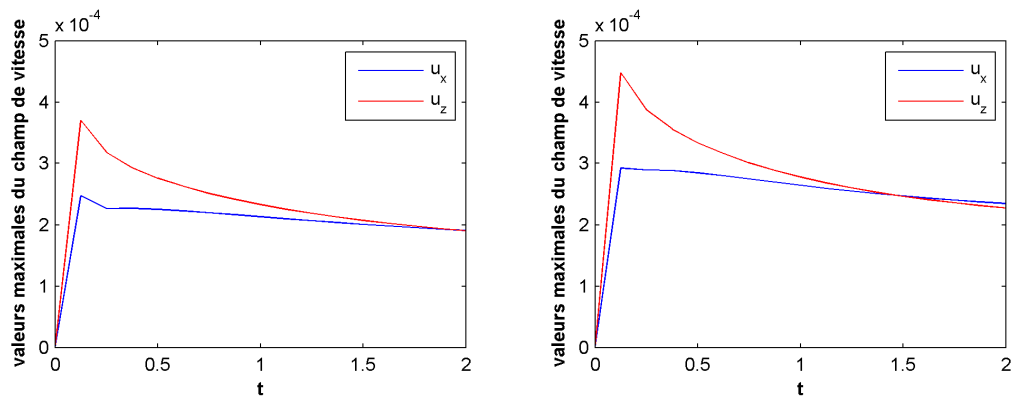


FIGURE 3.2 – Évolution temporelle de la valeur maximale de u_x et u_z . Les tensioactifs sont actifs (gauche) ou passifs (droite).

3.1.2 Concentrations en tensioactifs

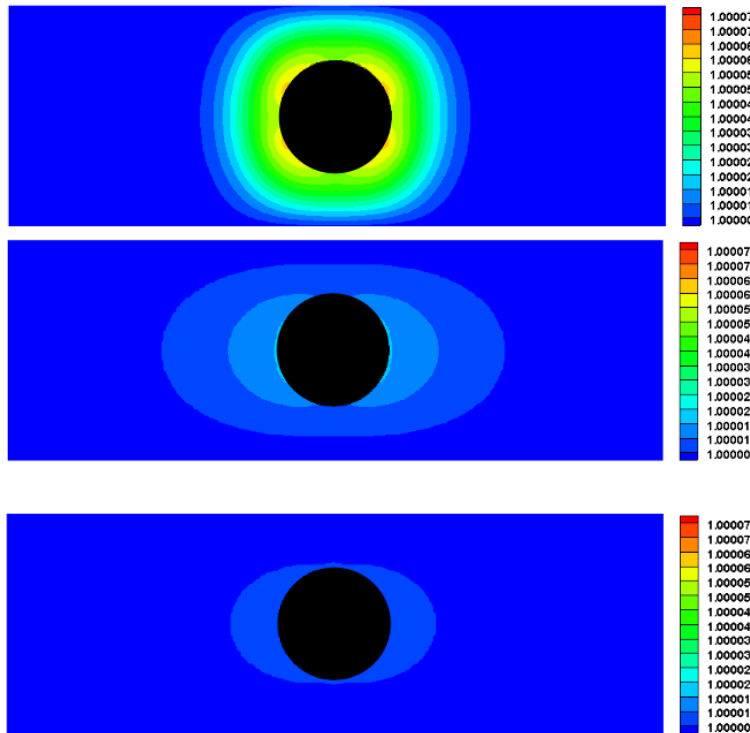


FIGURE 3.3 – Concentration en tensioactifs dans le volume à différents instants. De haut en bas : $t_{sim} = 0.125$, $t_{sim} = 1$, $t_{sim} = 2$.

Nous avons également étudié les concentrations en tensioactifs dans le volume et à l'interface, seulement pour le cas où les tensioactifs sont actifs. Le champ de concentration dans le volume est reporté sur la Figure 3.3, celui en surface sur la Figure 3.4. Ces résultats montrent que les concentrations en tensioactifs sont légèrement supérieures à la valeur 1, qui correspond dans le modèle numérique à la concentration d'équilibre (concentration initiale). Les tensioactifs sont donc pratiquement répartis de façon homogène au cours de la simulation. La Figure 3.5 sur laquelle est reportée la valeur maximale de la concentration en tensioactifs en volume et en surface confirme que les variations de concentration sont très faibles. Nous pouvons remarquer que ces valeurs semblent saturer vers des concentrations limites, l'erreur maximale étant de l'ordre de 10^{-4} . En conclusion, on voit que les courants parasites ne sont pas amplifiés par les tensioactifs lorsqu'ils sont actifs, et l'effet de ces courants est complètement négligeable.

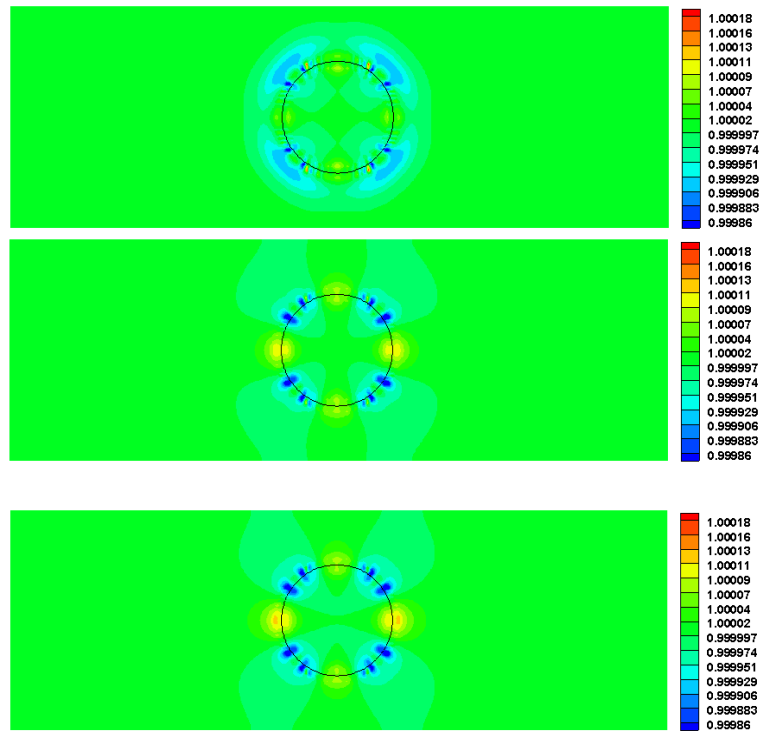


FIGURE 3.4 – Concentration interfaciale en tensioactifs à différents instants. De haut en bas : $t_{sim} = 0.125$, $t_{sim} = 1$, $t_{sim} = 2$.

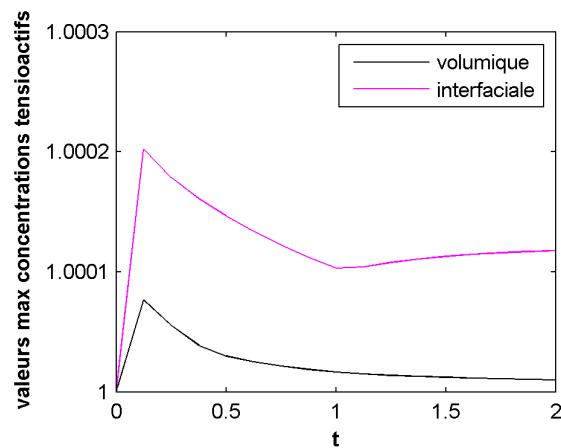


FIGURE 3.5 – Évolution temporelle de la valeur maximale des concentrations en tensioactifs.

3.2 Goutte cisailée

Dans cette partie, nous étudions le cas d'une goutte cisailée entre deux plaques, comme représenté sur la Figure 3.6. Nous allons présenter les résultats des tests que nous avons obtenus avec la méthode level-set, et que nous avons comparé à ceux de la littérature [33].

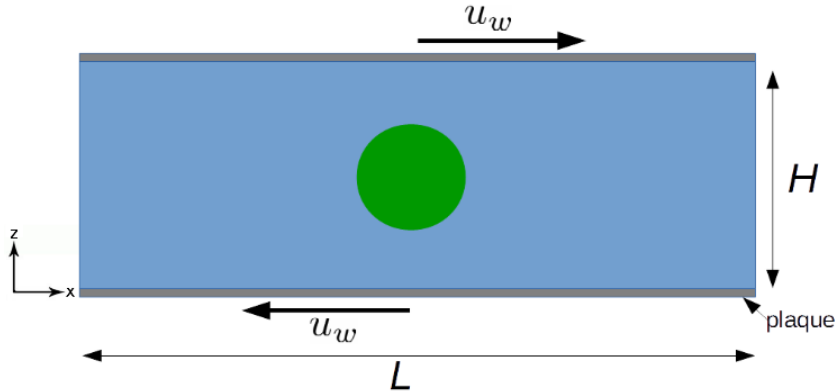


FIGURE 3.6 – Goutte dans un écoulement de cisaillement.

Nous reprenons le système considéré par Teigen et al. [33] : une goutte bidimensionnelle de rayon $R = 1$ dans une boîte de hauteur $H = 4$ et de longueur $L = 12$. Puisque dans notre cas, la hauteur de la boîte est prise comme longueur unité, nous prenons $R = 0.25$ et une longueur $L = 3$. Teigen utilise des paramètres adimensionnés définis de manière légèrement différente des nôtres, nous avons choisi nos paramètres pour que la correspondance soit exacte et pour pouvoir effectuer une comparaison quantitative des résultats obtenus. Le rapport des masses volumiques et des viscosités a été fixé à l'unité. Les autres paramètres de la simulation ont les valeurs suivantes : $Re = 8$, $Ca = 1$, $Pe_F = 8$ et $Pe_f = 80$, $\beta = 0.3$, $\chi = 0.5$, $h = 0.125$. Dans ces simulations, nous imposons aux plaques supérieure et inférieure la concentration volumique ($F = 1$) et un flux nul pour la concentration interfaciale ($\partial_z f = 0$). Le temps de la simulation pour la répartition des tensioactifs est $t_{sim} = 2$ (sauf pour le cas 3D où $t_{sim} = 5$). Nous allons tout d'abord étudier l'effet du maillage et du paramètre α empêchant la divergence numérique (section 2.5), puis nous comparerons nos résultats à ceux de la littérature. Enfin, une simulation dans un cas 3D a été effectuée pour appréhender la stabilité du code dans ce cas.

3.2.1 Effet des paramètres numériques

Étude de sensibilité au maillage

Dans cette section nous allons présenter les résultats obtenus avec la méthode level-set pour des maillages différents, un maillage grossier pour lequel la taille des cellules est $\Delta z = 1/105$, et un maillage raffiné avec une taille deux fois plus petite $\Delta z = 1/210$. Le pas de temps reste fixé à $\Delta t = 0.2 \times 10^{-4}$. Nous étudions deux situations, à faible et grand nombre de Bi .

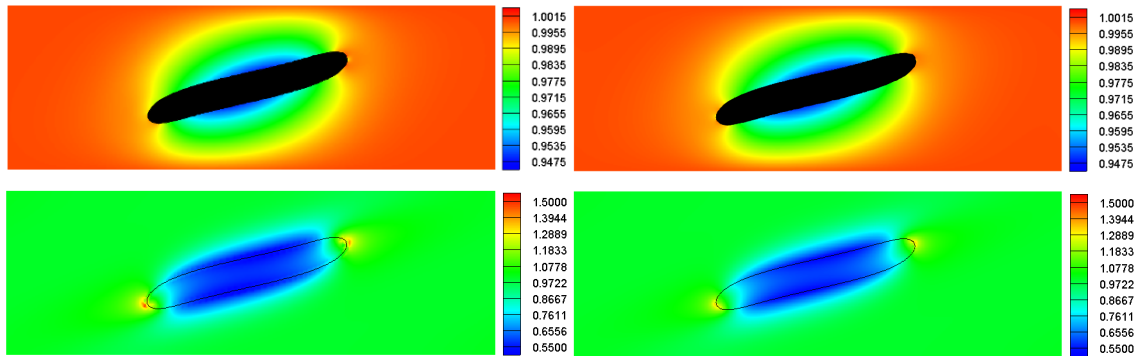


FIGURE 3.7 – Répartition en tensioactifs pour $Bi = 0.2$. De haut en bas : concentration en tensioactifs dans le volume et interfaciale ; de gauche à droite : maillages grossier et raffiné.

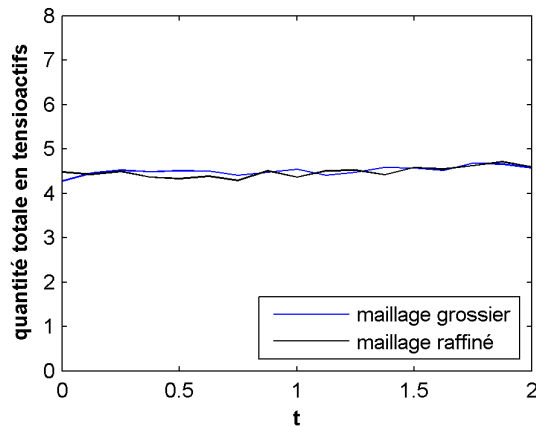


FIGURE 3.8 – Quantité totale en tensioactifs pour $Bi = 0.2$ pour les maillages grossier et raffiné.

Petit Bi : Tout d'abord nous avons changé le maillage pour une faible valeur du nombre de Biot ($Bi = 0.2$). Nous avons obtenu les résultats montrés sur les figures 3.7 et 3.8. Concernant la concentration en tensioactifs dans le liquide (F), nous observons qu'elle est pratiquement inchangée entre les maillages grossier et raffiné. Nous remarquons qu'il y a une faible concentration au niveau des zones étirées, et une concentration plus forte aux extrémités. En comparant ensuite les concentration interfaciales en tensioactifs (f), nous constatons que la différence est petite en faisant varier le maillage. On remarque que le long de l'interface, les molécules tensioactives sont plus concentrées aux extrémités de la goutte qu'au niveau des zones étirées. D'un point de vue quantitatif, nous avons étudié la quantité

totale en tensioactifs (figure 3.8) définie comme

$$\Lambda(t) = \int_{\Omega} (F H_{\epsilon} + f \delta_{\Gamma}) d\Omega, \quad (3.1)$$

et tracée sur la figure 3.8. Nous constatons que les valeurs avec les maillage grossier et maillage raffiné sont proches. En effet, l'erreur entre ces deux cas est de 0.6%, ce qui est rassurant pour cette étude de sensibilité au maillage. Ces figures suggèrent qu'avec le pas d'espace utilisé l'influence du maillage est faible ou négligeable.

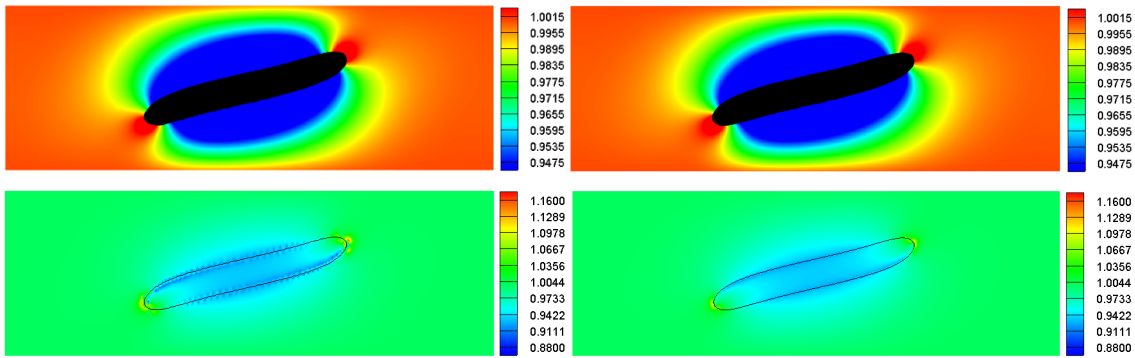


FIGURE 3.9 – Répartition en tensioactifs pour $Bi = 20$. De haut en bas : concentration en tensioactifs dans le volume et interfaciale ; de gauche à droite : maillage grossier et raffiné.

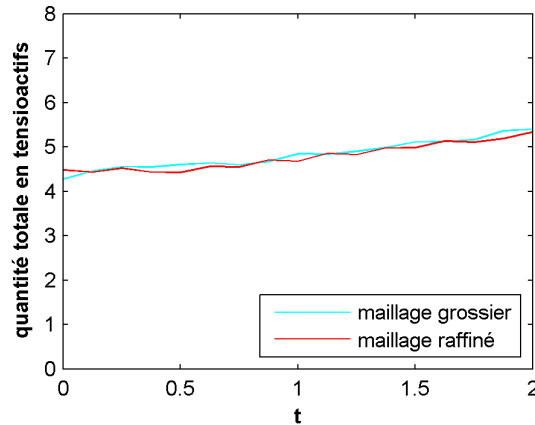


FIGURE 3.10 – Quantité totale en tensioactifs pour $Bi = 20$ pour différents maillages. Maillage grossier : $\Delta z = 1/105$, $\Delta t = 0.2 \times 10^{-4}$; maillage raffiné : $\Delta z = 1/210$, $\Delta t = 0.2 \times 10^{-4}$.

Grand Bi : Nous considérons à présent une valeur élevée du nombre de Biot ($Bi = 20$). Les autres paramètres ont les mêmes valeurs que celles indiquées dans le cas précédent. Les résultats sont présentés dans la figure 3.9. Ici aussi nous constatons que les résultats sont proches lorsque le maillage change, que ce soit pour F ou pour f . Au niveau de la figure 3.9, nous pouvons observer que les tensioactifs sont distribués de la même façon que dans le cas précédent (concentration plus forte aux pointes de la goutte, et concentration plus faible ailleurs). Ici aussi, si nous traçons l'évolution temporelle de la quantité totale en tensioactifs (figure 3.10), nous pouvons remarquer que le cas maillage grossier est proche du cas maillage raffiné (la différence entre les deux cas étant de 1%). Nous pouvons en déduire que, dans ce cas aussi, les résultats sont indépendants du maillage. Enfin, le gain en quantité totale en tensioactifs observé sur la figure 3.10 s'explique par le fait que nous avons imposé la concentration aux parois ($F = 1$) et non pas un flux nul ($\partial_z F = 0$).

Effet du paramètre de non-divergence numérique α

Nous étudions à présent l'influence du paramètre α sur les résultats. Pour rappel, le paramètre numérique α est utilisé dans le code afin d'éviter la division par zéro, donc éviter une divergence et assurer la stabilité numérique. Ce paramètre, introduit dans la section 2.5, apparaît dans $\sqrt{H_\epsilon^2 + \alpha^2}$ qui remplace H_ϵ et dans $\delta_\Gamma = |\nabla H_\epsilon| + \alpha$. Nous avons exploré l'influence de ce paramètre, en considérant $\alpha = 0.1$ et $\alpha = 0.01$, à faibles et grands nombres de Bi . Les résultats sont présentés respectivement sur les Figures 3.11 et 3.12 pour $Bi = 0.2$ et $Bi = 20$.

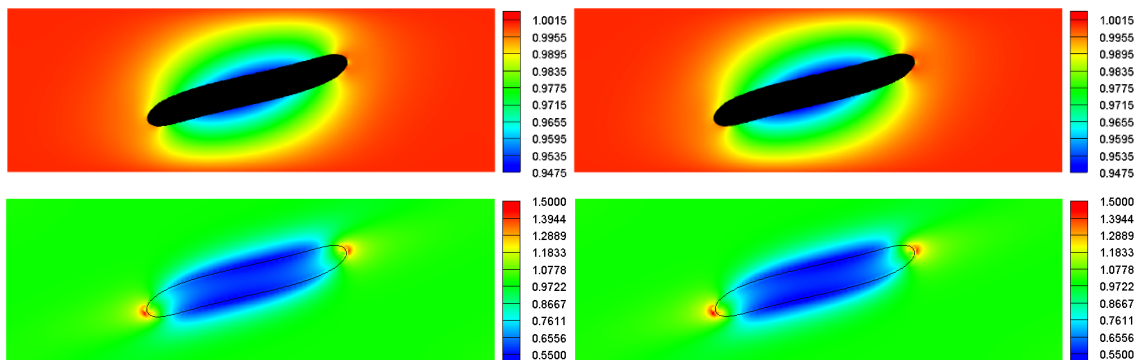


FIGURE 3.11 – Répartition en tensioactifs pour $Bi = 0.2$. De haut en bas : concentration en tensioactifs dans le volume et interfaciale ; de gauche à droite : $\alpha = 0.1$, $\alpha = 0.01$.

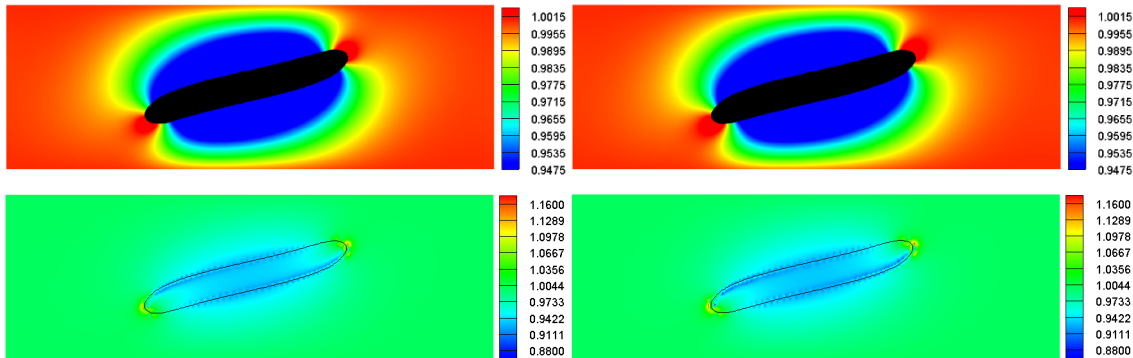


FIGURE 3.12 – Répartition en tensioactifs pour $Bi = 20$. De haut en bas : concentration en tensioactifs dans le volume et interfaciale ; de gauche à droite : $\alpha = 0.1$, $\alpha = 0.01$.

Ces résultats ne sont pas affectés par α , ce qui souligne la pertinence de l’approche proposée.

Ces tests de sensibilité au maillage et au paramètre α nous confortent quant à la fiabilité du code que nous avons implémenté. Afin de pouvoir apporter plus d’arguments en ce sens, nous avons comparé les résultats que nous avons obtenus avec la méthode level-set à ceux de [33] ; c’est ce qui va être présenté par la suite.

3.2.2 Comparaison avec les résultats de Teigen et al. [33]

Nous avons alors comparé nos résultats sur cette goutte cisailée avec ceux de la littérature [33].

Effet du nombre de Biot

Nous avons tout d’abord fait varier le nombre de Biot Bi dans la simulation en gardant constants les autres paramètres. Les résultats obtenus ainsi que ceux de Teigen et al. [33] sont reportés sur la Figure 3.13. Nous pouvons constater que les résultats obtenus avec la méthode level-set sont qualitativement proches de ceux de [33]. En effet, nous pouvons observer le même comportement pour la concentration en tensioactifs dans le volume. Aux endroits où la goutte est étirée, la concentration en tensioactifs à l’interface diminue, ce qui induit un transfert du volume vers l’interface et conduit à une diminution de F à proximité. En revanche, aux extrémités de la goutte, l’interface est compressée, ce qui entraîne une augmentation de la concentration interfaciale en tensioactifs ; le flux de désorption qui en résulte fait que F reste élevé près des pointes de la goutte, comme cela est visible sur la Figure 3.13.

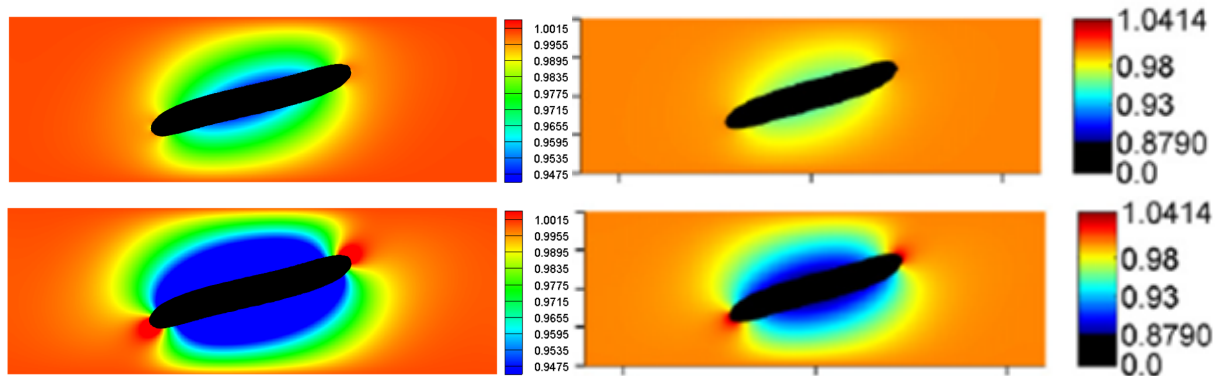


FIGURE 3.13 – Répartition en tensioactifs dans le liquide autour de la goutte cisailée. De haut en bas : $Bi = 0.2$, $Bi = 20$; de gauche à droite : méthode level-set, travaux de Teigen *et al* [33].

Nous avons aussi tracé la distribution de la concentration en tensioactifs f (figure 3.14). Nous l'avons comparée avec les travaux de Teigen *et al*. Le trait plein (—) correspond au cas $Bi = 20$ et le trait pointillé (- -) correspond à $Bi = 0.2$. Nous avons choisi arbitrairement le point de départ de l'abscisse curviligne, qui diffère de celui de Teigen *et al*. Notons aussi que le sens de parcours de l'abscisse curviligne est opposé à celui de Teigen *et al*. Nous pouvons constater sur la figure 3.14 que les résultats que nous avons obtenus avec la méthode level-set sont en accord quantitatif avec de ceux de [33], ce qui apporte plus de confiance quant à l'implémentation de notre modèle.

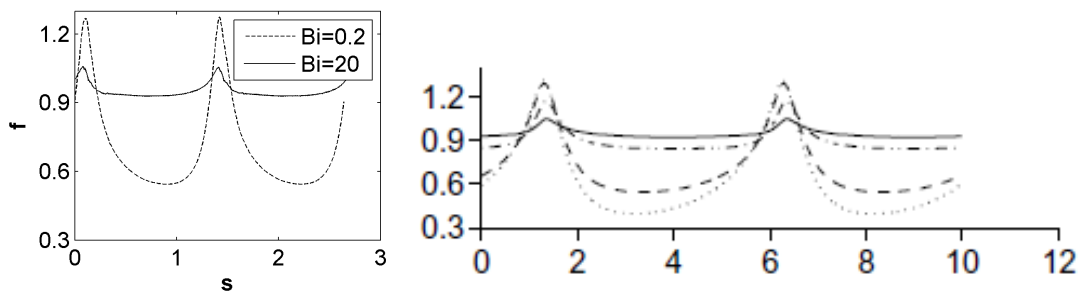


FIGURE 3.14 – Répartition des tensioactifs à l'interface le long de l'abscisse curviligne de la goutte. De gauche à droite : méthode level-set, travaux de Teigen *et al* [33]. La courbe en trait plein (—) correspond au cas $Bi = 20$, et la courbe en traits pointillés (- -) correspond à $Bi = 0.2$ dans les deux cas.

Effet du nombre de Péclet

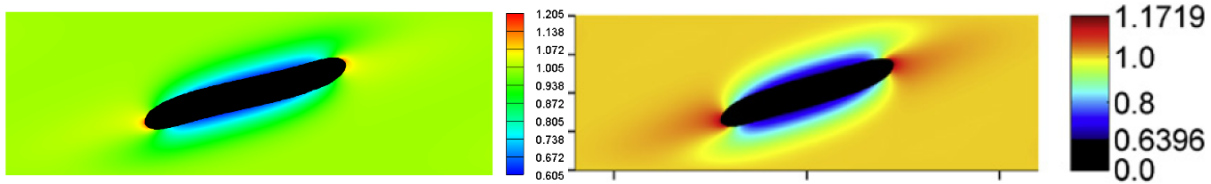


FIGURE 3.15 – Répartition de F autour de la goutte. Ici $Pe_F = 80$. De gauche à droite : méthode level-set, travaux de Teigen *et al* [33].

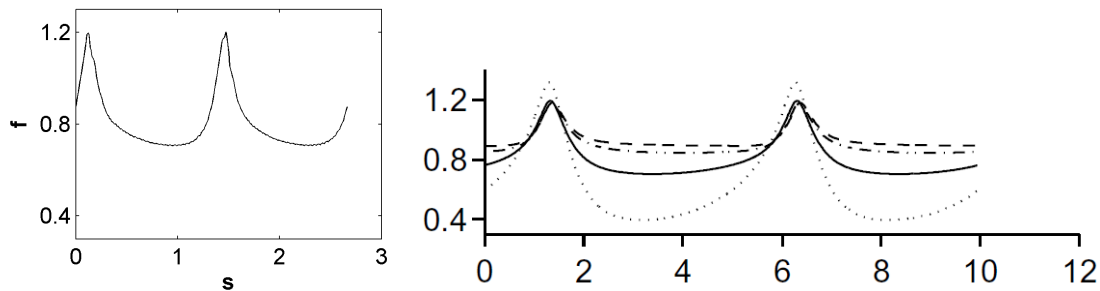


FIGURE 3.16 – Répartition en tensioactifs à l'interface le long de l'abscisse curviligne de la goutte. De gauche à droite : méthode level-set, travaux de Teigen *et al* [33]. La courbe en trait plein (—) correspond à notre jeu de paramètres, avec $Pe_F = 80$.

Nous avons également étudié le cisaillement pour un grand nombre de Péclet dans le volume (Pe_F). Les paramètres ont les valeurs précédentes, excepté $Bi = 2$, et $Pe_f = Pe_F = 80$. Pour ces nombres de Péclet élevés, toujours pour la répartition de F , nous obtenons le résultat présenté sur la figure 3.15 pour la répartition volumique de tensioactifs. Là encore, nous voyons que les résultats obtenus avec la méthode level-set sont proches de ceux de Teigen *et al*. Cela est confirmé d'un point de vue quantitatif par la figure 3.16, le trait plein (—) correspondant à $Pe_F = 80$. D'après la figure 3.15, la concentration en tensioactifs dans le liquide est aussi, dans ce cas, faible au niveau des zones étirées de la goutte ; alors qu'aux extrémités elle est plus forte. Comme les nombres de Péclet (Pe_F et Pe_f) sont élevés, la diffusion des tensioactifs est négligeable et ils sont advectionnés par l'écoulement. On observe donc une déplétion en tensioactifs dans les zones étirées (sur les bords latéraux de la goutte) et une accumulation dans les zones comprimées, aux extrémités.

Cas 3D

Nous avons enfin comparé la concentration en tensioactifs à l'interface (f) pour une simulation en 3D, correspondant au même jeu de paramètres que ceux employés à 2D dans

la section précédente. La figure 3.17 nous montre ce résultat. Ici aussi, nous pouvons observer que ce que nous avons obtenu est proche du résultat de Teigen *et al.* f est en effet plus importante aux extrémités de la goutte, et plus faible aux endroits étirés.

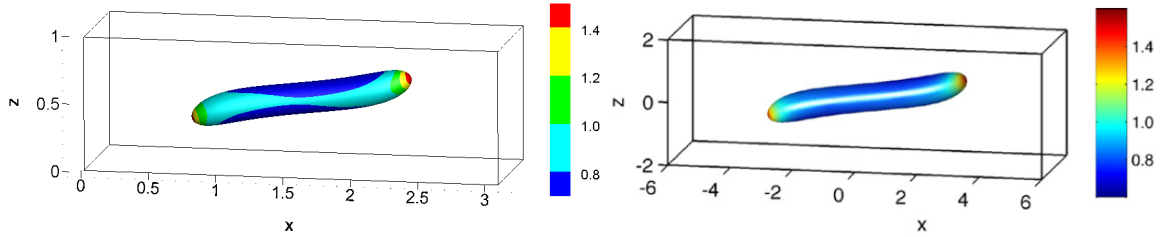


FIGURE 3.17 – Répartition des tensioactifs sur la surface de la goutte. Ici $Pe_F = 80$. De gauche à droite : méthode level-set, travaux de Teigen *et al* [33].

3.3 Ajustement sur le système étudié : bulles cisailées

Nous revenons à présent à notre objectif principal : décrire la dynamique de T1 et la réponse mécanique (rhéologie) d'une mousse au niveau local, et le couplage entre l'écoulement et la dynamique des tensioactifs. Nous décrivons notre système : des bulles de gaz sous cisaillement. L'objectif a été d'améliorer le modèle sur certains points, tels que la conservation de la quantité en tensioactifs ou la position de la ligne de contact.

3.3.1 Configuration étudiée

Nous étudions la dynamique de bulles sous l'influence du cisaillement imposé par le mouvement de deux plaques qui ont une vitesse \mathbf{u}_w . La configuration du système, bidimensionnel, est présentée sur la figure 3.18. La hauteur totale du domaine est notée H . Quatre bulles hémicirculaires sont placées sur un réseau hexagonal et séparées par une distance centre à centre de $2H/\sqrt{3}$. Le rayon des bulles est fixé à $R = 0.507H$ de façon à ce que la fraction liquide soit fixée à 30%. Cette valeur de fraction volumique est élevée et plutôt caractéristique d'un liquide bulleux. Ce choix permet d'éviter tout phénomène de coalescence au repos. Cette géométrie 2D qui a été implémentée dans le code numérique possède des conditions périodiques aux extrémités latérales, qui assurent la continuité des champs que sont la fonction level-set ϕ , le champ de vitesse de l'écoulement, les concentrations en tensioactifs F et f et le champ de pression. Les plaques supérieure et inférieure sont considérées rigides et imperméables, c'est-à-dire que le flux de tensioactifs est nul. Les vitesses du liquide et du gaz sont égales à celles des plaques. C'est l'implémentation de ces deux conditions qui est discutée en détail ci-dessous.

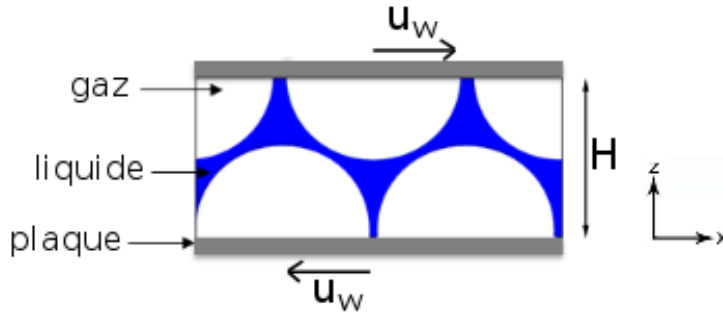


FIGURE 3.18 – Bulles de gaz dans du liquide, confinées entre deux plaques en mouvement.

3.3.2 Conservation de la quantité de tensioactifs : conditions de flux de tensioactifs aux plaques

Dans cette section, les simulations tests qui ont été réalisées, comportent une taille de cellules $\Delta z = 1/82$, et un pas de temps $\Delta t = 0.8 \times 10^{-4}$. Comme expliqué précédemment dans la section 2.3.2, les plaques sont imperméables et en conséquence, la quantité totale de tensioactifs dans le système doit rester constante au cours du temps. Les conditions de flux pour F et f sont fixées de la manière suivante. Pour la quantité de tensioactifs dans le volume (F),

$$\mathbf{n}_{pl} \cdot \nabla F = 0, \quad (3.2)$$

avec \mathbf{n}_{pl} le vecteur normal aux plaques. Pour la concentration interfaciale en tensioactifs f ,

$$\mathbf{t} \cdot \nabla f = 0, \quad (3.3)$$

avec \mathbf{t} le vecteur tangentiel à l'interface liquide/gaz, c'est-à-dire un flux nul dans la direction tangentielle à l'interface. Par ailleurs, pour F , nous avons ajouté une condition supplémentaire à la ligne de contact, qui impose un flux nul parallèlement à l'interface :

$$\mathbf{t} \cdot \nabla F = 0. \quad (3.4)$$

Ces conditions sur F et f n'ont pas permis d'obtenir une bonne conservation de leur quantité. En effet, définissons ω comme la quantité relative gagnée en tensioactifs :

$$\omega(t) = \frac{\Lambda(t)}{\Lambda(t=0)} - 1, \quad (3.5)$$

où $\Lambda(t)$ est la quantité totale de tensioactifs dans le système à l'instant t (équation(3.1)). Nous observons que sa valeur augmente comme représenté sur la figure 3.19 (gauche). Plus précisément, nous avons trouvé pour ce cas : $\omega = 12.4\%$ après huit réarrangements élémentaires de bulles (huit T1), soit 1.6% par T1. En revanche, le pourcentage d'erreur sur l'aire totale de gaz perdue pour ce cas est de 2.32% après huit T1, soit 0.29% par réarrangement

élémentaire. Cette information suggère que la masse de gaz, et donc la masse de liquide, sont raisonnablement conservées. Cependant, d'après cette valeur de ω , la dérive en quantité de tensioactifs n'est pas négligeable. Nous avons donc étudié l'effet de certains paramètres sur cette dérive afin de la limiter.

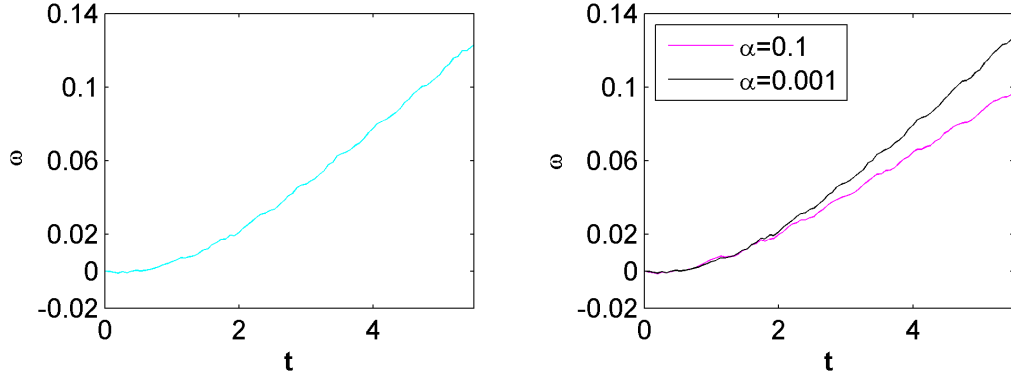


FIGURE 3.19 – Variation relative de la quantité totale en tensioactifs (gauche), et en changeant la valeur de α (droite). À la fin de la simulation, huit T1 se sont produits. Les paramètres sont : $Re = 1$, $Ca = 0.1$, $Bi = 1$, $Pe_F = 10$ et $Pe_f = 10$, $\beta = 1$, $\chi = 0.3$, $h = 1$, $\mu_l/\mu_g = 10$, $\rho_l/\rho_g = 10$. Numériquement, la taille de cellules est fixée à $\Delta z = 1/82$, et le pas de temps à $\Delta t = 0.8 \times 10^{-4}$.

Effet du paramètre α

Nous avons tout d'abord étudié l'effet du paramètre numérique α , introduit p. 53, sur ce gain en tensioactifs. Pour ce faire, deux simulations tests ont été réalisées. Les valeurs du paramètre ont été fixées à $\alpha = 0.1$ et $\alpha = 0.001$. Deux ordres de grandeur séparent ces deux valeurs, ce qui permet de vraiment mettre en évidence son effet sur le flux de tensioactifs. Le tracé de ω sur la quantité en tensioactifs pour ces deux valeurs de α est présenté par la figure 3.19 (droite). Ici aussi ce résultat correspond à huit T1. Dans ce cas, nous obtenons pour $\alpha = 0.1$ $\omega = 11\%$, et pour $\alpha = 0.001$, $\omega = 14\%$. En comparant ces deux valeurs de ω , nous pouvons remarquer que leur différence est faible (de l'ordre de 3%) sur un temps équivalent. Nous concluons que le paramètre α n'a pas vraiment d'effet sur la dérive. Pour ces deux simulations test, le pourcentage d'erreur sur l'aire totale de gaz perdue est environ de 2.6% sur les huit T1, soit environ 0.3% par T1, ce qui fait que dans ce cas aussi les masses de gaz et de liquide sont raisonnablement conservées.

Conditions aux limites sur F et f

Nous avons donc cherché à modifier les conditions aux limites sur f et F pour limiter cette dérive. Pour cela, trois conditions différentes aux parois ont été testées :

Test (a) : nous avons toujours pour F une condition de flux normal à la plaque : $\mathbf{n}_{pl} \cdot \nabla F = 0$. Nous fixons cette fois-ci pour f la même condition : $\mathbf{n}_{pl} \cdot \nabla f = 0$. Cette dernière

condition ne correspond pas à l'équation physique (3.3), mais nous voulons vérifier qu'en annulant artificiellement tout flux à la paroi, la conservation des tensioactifs est bien assurée.

Test (b) : nous dissocions la zone au voisinage de la ligne de contact du reste du domaine, en imposant $\mathbf{n}_{pl} \cdot \nabla F = 0$ loin des lignes de contact, et $\mathbf{t} \cdot \nabla F = 0$ à proximité de la ligne de contact. Pour f , nous imposons $\mathbf{t} \cdot \nabla f = 0$ près de la ligne de contact, à laquelle nous ajoutons une condition de flux nul loin des lignes de contact : $\mathbf{n}_{pl} \cdot \nabla f = 0$.

Test (c) : nous reprenons les conditions du test (b), et nous interdisons les échanges en tensioactifs entre le liquide et l'interface à la ligne de contact (autrement dit : $D_F \nabla F \cdot \mathbf{n} = j = 0$, avec D_F le coefficient de diffusion des tensioactifs dans le liquide).

À l'issue de ces trois tests, nous avons tracé la variation relative de la quantité totale en tensioactifs au cours du temps, afin de la comparer dans chaque cas (figure 3.20). Ces simulations tests correspondent aussi à huit réarrangements élémentaires de bulles. En calculant le pourcentage de la quantité totale gagnée en tensioactifs au bout de huit T1, nous avons obtenu pour le test (a) : 0.04% ; pour le test (b) : 2.6% ; et pour le test (c) : 2.9%. En comparant ces résultats avec le précédent (figure 3.19, où le pourcentage est de : 12.4%), nous pouvons constater une réduction assez importante de la dérive. Les nouvelles conditions de flux aux parois du système nous permettent d'avoir une meilleure conservation de la quantité totale en tensioactifs, ce qui est physiquement plus raisonnable.

Ces améliorations sur les conditions de flux de tensioactifs aux parois nous ont permis d'avoir un système stable au niveau de la conservation de la masse des tensioactifs. Le pourcentage d'erreur sur l'aire totale de gaz perdue est, pour les trois tests, d'environ 2% sur huit T1, ce qui est raisonnable aussi pour la conservation des masses de gaz et de liquide. Cependant, nous devons maintenant nous assurer que les conditions hydrodynamiques sont également bien adaptées, en particulier au niveau des lignes de contact.

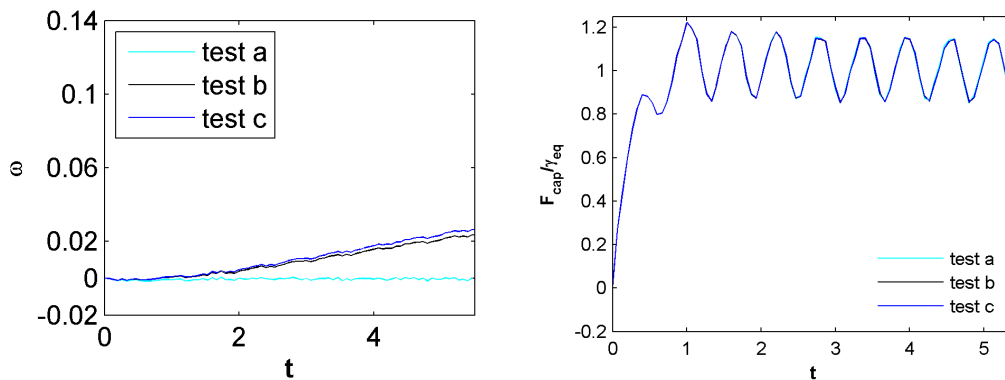


FIGURE 3.20 – Variation relative de la quantité totale en tensioactifs pour les différents tests (gauche), et variation temporelle des forces capillaires pour les différents tests (droite).

Effet des conditions sur les forces macroscopiques

Nous avons aussi tracé les forces macroscopiques (forces capillaires en l'occurrence, définies en détail au chapitre 4) pour les tests (a), (b), (c) afin d'évaluer l'effet de ces conditions au parois sur ces nouvelles quantités. Les paramètres dans le code numérique pour ces trois tests sont : $Re = 1$, $Ca = 0.1$, $Bi = 1$, $Pe_F = 10$, $Pe_f = 10$, $\beta = 1$, $\chi = 0.3$ et $h = 1$, $\mu_l/\mu_g = 10$, $\rho_l/\rho_g = 10$. Nous avons le résultat montré sur la figure 3.20. D'après cette figure, nous constatons que les forces capillaires sont insensibles à ces trois tests, donc les conditions aux limites sur f et F aux plaques n'ont pas d'effet. Ces constatations faites, nous avons dû choisir les conditions de flux de tensioactifs aux parois que nous allons utiliser dans nos simulations. Physiquement, il semble plus réaliste de choisir les conditions des tests (b) ou (c), dissociant bien les effets à la ligne de contact sur le reste de la plaque. Nous avons alors choisi les conditions de flux correspondant au test (c) de façon arbitraire.

3.3.3 Déplacement de la ligne de contact

Implémentation de la condition hydrodynamique à la paroi

Avec la condition de non-glissement, nous avons tout de même observé un décalage en position entre les plaques et les lignes de contact. La figure 3.21 (gauche) nous montre, pour un cas de simulation, l'évolution temporelle de la position d'une ligne de contact, et de la position de la plaque qui lui correspond. Dans ce cas de simulation, la position de la ligne de contact n'a pas été imposée. Ce résultat correspond à trois réarrangements élémentaires de bulles (trois T1). La ligne de contact qui a été choisie correspond à une de celles de la partie supérieure du système ; la plaque est donc celle du haut du domaine. Nous pouvons observer une dérive du déplacement de la ligne de contact par rapport au déplacement de la plaque supérieure. D'un point de vue quantitatif, le pourcentage d'erreur n'est pas négligeable (4%) dans ce cas de figure, avec le pas d'espace qui a été indiqué (figure 3.21). Cela est dû au fait que la fonction level-set est advectée par le champ de vitesse qui contient une petite erreur numérique. Puisque notre objectif est de simuler une approche d'un état quasi-stationnaire, il est intéressant de diminuer d'avantage cette erreur, en prescrivant explicitement la position de chaque ligne de contact.

Fixer les lignes de contact

Une solution qui a empêché ce décalage a été de fixer les lignes de contact aux plaques, en prescrivant donc la valeur de la fonction level-set aux cellules fantôme (les cellules fantôme sont localisées au niveau des plaques du système étudié, et imposent les conditions aux limites de la fonction level-set), ce qui n'avait pas été fait auparavant. En pratique, après l'advection de la fonction level-set à l'interface, et avant l'étape de réinitialisation de celle-ci, les nouvelles valeurs de ϕ aux cellules fantôme sont calculées comme suit : dans une région de cinq cellules autour de la ligne de contact, la position de cette dernière est imposée. En dehors de cette région de cinq cellules, la fonction level-set est extrapolée depuis le domaine de l'écoulement jusqu'au cellules fantôme.

Ainsi à chaque instant, les lignes de contact bougent avec les plaques. Ceci a diminué

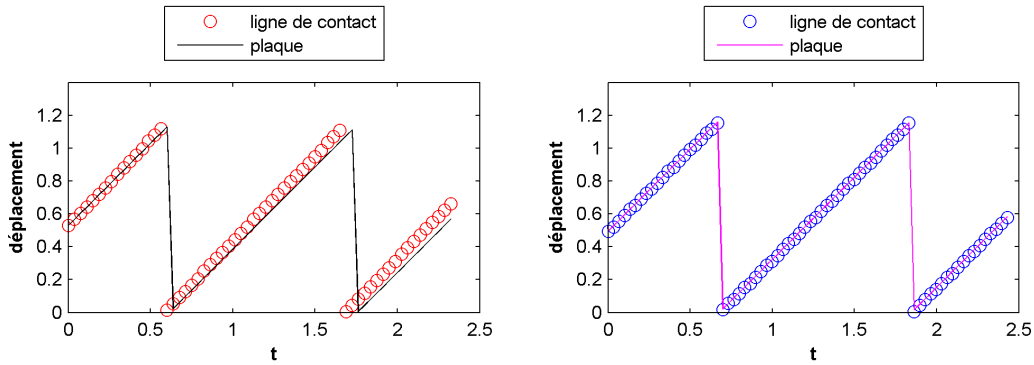


FIGURE 3.21 – Position de la ligne de contact et de la plaque, avant et après correction (gauche et droite). Le pourcentage d’erreur est, respectivement, de 4% et 0.1%. Les paramètres sont : $Re = 1$, $Ca = 0.16$, $Bi = 0.1$, $Pe_F = 1$ et $Pe_f = 1$, $\beta = 1$, $\chi = 0.3$, $h = 1$. Le pas d’espace de la grille est $\Delta z = 1/105$ (gauche), et $\Delta z = 1/82$ (droite).

considérablement l’erreur, comme cela est visible sur la figure 3.21 à droite. Ce résultat est pour un jeu de paramètres différent du précédent, mais nous avons vérifié que ces effets ne dépendent pas des paramètres utilisés ; il correspond aussi à trois T1. Nous pouvons observer cette fois que les déplacements de la ligne de contact (choisie en haut du domaine) et de la plaque supérieure sont quasiment identiques, l’erreur étant de l’ordre de 0.1%. Nous pouvons donc constater que le fait de fixer les lignes de contact aux plaques résout pratiquement ce problème et c’est ce schéma numérique que nous avons choisi d’utiliser dans la suite.

En conclusion, les tests nous ont permis d’accroître notre confiance vis à vis de l’implémentation numérique et d’apporter des améliorations au code initial. De la goutte immobile aux bulles cisillées, en passant par la goutte cisillée de [33], les résultats obtenus avec notre méthode semblent raisonnables et cohérents. Ces résultats suggèrent que le modèle des tensioactifs a été implémenté correctement dans le code numérique. Nous pouvons donc avoir confiance dans la physique des résultats que nous allons présenter dans le prochain chapitre, et qui constituent l’aspect original de ce travail.

CHAPITRE 4

Résultats et discussion

Sommaire

4.1 Résultats sans viscosité de surface	63
4.2 Résultats préliminaires avec viscosité de surface constante	89

Nous présentons dans ce chapitre les résultats obtenus sur les quatre bulles cisillées. Pour le cas sans viscosité de surface, nous avons mené une étude paramétrique en changeant le nombre capillaire, le nombre de Péclet, pris égal dans le volume et à l'interface, et le nombre de Biot. La plage de valeurs pour le nombre capillaire va de 0.02 à 0.3, les nombres de Péclet dans le volume et à l'interface varient entre 0.1 et 100, et le nombre de Biot varie entre 0.1 et 10. Nous considérons ensuite le cas avec viscosité de surface et présentons des résultats préliminaires obtenus avec une viscosité de surface constante et un nombre de Boussinesq $Bo = 1$.

4.1 Résultats sans viscosité de surface

Les résultats de l'étude menée dans le cas sans viscosité de surface sont présentés dans le manuscrit suivant, soumis au *Journal of Fluid Mechanics*.

Level-set simulations of a 2D topological rearrangement in a bubble assembly: effects of surfactant properties

A. Titta^{1,2}, M. Le Merrer¹†, F. Detcheverry¹, P.D.M. Spelt² and A.-L. Biance¹

¹Univ Lyon, Université Claude Bernard Lyon 1, CNRS, Institut Lumière Matière, F-69622, Villeurbanne, France

²Laboratoire de Mécanique des Fluides et d'Acoustique, UMR CNRS 5509, Université de Lyon, France

(Received xx; revised xx; accepted xx)

A liquid foam is a dispersion of gas bubbles in a liquid matrix containing surface active agents. Their flow involves the relative motion of bubbles, which switches neighbours during a so-called topological rearrangement of type 1 (T1). The dynamics of T1 events, as well as foam rheology, have been extensively studied, and experimental results point to the key role played by surfactants in these processes. However, the complex and multiscale nature of the system has so far impeded a complete understanding of the mechanisms at stake. In this work, we investigate numerically the effect of surfactants on the rheological response of a 2D sheared bubble cluster. To do so, a level-set method previously employed for simulating two-phase flow has been extended to include the effects of the surfactants. The dynamical processes of the surfactants —diffusion in the liquid and along the interface, adsorption/desorption at the interface— and their coupling with the flow —surfactant advection and Laplace and Marangoni stresses at the interface— are all taken into account explicitly. Through a systematic study in Biot, capillary and Péclet numbers which characterise the surfactant properties in the simulation, we find that the presence of surfactants can affect the liquid/gas hydrodynamic boundary condition (from a rigid-like situation to a mobile one), which modifies the nature of the flow in the volume from a purely extensional situation to a shear. Furthermore, the work done by surface tension (the 2D analogue of the work by pressure forces), resulting from surfactant and interface dynamics, can be interpreted as an effective dissipation, which reaches a maximum for Péclet number of order unity. Our results, obtained at high liquid fraction, should provide a reference point, to which experiments and models of T1 dynamics and foam rheology can be compared.

Key words: Bubble dynamics - Foams - Interfacial Flows (free surface)

1. Introduction

Liquid foams are concentrated dispersions of gas in a liquid matrix. They belong to the material class of complex fluids, characterised by their multiscale structure, and their rheological properties have been widely investigated, for example in the two pioneering

† Email address for correspondence: marie.le-merrer@univ-lyon1.fr

paper series of Princen and Kraynik (Princen 1983, 1985; Princen & Kiss 1986, 1989; Kraynik *et al.* 1991). A commonly used empirical description for foam rheology is the Herschel-Bulkley relationship (Cantat *et al.* 2010; Cohen-Addad *et al.* 2013). Foam behaviour is complicated further by these being out of equilibrium systems that evolve with time, due to different mechanisms such as gravity liquid drainage, bubble coarsening and coalescence (Cantat *et al.* 2010).

Several numerical and analytical methods have been utilized to attempt to link their properties at the local scale to the macroscopic rheological behavior (Buzza *et al.* 1995; Cantat 2011; Denkov *et al.* 2008; Tcholakova *et al.* 2008; Besson *et al.* 2008; Cohen-Addad *et al.* 2013). Among these, large or multi-scale simulations may describe the foam either as bubble or soft sphere assemblies (Durian 1995, 1997; Rognon *et al.* 2010; Seth *et al.* 2011; Sexton *et al.* 2011), or as networks of films and Plateau borders (Kern *et al.* 2004; Cantat 2011; Saye & Sethian 2013). However, to be fully accurate, such simulations require a full description of local responses and timescales, which is still missing.

One essential feature of a liquid foam is that the liquid matrix is filled with surface-active molecules (*i.e.* surfactants), which adsorb at interfaces, and whose primary role is to stabilise the liquid films separating the bubbles by inducing nanometric range repulsion between the interfaces (Israelachvili 2010). Macroscopic behaviour of foams is strongly affected by the surfactant nature. For instance, liquid transport through foams is limited either by dissipation in the Plateau borders or in the nodes (Durand *et al.* 1999) and depends on interfacial boundary conditions and hence on surfactant dynamics (Lorenceanu *et al.* 2009; Cohen-Addad *et al.* 2013). Regarding foam rheology, shear stress in flow (Tcholakova *et al.* 2008) can be modified by changing the nature of surfactants; viscoelastic measurements have shown that relaxation timescales (Krishan *et al.* 2010; Costa *et al.* 2013) are also affected. Finally, the foam stability, characterised either by a critical volume fraction or by a critical capillary pressure, can be modified (Biance *et al.* 2011; Rio & Biance 2014).

Foam flow occurs through relative motion of deformable bubbles. As depicted in figure 1, this process involves switching of neighbours, which is referred to as a topological rearrangement of type 1 (T1) (Höhler & Cohen-Addad 2005). T1 dynamics has been largely studied experimentally in model systems such as bubble clusters (Biance *et al.* 2009), 2D foams (Durand & Stone 2006), soap film architecture (Hutzler *et al.* 2008; Petit *et al.* 2015) and 3D foams (Le Merrer *et al.* 2012, 2013). It is affected mainly by the amount of liquid in the foam, the viscosity of the liquid and the nature of the surfactant. T1 involves the flow and the stretching of a thin liquid film, a process which has been extensively characterised experimentally (Seiwert *et al.* 2013; Petit *et al.* 2015; Champougny *et al.* 2015) and was found to depend on the nature of the surfactants. Elongation of the film is observed in some cases whereas shear in the contacting meniscus appears in some others, as already predicted for small deformations in Buzza *et al.* (1995). On the theoretical side, analytical prediction of T1 dynamics when neglecting bulk flow has also been performed, taking into account surfactant transport along the interface (Durand & Stone 2006; Satomi *et al.* 2013).

Surfactants not only affect the static properties of interfaces, but also their dynamical ones, described through the interfacial stress. They generate intrinsic surface dissipation but also alter the liquid flow by changing the hydrodynamic boundary condition at the interface. Surfactants can diffuse along the interface and in the bulk, and can partially adsorb and desorb (Langevin 2014), with many consequences, such as the generation of an elastic solutal Marangoni stress at the interface and a viscous one (Lucassen & van den Tempel 1972). Such interfacial Marangoni stresses influence the liquid flows, which

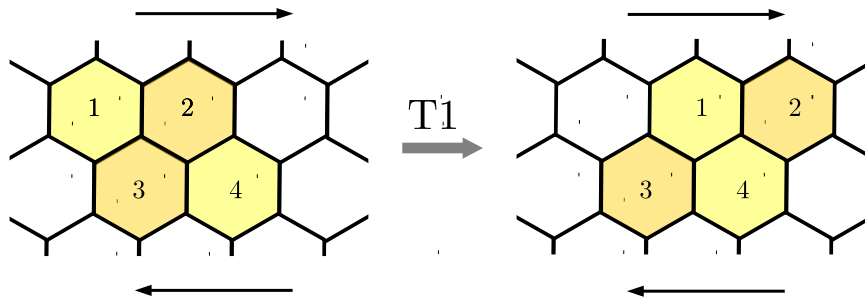


FIGURE 1. Schematics of a T1 process in a 2D bubble assembly.

in turn modify the surfactant distribution, making this coupled non-linear problem a complex one.

The effects of surfactants on flows involving bubbles have already been established in a variety of situations. Perhaps the oldest one is the sedimenting drop or rising bubble, a problem dating back to the early days of surface rheology (Edwards *et al.* 1991), and which is still being explored (Bel Fdhila & Duineveld 1996; Cuenot *et al.* 1997). By immobilising the interface and decreasing the velocity, the presence of surfactants not only affects the individual behavior of a bubble but has also macroscopic consequences on the turbulence structure (Takagi & Matsumoto 2011). Deformation and break-up of droplets or bubbles in elongational or shearing flows is also sensitive to the presence of surfactants (Stone 1994), as exemplified by the "tip streaming" phenomenon, where a thin liquid thread is drawn from the drop tips (Eggleton *et al.* 2001). Interfacial boundary conditions influenced by surfactants are also known to affect film coating (Park 1991; Ou Ramdane & Quéré 1997; Scheid *et al.* 2010; Champougny *et al.* 2015) or the similar problems of bubbles sliding along a rigid wall (Ratulowski & Chang 1990; Cantat 2013) or foam wall slip (Denkov *et al.* 2005, 2006). Finally, surfactants may affect the draining process of films, revealing the importance of surface elasticity (Sonin *et al.* 1993), or resulting in dimpled profiles (Breward & Howell 2002).

Theoretical investigations of surfactant effects relying on analytical or semi-analytical methods generally assume a fixed geometry (e.g. Schwalbe *et al.* 2011) or lubrication approximation (e.g. Scheid *et al.* 2010; Cantat 2013). Only numerical approaches can handle the large deformations and topological changes that often occur in bubble or drop dynamics. A number of methods have been developed to do so, which fall in two distinct classes. The interface tracking methods, such as boundary integral (Pozrikidis 2001), front-tracking (Tryggvason *et al.* 2001), immersed boundary (Mittal & Iaccarino 2005) schemes, all involve an explicit representation of the interface with dedicated grid or point sets, which allows for high accuracy, but makes it more difficult to handle topological changes, in particular for three-dimensional systems. In interface-capturing methods, such as volume-of-fluid (VOF), level-set and diffuse-interface methods, the representation of the interface is only implicit, with the benefit that arbitrary changes in interface shape can be treated with no further complication. Most such numerical methods have been extended to account for the presence of soluble or insoluble surfactants (see Teigen *et al.* 2011; Dieter-Kissling *et al.* 2015, for an overview).

In this work, our goal is to unveil the role of surfactants on the dynamics of a T1 event, a situation which has not been considered so far, and to investigate the mechanisms governing the rheology: surfactant diffusion along the interfaces and in the bulk, bulk/interface exchanges, viscous shear. This is only possible if the full surfactant distribution can be tracked in the bulk and along the interfaces, and requires numerical simulations. We

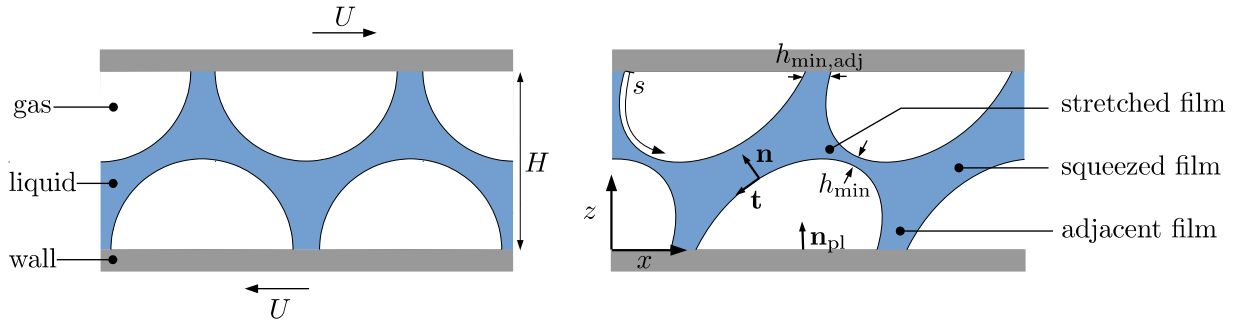


FIGURE 2. (Left) Initial configuration for our simulation. The black line corresponds to the interface between the liquid and gas phase. (Right) Definitions of films, film thicknesses, curvilinear coordinate and unit vectors.

use a level-set approach (e.g., Sussman *et al.* 1994; Sethian 1999; Osher & Fedkiw 2003) extended to account for the presence of surfactants. Our configuration is the minimal one, both in terms of scale and dimensionality: we consider a unit cell of a semi-periodic arrangement in two dimensions. Our aim is to relate the local microscopic properties of the surfactants to the macroscopic foam rheology: for monodisperse crystalline foams, this intermediate situation is representative of a macroscopic foam; for disordered foams, it may still provide insight on the dominant dissipation mechanisms at play, and could be used to refine local ingredients for a multiscale approach.

The article is organized as follows. We first present in section 2 the equations governing the flow of the bubble assembly in presence of surfactants as well as the main dimensionless parameters and the configuration considered. Section 3 then briefly describes our level-set method and numerical implementation. Finally, we report in section 4 our results on T1 events, together with a specific discussion. A particular attention will be paid to the coupling between bulk flow and interfacial stress.

2. Shear of a bubble assembly: problem formulation

2.1. Configuration studied

The initial configuration, depicted in figure 2, consists of four hemicircular bubbles arranged on a hexagonal lattice and separated by a center-to-center distance $2H/\sqrt{3}$, where H is the domain height. Considering the symmetry of the system, simulations were also done on a cluster of two half-bubbles only, which simply corresponds to one half of the domain represented in figure 2. Unless indicated otherwise, the liquid fraction of the system, defined as liquid area divided by total area, was set to $\psi_l = 30\%$. This large liquid fraction, much closer to bubbly liquids than to real foam, has been chosen to ensure numerical resolution of the resulting liquid film between the bubbles. The shear is imposed by prescribing a velocity $+U$ (resp. $-U$) for the top (resp. bottom) plate. The contact lines, where solid meets both liquid and gas, are assumed to be pinned and thus move at the plate velocity. The plates are impermeable to fluids and surfactants, with zero flux across them. Periodic boundary conditions are applied in the lateral direction.

2.2. Equations and relevant parameters

2.2.1. Flow dynamics and interfacial stress

The flow in the liquid and in the gas is governed by the full Navier-Stokes equations. Assuming that both fluids are incompressible and denoting by \mathbf{u} the velocity, ρ and μ

the local density and viscosity, the equations read

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (2.1)$$

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = -\nabla p + \nabla \cdot \left(\mu (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T) \right) = \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma}, \quad (2.2)$$

with $\boldsymbol{\sigma} = -p\mathbf{I} + \mu(\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T)$ the stress tensor. Note that the viscosity and density depends on the position, since they are different in the liquid and in the gas. A no-slip boundary condition applies for the velocity at the plates. At a gas-liquid interface with surface tension γ , the stress jump is (Pozrikidis 2011)

$$[\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}] = -\gamma C \mathbf{n} - \nabla_s \gamma. \quad (2.3)$$

Here $[X] = X_{\text{liquid}} - X_{\text{gas}}$ is the jump of quantity X across the interface, \mathbf{n} is the normal unit vector pointing toward the liquid, $C = -\nabla \cdot \mathbf{n}$ is the interface curvature, and $\nabla_s = \mathbf{I}_s \cdot \nabla$ (with $\mathbf{I}_s = \mathbf{I} - \mathbf{n} \otimes \mathbf{n}$ the surface identity tensor) is the surface gradient. The first term on the right-hand side of (2.3) represents the Young-Laplace normal stress jump across the interface whereas the second term corresponds to the tangential solutal Marangoni stress.

We adopt herein a one-fluid formulation (e.g., Brackbill *et al.* 1992), wherein the governing equations for both fluids and the stress jump condition are combined into one set of governing equations. This is facilitated by introducing the Dirac function δ_Γ featuring the interface, and the interfacial stress tensor $\mathbf{T}_s = \gamma \delta_\Gamma \mathbf{I}_s$. We use here the simplest possible form of the interfacial stress tensor, but more complex models involving complex surface shear or dilatational rheology (Sagis 2011; Erni 2011) could be described with this approach. The one-fluid formulation valid in the entire domain can then be written as

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \right) = \nabla \cdot (\boldsymbol{\sigma} + \mathbf{T}_s) = \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} + \gamma C \delta_\Gamma \mathbf{n} + (\nabla_s \gamma) \delta_\Gamma. \quad (2.4)$$

The singular terms added on the right-hand side represents the singular contribution arising from taking the divergence of the discontinuous stress (Teigen *et al.* 2011): Since $\nabla \delta_\Gamma$ is normal to the interface, we indeed have $\nabla \cdot \mathbf{T}_s = \gamma C \delta_\Gamma \mathbf{n} + (\nabla_s \gamma) \delta_\Gamma = -\delta_\Gamma [\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}]$.

In dimensionless coordinates, the mass conservation reduces to $\tilde{\nabla} \cdot \tilde{\mathbf{u}} = 0$ and the conservation of momentum to:

$$\begin{aligned} \tilde{\rho} \left(\frac{\partial \tilde{\mathbf{u}}}{\partial \tilde{t}} + (\tilde{\mathbf{u}} \cdot \tilde{\nabla}) \tilde{\mathbf{u}} \right) &= -\tilde{\nabla} \tilde{p} + \frac{1}{Re} \tilde{\nabla} \cdot \left(\tilde{\mu} (\tilde{\nabla} \tilde{\mathbf{u}} + (\tilde{\nabla} \tilde{\mathbf{u}})^T) \right) \\ &\quad + \frac{1}{Ca_0 Re} \left[\tilde{\gamma} \tilde{C} \mathbf{n} \tilde{\delta}_\Gamma + \tilde{\nabla}_s \tilde{\gamma} \tilde{\delta}_\Gamma \right], \end{aligned} \quad (2.5)$$

where the characteristic parameters are the shear velocity U and the box height H , yielding the typical timescale $T = H/U$. The characteristic viscosity and density μ_l and ρ_l are those of the liquid phase. The pressure is made non-dimensional with $\rho_l U^2$. $\tilde{\delta}_\Gamma$ is the dimensionless Dirac function used to feature the interface. Regarding the interfacial tension, $\tilde{\gamma} = \gamma/\gamma_0$ where γ_0 is the bare liquid/gas surface tension. We also introduced the Reynolds number defined as $Re = \rho_l U H / \mu_l$, which compares inertial and viscous stresses, and a capillary number $Ca_0 = \mu_l U / \gamma_0$ which compares viscous and surface tension forces.

2.2.2. Model of surfactant dynamics and adsorption

To completely describe the dynamics of the fluids, one must fully account for the transport of surfactants in the liquid and along the interface. In the former, it reads

$$\frac{\partial F}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{u}F) = D_F \nabla^2 F, \quad (2.6)$$

where F is the volume concentration of surfactant and D_F its diffusion coefficient in the bulk. At interfaces, we define the surface concentration of surfactants, denoted herein by f . This is also governed by diffusion and advection; the balance equation developed by Wong *et al.* (1996) is written here in a fixed reference frame. Upon supposing f to be extended off interfaces as a constant along the interface normal, the balance equation for f can be written as (Pereira *et al.* 2007; Teigen *et al.* 2009):

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \nabla_s \cdot (\mathbf{u}f) = D_f \nabla_s^2 f + j, \quad (2.7)$$

with D_f the diffusion coefficient along the interface. The source term j accounts for the exchange of surfactants between the interface and the bulk and is assumed to be given by

$$j = r_a F^s (f_\infty - f) - r_d f, \quad (2.8)$$

with r_a and r_d the adsorption and desorption coefficient respectively and F^s the bulk surfactant concentration in the vicinity of the interface. Regarding boundary conditions, the following equality applies at the interface

$$D_F \nabla F \cdot \mathbf{n} = -j, \quad (2.9)$$

while at the plates, the no-flux condition ensuring surfactant conservation imposes

$$\mathbf{n}_{\text{pl}} \cdot \nabla F = 0, \quad \mathbf{t} \cdot \nabla f = 0, \quad (2.10)$$

where \mathbf{n}_{pl} is the vector normal to the plates and \mathbf{t} the vector tangential to the interface (see figure 2). Finally, the interfacial stress and surface tension depend strongly on the amount of surfactants adsorbed at the interface. To link the surface tension to the surface concentration of surfactants at the interface f , a simple choice is the Langmuir equation of state (Langevin 2014)

$$\gamma(f) = \gamma_0 \left[1 + \frac{RT f_\infty}{\gamma_0} \ln \left(1 - \frac{f}{f_\infty} \right) \right], \quad (2.11)$$

with R the ideal gas constant, T the temperature and f_∞ the surface concentration at saturation.

These equations can be recast in dimensionless form. First, the convection-diffusion of surfactants yields

$$\frac{\partial}{\partial \tilde{t}} (H_\epsilon \tilde{F}) + \tilde{\nabla} \cdot (H_\epsilon \tilde{F} \tilde{\mathbf{u}}) = \frac{1}{Pe_F} \tilde{\nabla} \cdot (H_\epsilon \tilde{\nabla} \tilde{F}) - h \tilde{\delta}_\Gamma \tilde{j}, \quad (2.12)$$

with $Pe_F = UH/D_F$ the bulk Péclet number, which compares advection and diffusion. The adsorption depth $h = f_{\text{eq}}/(HF_{\text{eq}})$, with F_{eq} and f_{eq} the volume and surface concentrations at equilibrium, compares the amount of surfactant at the surface and in the bulk[†]. Note that the Heaviside function H_ϵ has been introduced to account for the fact that the surfactants are only present in the liquid phase. The transport equation

[†] Note that an equivalent expression is $h = r_a f_\infty (1 - \chi)/(r_d H)$, which involves r_a .

along the interface reads

$$\frac{\partial}{\partial \tilde{t}}(\tilde{f}\tilde{\delta}_\Gamma) + \tilde{\nabla} \cdot (\tilde{f}\tilde{\delta}_\Gamma\tilde{\mathbf{u}}) = \frac{1}{Pe_f}\tilde{\nabla} \cdot (\tilde{\delta}_\Gamma\tilde{\nabla}\tilde{f}) + \tilde{\delta}_\Gamma\tilde{j}, \quad (2.13)$$

with $Pe_f = UH/D_f$ the interface Péclet number and with the dimensionless source term

$$\tilde{j} = Bi \left[\frac{\chi}{1-\chi} \tilde{F}^s \left(\frac{1}{\chi} - \tilde{f} \right) - \tilde{f} \right]. \quad (2.14)$$

Here $Bi = r_d H/U$ is the so-called Biot number, which compares the timescale of surfactant desorption with convection. Finally, the adimensionalized equation of state is

$$\tilde{\gamma}(\tilde{f}) = 1 + \beta \ln(1 - \chi\tilde{f}), \quad (2.15)$$

where $\beta = RTf_\infty/\gamma_0$ governs the sensitivity of surface tension versus surfactant concentration and $\chi = f_{eq}/f_\infty$ corresponds to the ratio of surfactant concentration at equilibrium and at saturation.

3. Numerical simulations: a level-set based method

3.1. The level-set function and the numerical scheme

3.1.1. Level-set method

The governing equations presented above must be supplemented by a method to determine the evolution of interfaces. For this purpose, we used a level-set scheme already developed in the case of multiphase flows in previous work (e.g., Sussman *et al.* 1994; Osher & Fedkiw 2003). It consists in the introduction of a level-set distance function noted $\phi(\mathbf{x}, t)$ whose sign defines the location of each phase:

$$\phi(\mathbf{x}, t) = \begin{cases} d & \text{in the liquid,} \\ -d & \text{in the gas,} \\ 0 & \text{along interface } \Gamma. \end{cases} \quad (3.1)$$

where d is the closest distance to the interface. It allows to define the evolution of interface location versus time. The level-set function is advected by the flow at a velocity \mathbf{u} and then satisfies at the interface:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi = 0. \quad (3.2)$$

The fluid properties at each location then directly depend on the value of the level-set function and are defined as

$$\rho(\phi) = \rho_l H_\epsilon(\phi) + \rho_g(1 - H_\epsilon(\phi)), \quad (3.3)$$

$$\mu(\phi) = \mu_l H_\epsilon(\phi) + \mu_g(1 - H_\epsilon(\phi)), \quad (3.4)$$

with $\rho_l, \rho_g, \mu_l, \mu_g$ respectively the liquid (gas) density and viscosity. $H_\epsilon(\phi)$ is a smoothed Heaviside function defined as

$$H_\epsilon(\phi) = \begin{cases} 0 & \text{if } \phi < -\epsilon, \\ \frac{1}{2} \left[1 + \frac{\phi}{\epsilon} + \frac{1}{\pi} \sin(\pi\phi/\epsilon) \right] & \text{if } |\phi| \leq \epsilon, \\ 1 & \text{if } \phi > \epsilon. \end{cases} \quad (3.5)$$

2ϵ thus corresponds to the width of the smooth interface. The Dirac function introduced above to feature the interface also directly depends on this Heaviside function by $\delta_\Gamma \mathbf{n} = \nabla H_\epsilon$. The normal vector is obtained as $\mathbf{n} = \nabla \phi / |\nabla \phi|$ and the interface curvature as $C =$

$-\nabla \cdot \mathbf{n}$. In order to accurately determine the interface curvature and normal vector, and to keep the interface thickness nearly constant, a reinitialisation stage is included. Motivated by the results of a comparative study of various reinitialisation schemes (Solomenko *et al.* 2017), we use the interface-preserving algorithm of Sussman & Fatemi (1999). Thus, after the solution of (3.2) has been advanced over a timestep to yield a level-set function $\phi = \phi_0$, this is corrected by solving

$$\frac{\partial \phi}{\partial \tau} + \text{sgn}(\phi_0)(|\nabla \phi| - 1) = \lambda \delta(\phi_0) |\nabla \phi_0| \quad (3.6)$$

over the pseudo time variable τ , subject to the initial condition $\phi = \phi_0$; the coefficient λ is chosen such as to preserve the volume of each fluid over any fixed volume of the two-phase flow (see Sussman & Fatemi 1999, for details).

3.1.2. Numerical implementation

The transport equations of surfactants were implemented in an already existing and validated level-set code (O’Náirigh *et al.* 2014), with some further improvements. This uses a standard projection method; the spatial discretisation is on a Marker-and-Cell (MAC) grid, with velocity components defined at cell faces and scalar quantities defined at cell centers. The momentum source term is discretised on the MAC grid. The temporal discretisation of the momentum equation involves a Crank-Nicolson scheme for diagonal viscous terms and third-order Adams-Bashforth scheme for convective terms and off-diagonal viscous terms; second-order central differences were used for the spatial discretisation of these terms. For temporal discretisation of the transport equation of the level-set function, a third-order Adams-Bashforth scheme was used; a fifth-order Weighted-Essentially-Non-Oscillatory (WENO) scheme was used for the spatial discretisation. At the reinitialisation stage (3.6), a second-order Runge-Kutta scheme was used for the temporal discretisation, and fifth-order WENO for spatial discretisation. Results of basic tests of the computational method without surfactants can be found elsewhere (Solomenko *et al.* 2017; O’Náirigh *et al.* 2014). The transport equations for surfactants have been implemented following Teigen *et al.* (2009), in the same manner as the viscous terms in the momentum equations.

The validation of the numerical scheme for flows with surfactants has been achieved by studying a droplet at rest and under shear, and by quantitative comparison with numerical results obtained by Teigen *et al.* (2009) with a different (diffuse-interface) method. We have also found in tests for static drops that surfactants did not amplify spurious currents. Those two points are elaborated in Appendix A. Finally, the mesh size Δz is typically $H/200$ to $H/100$ and the total interface width 2ϵ is chosen to be $3\Delta z$. Both were checked to have little effect on simulation results.

3.2. Potential pitfalls

3.2.1. Surfactant leakage

The amount of surfactants is fixed in our configuration, since the plates are impermeable walls. From the no-flux condition (2.10), we obtain for our specific configuration that:

(i) at the liquid-plate boundary, the vertical flux of surfactant is zero: $\nabla F \cdot \mathbf{e}_z = \partial_z F = 0$;

(ii) at the contact line, the tangential flux is zero: $\nabla f \cdot \mathbf{t} = 0$, which can be rewritten as $\partial_z f = \frac{\partial_z \phi}{\partial_x \phi} \partial_x f$.

However, it turns out that these simple conditions led to a loss in the total amount of surfactants ($\sim 1\%$ per bubble rearrangement). We thus constrained the boundary

conditions to impose $\partial_z f = \frac{\partial_z \phi}{\partial_x \phi} \partial_x f$ and $\partial_z F = \frac{\partial_z \phi}{\partial_x \phi} \partial_x F$ at the contact line, and both $\partial_z F = 0$ and $\partial_z f = 0$ at the liquid-plate and gas-plate boundaries. We also consider that at the triple line, the bulk/interface exchange is inhibited by the presence of the wall ($j = 0$). While still satisfying the physical boundary conditions, these conditions lead to a five-fold reduction of the surfactant leakage, which we consider acceptable. Besides, relaxing the last condition gives similar results, both on surfactant leakage and on the macroscopic force (section 4.1).

3.2.2. Pinning the contact lines

Besides the no-slip condition for fluid at the wall, the contact lines were pinned to the plates. Boundary conditions for the level-set function were implemented through prescription at ghost cells; at any time, the positions of contact lines being known, the level-set function was prescribed in a thin layer around the contact line accordingly. Not accounting for this, and merely relying on the no-slip condition instead, resulted in some deviations of the contact line position with respect to the plate displacement (1.3% per T1).

3.3. Parameter range

All dimensionless numbers are set to unity unless stated otherwise, implying that none of the physical effects is neglected. χ is set to 0.3 to ensure that the value of surface tension with and without surfactants correspond to a reasonable system. We explore capillary numbers in the 0.02-0.3 range, Péclet numbers in the 0.1-100 range and Biot numbers in the 0.1-10 range. The viscosity and density ratios between the liquid and the gas are both set to 10. We also consider that surface and bulk Péclet numbers are equal ($Pe_F = Pe_f = Pe$). Thus, our parameter ranges do not necessarily coincide with those expected in typical systems: for instance, the capillary number in experiments is usually smaller. Though supercomputing resources were used, our ability to explore parameter space is limited by the significant computing time required. We note, however, that with Ca , Bi and Pe numbers covering one or two decades, their influence can be clearly identified. Finally, it should be noted that the present numerical method and configuration are also relevant to describe neighbour-switching dynamics in emulsions composed of oil droplets in water (Seth *et al.* 2011). In this case, the ratio between the density of inner and outer fluids is close to 1, while the viscosity ratio can be either smaller or larger than 1.

4. Numerical results and discussion

In this section, we present the results of numerical simulations and discuss their physical interpretation. We conducted a parametric study that focuses mainly on the influence of the capillary number (*i.e.* the shear rate), the Péclet number (*i.e.* the ability of surfactant to diffuse both in bulk and along the interface) and the Biot number (*i.e.* the ability of bulk/surface exchange for surfactants). To reduce computation time, most of the simulations have been performed on half the domain of figure 2. All quantities shown below are for this two-bubble system.

4.1. Time variation of the system and forces

The temporal evolution of the interfaces is shown in figure 3 for parameters typical of our simulations ($Ca = 0.1$, $Bi = 0.1$ and $Pe = 1$, or case B in table 1). One can observe that T1 processes indeed occur, and that a stationary regime is reached after two switches



FIGURE 3. Temporal evolution of the bubble configuration for $Ca = 0.1$, $Bi = 0.1$ and $Pe = 1$ (case B in table 1). Lines corresponds to the liquid-gas interface, *i.e.* $\phi = 0$. The first snapshot corresponds to $\tilde{t} = 1.82$ and the time interval between two successive snapshots is $\Delta\tilde{t} = 0.19$.

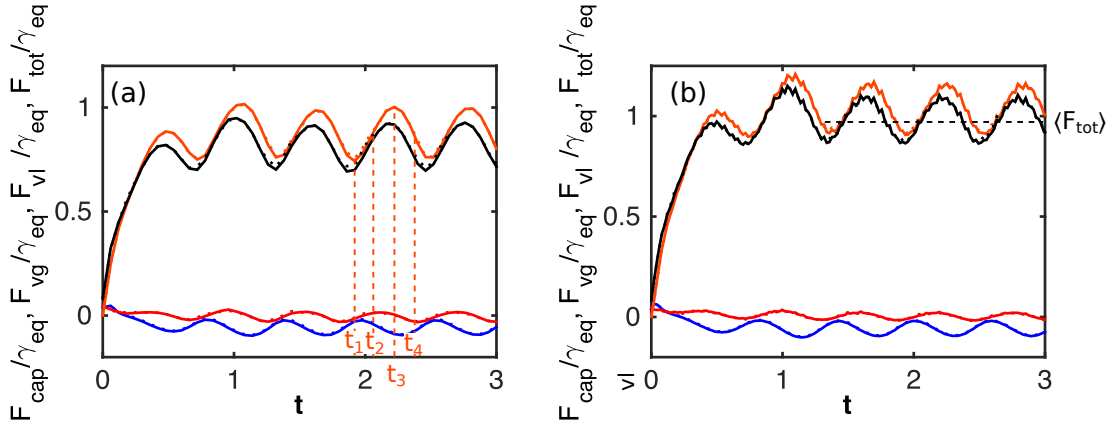


FIGURE 4. Forces applied by the fluids on the rigid plates for $Ca = 0.2$: solid lines: bottom plate, dotted lines: minus the forces on the top plate. From top to bottom: The orange lines correspond to the capillary force F_{cap} , the black lines to the total force $F_{tot} = F_{cap} + F_{vg} + F_{vl}$, the blue lines to the viscous force in the gas F_{vg} and the red lines to the viscous force in the liquid F_{vl} . (a) Without surfactant, (b) with surfactants at $Bi = 10$ and $Pe = 1$.

($t = 2/\sqrt{3} \approx 1.2$ in reduced variables). To be more quantitative, we turn to the forces exerted on the plates. The tangential force per unit width F_{tot} exerted by the fluids on the bottom plate can be computed as the integral over the plate of $\mathbf{e}_x \cdot (\boldsymbol{\sigma} + \mathbf{T}_s) \cdot \mathbf{e}_z$. Whether surfactants are present or not, the total force F_{tot} can be separated in three contributions defined as follows:

(i) The capillary force at the contact lines $F_{cap} = -\sum_{\text{contact lines}} \gamma n_z \text{sgn}(n_x)$, with \mathbf{n} the normal to the interface,

(ii) The viscous drag force from the gaz, $F_{vg} = \int_{\text{gas-plate}} \mu_g (\partial u_x / \partial z) dx$,

(iii) The viscous drag force from the liquid, $F_{vl} = \int_{\text{liquid-plate}} \mu_l (\partial u_x / \partial z) dx$.

The forces exerted by the fluids on the top plate are obtained by applying a minus sign to the formulas above. All those forces are represented in figure 4 as a function of time in a dimensionless form, *i.e.* they are normalized by the equilibrium surface tension γ_0 in the surfactant-free case and γ_{eq} in the presence of surfactants. As a reminder, γ_{eq} is linked to γ_0 by the Langmuir equation of state (2.11) and with our parameter values γ_0/γ_{eq} is equal to 1.554. Similarly, capillary numbers are defined with respect to equilibrium surface tension.

Whether surfactants are present or not, the variations of the force with time exhibit common features. First, after one T1, the forces reach a stationary state and periodically oscillate around a mean value. This oscillation coincides with the T1 process. In the following, we do not examine the transient regime and focus only on the steady state. Second, forces computed on the bottom and top plates coincide, as expected from symmetry. Finally, the contribution of the capillary force is largely dominant over the two viscous components.

4.2. Macroscopic rheology: force versus velocity

We now examine the dependence of the mean total force on the capillary number. As visible in figure 5, $\langle F_{tot} \rangle$ increases with Ca and Pe , but decreases with Bi . Large

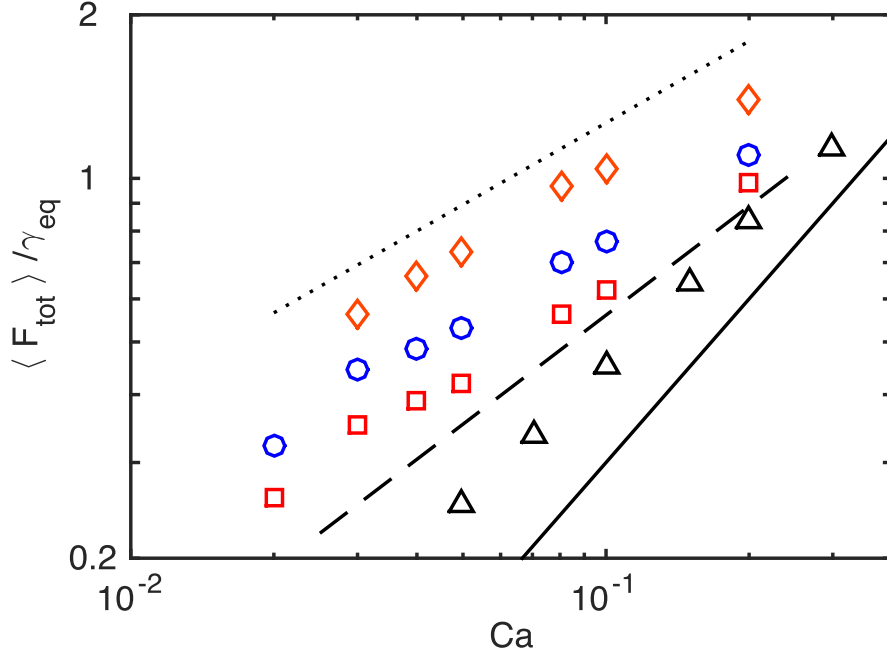


FIGURE 5. Mean total force $\langle F_{\text{tot}} \rangle$, divided by the equilibrium surface tension γ_{eq} as a function of the capillary number Ca . The different symbols correspond to: black triangles: no surfactants; red squares: $Pe = 1$, $Bi = 10$; blue circles: $Pe = 1$, $Bi = 0.1$; orange diamonds: $Pe = 100$, $Bi = 10$. The solid line corresponds to $\langle F_{\text{tot}} \rangle / \gamma_{\text{eq}} \sim Ca$, the dashed line to $\langle F_{\text{tot}} \rangle / \gamma_{\text{eq}} \sim Ca^{2/3}$ and the dotted line to $\langle F_{\text{tot}} \rangle / \gamma_{\text{eq}} \sim Ca^{1/2}$.

Péclet numbers imply that surfactants are significantly advected by the flow, while small Biot numbers involves slow adsorption compared to the flow timescale. In both cases, we expect a less homogeneous distribution of surfactants on the interface, hence the existence of Marangoni stresses, and a larger force. The origin of this force increase is discussed below. Now, for fixed Biot and Péclet numbers, the force appears to vary as a power law of the capillary number $\langle F_{\text{tot}} \rangle / \gamma_{\text{eq}} \sim Ca^n$, with an exponent n between 0.5 and 1. Large Pe seems to yield a smaller exponent, though the investigated range in Ca is too narrow to reach a clear-cut conclusion. Sublinear scalings are common in phenomena coupling viscous flows and surface tension, like the Landau-Levich problem (Landau & Levich 1942) or the sliding of bubbles against a wall (Bretherton 1961; Aussillous & Quéré 2002; Hodges *et al.* 2004). However, as underlined by Cantat (2013), several sublinear contributions can superimpose, making it difficult to identify the main dissipation mechanisms in the problem.

4.3. Velocity field, viscous dissipation and surfactant distribution

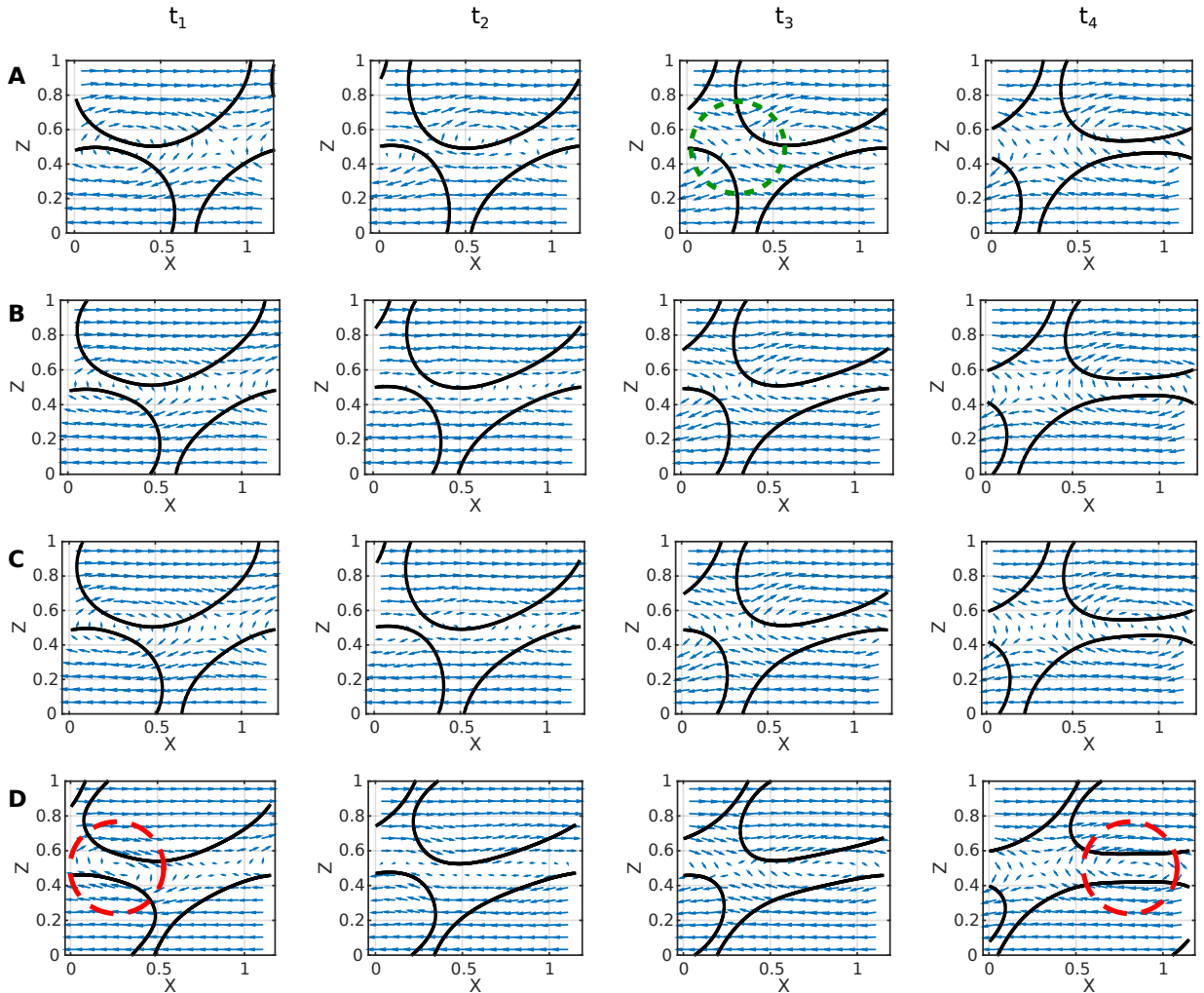
To get insight in the mechanisms at stake during the T1 process, we now characterise the local quantities. We do so for the four illustrative cases A-D given in table 1: they all have $Ca = 0.1$ but they differ in their Biot and Péclet numbers. The velocity fields, symbolized by arrows, are shown in figure 6. A derived quantity is the local rate of viscous dissipation defined as (see also Appendix B)

$$\mathcal{D}_{v,loc} = \nabla \mathbf{u} : [\mu(\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T)], \quad (4.1)$$

which is shown in figure 7. Finally, the concentration in surfactant is plotted in the bulk (figure 8) and along the interface (figure 9). The snapshots are taken at the following instants: time of the third minimum (t_1), average value (t_2), maximum (t_3) and average value (t_4) of the capillary force as defined in figure 4. For convenience of discussion,

Case	Ca	Surfactants	Bi	Pe	Σ	$\langle \tilde{D}_v \rangle$	$\langle \tilde{D}_s \rangle$
A	0.1	no	—	—	0	8.9	—
B	0.1	yes	0.1	1	0.24	9.9	5.4
C	0.1	yes	10	1	0.14	9.0	3.5
D	0.1	yes	10	100	1.4	19.1	1.8

TABLE 1. Parameters for the illustrative cases considered in figures 6, 7, 8 and 9.

FIGURE 6. Velocity field at times t_1 , t_2 , t_3 and t_4 (from left to right) defined in the text and in figure 4 for the cases A, B, C and D (from top to bottom) described in table 1. Arrows represent velocity vectors. The green dotted circle indicate the zone of extensional flow, while the red dashed circles show sheared films.

we identify the three distinct types of film (see figure 2): the stretched film, which increases in thickness, the squeezed film, which decreases in thickness, and the adjacent film separating bubbles laterally.

Our main observations are as follows:

(i) In the absence of surfactant, the velocity field is of elongational nature (see encircled stretched film of case A at instant t_3 in figure 6), the velocity vector being almost normal to the interface. The viscous dissipation is significant in the stretched film, but remains low in the squeezed film (see figure 7).

(ii) The interfacial profile of surfactant, that is the surface concentration $f(s)$ along the

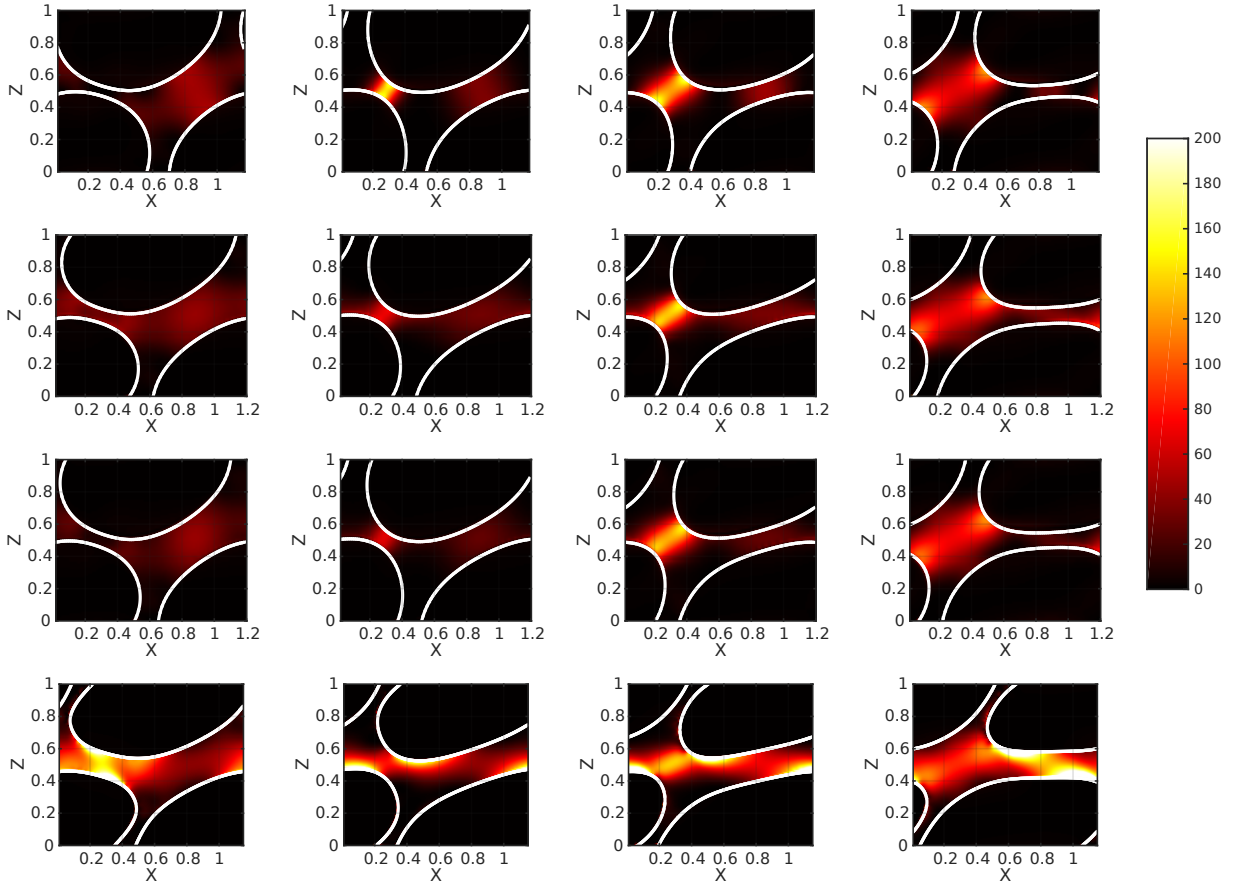


FIGURE 7. Local rate of viscous dissipation $\mathcal{D}_{v,loc}$ as defined by (4.1), at times t_1 , t_2 , t_3 and t_4 defined in the text (from left to right) and in figure 4 for the cases A, B, C and D (from top to bottom) described in table 1.

the curvilinear coordinate s , barely evolves with time during the bubble rearrangement. This is shown in figure 9a for case B, but applies more generally.

(iii) At intermediate Péclet number ($Pe = 1$), the effect of the Biot number which characterises the timescale of bulk/interface surfactant exchange (adsorption/desorption) is investigated by comparing case B ($Bi = 0.1$) and case C ($Bi = 10$). The influence of the Biot number remains limited when comparing the velocity profile and viscous dissipation distribution, which are quite similar in the two situations. Looking now at the surfactant distribution along the interface, we see in figure 9b that it is not homogeneous. This implies that Marangoni stresses are generated at the interface but they are not sufficient to induce a rigid-like behaviour of the interfaces for the flow (see below). Besides, the inhomogeneities in surfactant distribution are more pronounced at the interface (resp. in the bulk) for small (resp. large) Bi . This can be understood as follows. At small Bi , the bulk/interface exchanges are too slow to occur during the course of a rearrangement, while at large Bi , the gradient in interfacial concentration leads to surfactant desorption (resp. adsorption) in the zone enriched (resp. depleted) in surfactants, which smooths interfacial gradients but induces bulk inhomogeneities.

(iv) The effect of Péclet number is investigated by comparing cases C ($Pe = 1$) and D ($Pe = 100$). In the latter, new features appear in the flow. The direction of the velocity seems to be more parallel to the interface, the viscous dissipation is not only located in the stretched film but also in the squeezed one. The shear occurring in the latter (see squeezed film of case D at time t_1 and t_4 in figure 6) can only be supported by Marangoni stresses at the interface, where we consistently observe large gradient in

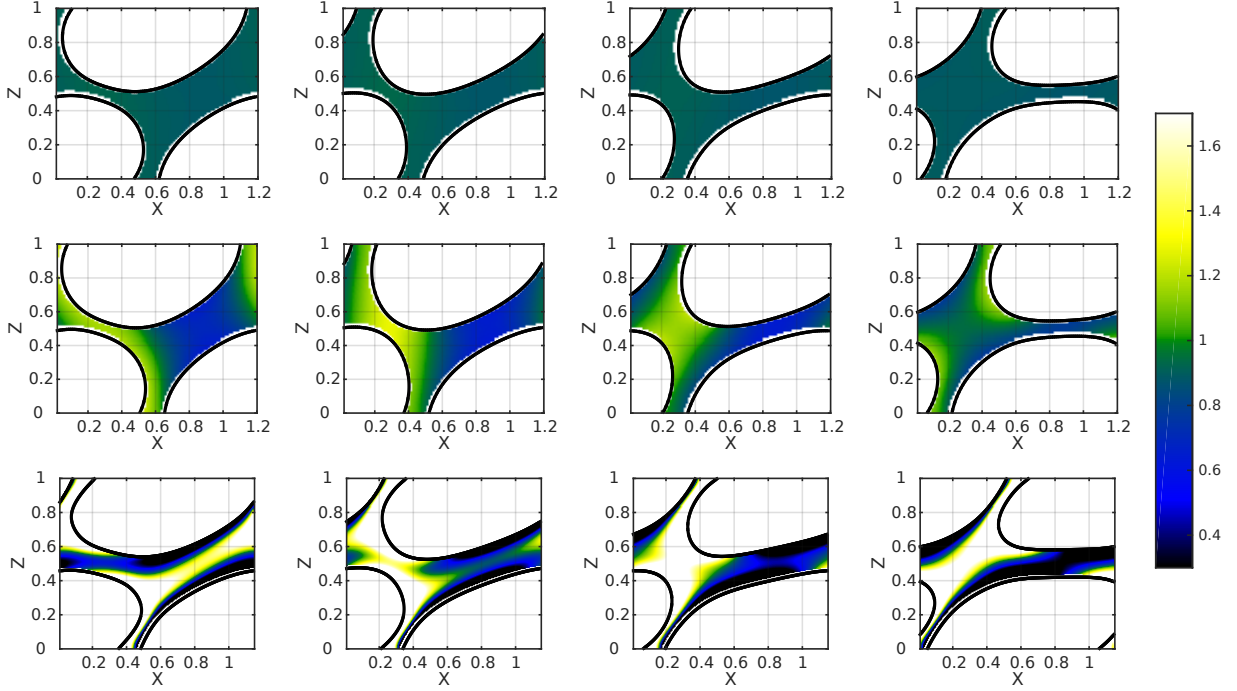


FIGURE 8. Bulk surfactant concentration F at times t_1 , t_2 , t_3 and t_4 (from left to right) defined in the text and in figure 4 for the cases B, C and D (from top to bottom) described in table 1. Note that for clarity, the F -scale has been truncated to values below 1.7, while F actually takes larger values in case D.

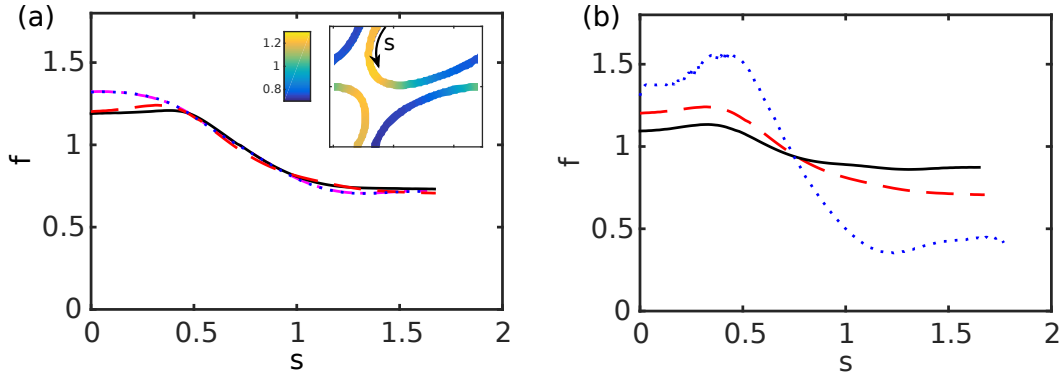


FIGURE 9. (a) Interfacial surfactant concentration f as a function of the curvilinear coordinate s (defined in figure 2 and in the inset) for case B (see table 1) at instants t_1 (pink dash-dotted line), t_2 (solid black line), t_3 (red dashed line), t_4 (blue dotted line) defined in the text and in figure 4. Inset: snapshot of the interfacial surfactant distribution (f is color-coded) at instant t_3 . (b) f as a function of s at instant t_3 for cases B (red dashed line), C (solid black line) and D (blue dotted line) (see table 1).

interfacial concentration (figure 9b). These large interfacial gradients also lead to large bulk inhomogeneities in surfactant distribution. It seems that in this case, shearing of the liquid is the main mechanism of foam flow. This last point echoes recent experimental observations in another geometry where switching from elongational profile to shearing has been observed varying the surfactant properties (Petit *et al.* 2015) or deformation rate (Seiwert *et al.* 2013).

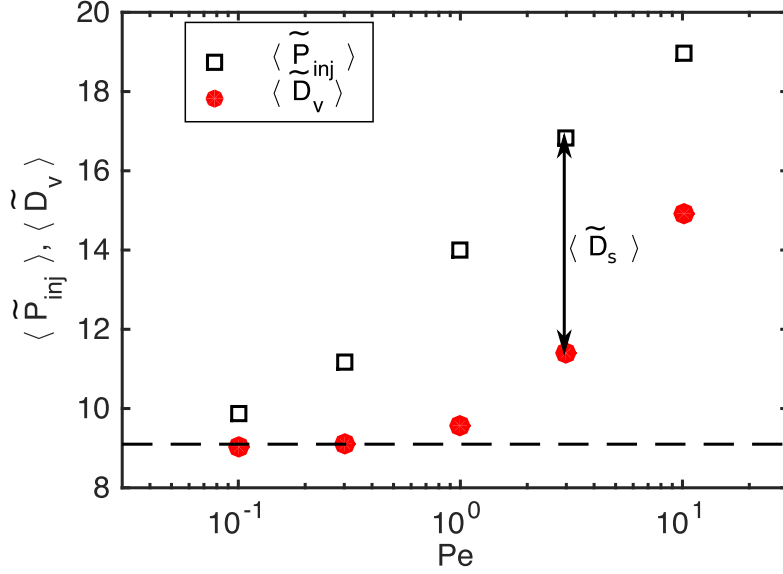


FIGURE 10. Temporally averaged viscous dissipation $\langle \tilde{\mathcal{D}}_v \rangle$ (red circles) and injected power $\langle \tilde{\mathcal{P}}_{inj} \rangle$ (black squares) as a function of the Péclet number for $Ca = 0.1$ and $Bi = 1$. The dashed line corresponds to the injected power $\langle \tilde{\mathcal{P}}_{inj} \rangle$ for the case without surfactants.

4.4. Surface or bulk dissipation

4.4.1. Bulk dissipation

Our qualitative observations indicate that tuning the surfactant properties (desorption rate, diffusivity) not only affects the elongation of the interfaces and the surfactant distribution, but also the nature of flow, by changing the interfacial boundary condition from mobile to rigid-like interface. To put this point on a quantitative basis, we first calculate the total viscous dissipation $\mathcal{D}_v = \int_V \mathcal{D}_{v,loc} dV$, with $\mathcal{D}_{v,loc}$ given by (4.1). The non-dimensional and temporally averaged viscous dissipation rate $\langle \tilde{\mathcal{D}}_v \rangle$ is reported in figure 10 as a function of Pe for $Ca = 0.1$ and $Bi = 1$. It exhibits an increase by 60 % in our range of Péclet number at fixed capillary number (*i.e.* the shear rate). This is only possible if the nature of the flow is fundamentally changing. For shear to exist in the films, the interfacial stress needs to be large enough to sustain the viscous stress at the interface. To verify that this is actually the case, we introduce the ratio

$$\Sigma = \frac{h_{\min} |\nabla_s \gamma|_{\max}}{\mu U}. \quad (4.2)$$

Here, h_{\min} is the minimum thickness reached during the T1 by the squeezed or stretched films. Σ thus compares the maximum value of Marangoni stress $|\nabla_s \gamma|_{\max}$ along the interface to the typical viscous stress for sheared films $\mu U / h_{\min}$. Σ is zero for (mobile) stress-free interfaces, while it should be of order 1 for rigid-like interfaces sustaining shear. Values of Σ are reported for A-D cases in table 1, and are plotted as a function of the Péclet number in figure 11a. One can indeed observe that the surface stress becomes comparable to the viscous stress as soon as Péclet number reaches 2, in full agreement with our previous observations.

We now turn to the influence of the capillary number on the viscous dissipation (figure 12a). This plot shows that the (time averaged) dimensionless viscous dissipation $\langle \tilde{\mathcal{D}}_v \rangle$ decreases with the capillary number. This may seem counter-intuitive as one expects the dissipation to increase with the velocity, but it should be kept in mind that the actual viscous dissipation corresponds to $\langle \mathcal{D}_v \rangle = \rho_l U^3 H \langle \tilde{\mathcal{D}}_v \rangle = \mu_l U^2 \langle \tilde{\mathcal{D}}_v \rangle$ since we have $Re = 1$.

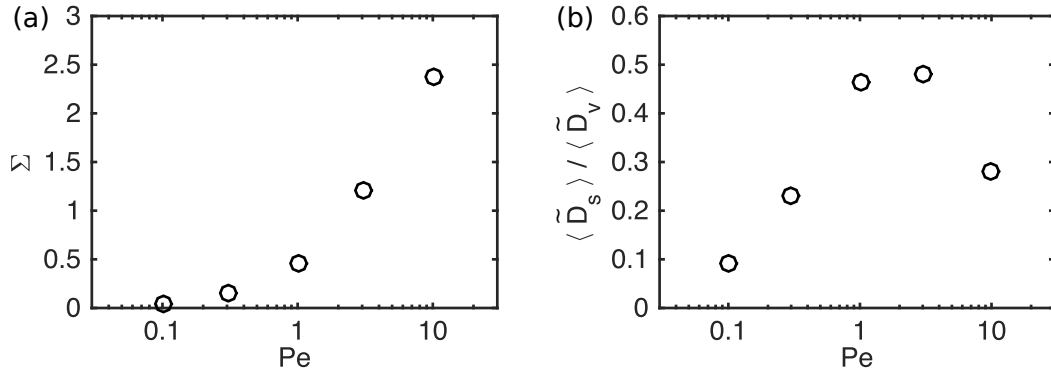


FIGURE 11. (a) Ratio Σ of Marangoni to viscous shear stress, as defined by (4.2), as a function of Pe for the simulations of figure 10. (b) Ratio $\langle \tilde{D}_s \rangle / \langle \tilde{D}_v \rangle$ of the effective surface dissipation over viscous dissipation, as a function of Péclet number, for the same simulations.

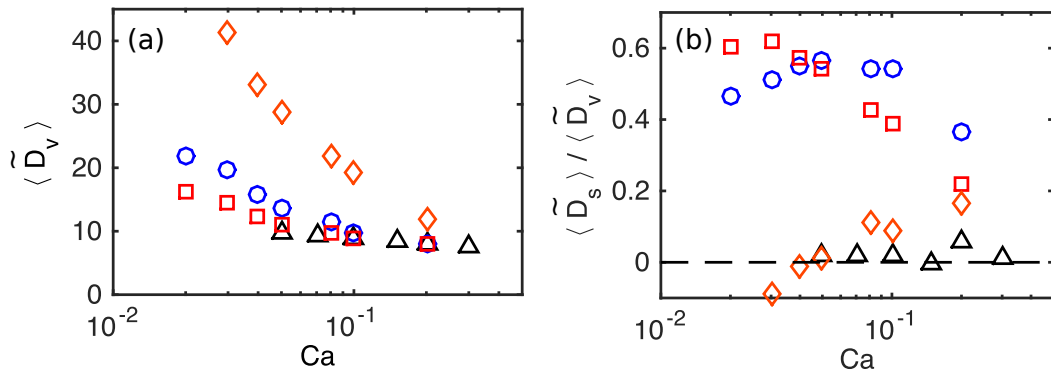


FIGURE 12. (a) Average viscous dissipation $\langle \tilde{D}_v \rangle$ as a function of Ca for different Péclet and Biot numbers (same symbols as in figure 5). (b) Ratio $\langle \tilde{D}_s \rangle / \langle \tilde{D}_v \rangle$ of the effective surface dissipation over the bulk viscous dissipation, as a function of Ca (same symbols as in figure 5).

This quantity indeed increases with the capillary number but slower than Ca^2 , as in the problem of a bubble sliding against a plane (Cantat 2013). This is a consequence of the sublinear behavior of the total force as a function of Ca .

Finally, based on our estimation of the viscous dissipation, we can compare the relative contributions of inertia and viscosity in the flow. As explained in Appendix C, and although the Reynolds number is fixed to unity, we have found that the role of inertia remains limited in our simulations, presumably because of the confinement of the liquid films.

4.4.2. Work by surface tension

We have shown that the liquid flow is of a different nature when the surfactant properties are modified and that at high Péclet numbers, the distribution of interfacial surfactants becomes increasingly inhomogeneous, and the viscous dissipation increases. Now, if we compute the injected power \mathcal{P}_{inj} (as the plate velocity times the applied force), it is apparent in figure 10 that $\langle \mathcal{P}_{\text{inj}} \rangle$ may be larger than the average viscous dissipation. The difference reveals the work done by surface tension $\mathcal{D}_s = \int_{\Gamma} \gamma (\nabla_s \cdot \mathbf{u}) dS$, as discussed in Appendix B. This term can be seen as the 2D analogue of the work done by pressure forces in compressible fluids. Numerically, the evaluation of this interfacial quantity is delicate. However, in steady state, the variation of kinetic energy over a rearrangement period should be zero, so that the time-averaged work by surface tension $\langle \mathcal{D}_s \rangle$ can be readily calculated as $\langle \mathcal{P}_{\text{inj}} \rangle - \langle \mathcal{D}_v \rangle$. Looking at $\langle \mathcal{D}_s \rangle$ as a function of Pe , we see in figure 10

that it tends to zero with vanishing Pe (in this case, the interface is homogeneous, and the surface tension constant, as in the absence of surfactants), but that otherwise, this contribution is positive. This suggests that the work by surface tension may be seen as an effective dissipation on the surfactant-covered interface (hence our notation \mathcal{D}_s). Note that the interfaces considered here have no intrinsic surface viscosities and thus lack the corresponding additional term. However, even without this effect, it is of interest to investigate which contribution, surface or viscous, dominates the dissipation.

Figure 11b shows the ratio $\langle \tilde{\mathcal{D}}_s \rangle / \langle \tilde{\mathcal{D}}_v \rangle$, as a function of the Péclet number for $Bi = 1$ and $Ca = 0.1$. One can observe a maximum (≈ 0.5) reached at intermediate Péclet numbers (≈ 1). This result is reminiscent of the famous model of Lucassen & van den Tempel (1972) for interfacial viscoelasticity: assuming instantaneous adsorption/desorption but diffusion in the bulk, it predicts that the interfacial loss modulus—which characterises the viscous response of the interface—vanishes at both high and small frequencies (analogous to large and small Péclet number respectively), but goes through a maximum at intermediate frequencies. Figure 12b shows the dependence of $\langle \tilde{\mathcal{D}}_s \rangle / \langle \tilde{\mathcal{D}}_v \rangle$ as a function of the capillary number Ca for different Bi and Pe parameters. The values of $\langle \tilde{\mathcal{D}}_s \rangle$ and $\langle \tilde{\mathcal{D}}_v \rangle$ for the illustrative cases A-D are also reported in table 1. No clear tendency is visible as the capillary or Biot numbers are changed but the effect of Péclet number evidenced above is recovered[†].

To recapitulate, the key point is that for all systems considered here, the viscous dissipation is always dominant. This conclusion holds even if the pattern of dissipation is changing with the surfactant properties. At low Péclet number, the interfaces are not able to sustain the viscous stress and the flow is mainly elongational. At intermediate Péclet number, the ratio between surface and bulk dissipation reaches a maximum. This is the threshold above which interfacial stress sustains viscous shear, and viscous dissipation starts to increase with the Péclet number (figure 10). These results are supported by recent experiments in a model system (Petit *et al.* 2015) where the flow in the film is observed to be of elongational or shear types depending on the surfactant nature. However, the resulting picture presented here is very different from other scenarios previously put forward in the literature for dissipation. In particular, Tcholakova *et al.* (2008) showed that surface viscoelasticity can dominate the rheology and the total dissipation in macroscopic foams, while Durand & Stone (2006) and Biance *et al.* (2009) also concluded that it plays the major role in their experiments of T1 dynamics. These point to the role of intrinsic surface viscosities, known to be large in some experimental systems (Golemanov *et al.* 2008).

As a final remark, we recall that the liquid fraction in our system is high ($\psi_l = 30\%$), contrary to experiments; we anticipate that the dominant source of dissipation may change at low liquid content. To test this point, we performed additional simulations at $Pe = 1$, $Bi = 1$ and $Ca = 0.1$, for various liquid fractions in the range $\psi_l = 17 - 40\%$. These results are shown in figure 13: We find that the injected power $\langle \tilde{P}_{inj} \rangle$ decreases with increasing liquid fraction ψ_l , while the viscous dissipation $\langle \tilde{\mathcal{D}}_v \rangle$ barely changes. This indicates that the effective surface dissipation $\langle \tilde{\mathcal{D}}_s \rangle$ indeed becomes larger for drier foams, as shown in figure 13b. However, the liquid fraction range remains limited and additional numerical developments are necessary to reach realistic liquid fractions, as explained in the conclusion.

[†] Note that points for the no-surfactant system are also shown in figure 12b: in this case, the effective surface dissipation should be zero, as the surface tension is uniform. We attribute the comparatively small scatter of the numerical points around the zero value to inaccuracy in the calculation of viscous dissipation due to the non-negligible width of the interfaces in our simulations.

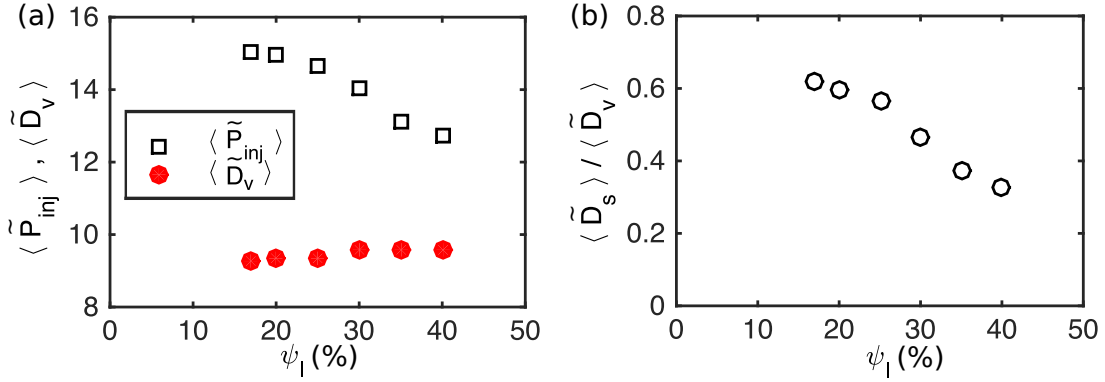


FIGURE 13. (a) Temporally averaged viscous dissipation $\langle \tilde{D}_v \rangle$ (red circles) and injected power $\langle \tilde{P}_{inj} \rangle$ (black squares) as a function of liquid fraction ψ_l . Other parameters are $Ca = 0.1$, $Bi = 1$ and $Pe = 1$. (b) Ratio $\langle \tilde{D}_s \rangle / \langle \tilde{D}_v \rangle$ of the effective surface dissipation over viscous dissipation, as a function of liquid fraction ψ_l , for the same simulations.

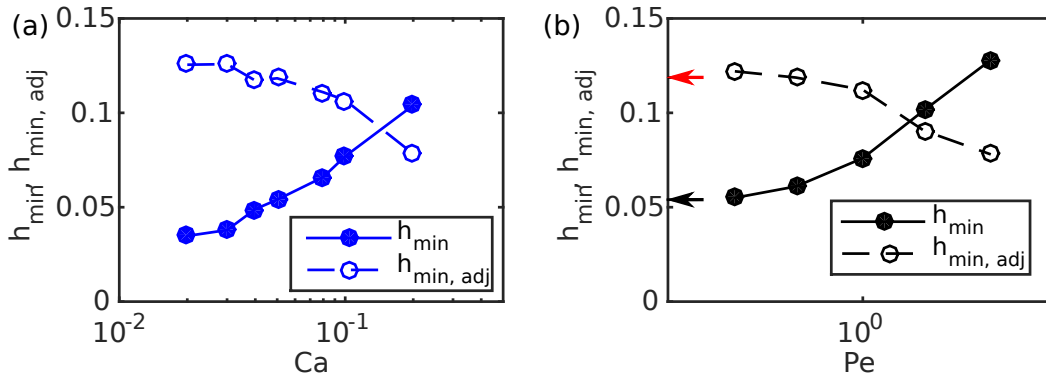


FIGURE 14. (a) Liquid film thicknesses h_{min} and $h_{min,adj}$ as a function of Ca for $Bi = 0.1$ and $Pe = 1$. (b) h_{min} and $h_{min,adj}$ as a function of Pe for $Ca = 0.1$ and $Bi = 1$. The black (resp. red) arrow indicates the value of h_{min} (resp. $h_{min,adj}$) without surfactants.

4.5. Film thickness and film rupture

Finally, we examine how the liquid distribution is modified by the coupling between flow and surface tension effects. An observation of the interfaces in the illustrative cases A-D (see figure 6 for instance) indicates that the thickness of liquid films depends on the parameter set. To analyse this point quantitatively, we extract for each simulation the minimum thickness of sheared films h_{min} (which separate top bubbles from bottom ones), as well as $h_{min,adj}$ the minimum thickness between adjacent (top-top or bottom-bottom) bubbles (see figure 2). Figure 14 reports both thicknesses as functions of Ca and Pe . We observe that h_{min} increases with Ca , as in the problem of bubbles sliding along a rigid plane (Cantat 2013). Meanwhile, due to volume conservation, $h_{min,adj}$ is reduced. Besides, for larger Pe , h_{min} also increases, as expected for more rigid-like interfaces. These observations have implications for the (in)stability of foams against coalescence. It has been shown (Biance *et al.* 2011) that foam collapse, *i.e.* the occurrence of coalescence avalanches, can be triggered by bubble rearrangements. The suggested mechanism is that some liquid films might become extremely thin in the course of the T1 event, leading to its breaking. Our results may provide information on the probable location of film breaking, which might prove valuable in further studies of foam collapse.

5. Conclusion

We presented numerical simulations of T1 events in a 2D semi-periodic system of sheared bubbles. The level-set method employed fully accounts for the coupling between the flow dynamics —incompressible Navier-Stokes equations— and the dynamics of surfactants —bulk and interfacial diffusion, as well as bulk/interface exchanges.

Our approach offers a detailed view of all local fields in the course of a bubble rearrangement and enables us to investigate the relative importance of diffusion, desorption/adsorption, viscous effects and surface tension through a parametric study of Péclet, Biot and capillary numbers. A key result of our simulations is that surfactant inhomogeneities are able to build up Marangoni stresses at the liquid-gas interfaces, with deep consequences on the nature of viscous dissipation, including the appearance of shear flow in the liquid films between the bubbles. We also identify regimes where the work by surface tension leads to an effective surface dissipation, which is reminiscent of the effective surface viscosity developed in the classical model of surface dilatational viscoelasticity of Lucassen & van den Tempel (1972). Besides, we show that as the capillary number increases, the mechanical response of the system is strongly affected by the surfactant dynamics, thus providing microscopic insight to understand foam or emulsion rheology. Finally, our detailed view of liquid distribution in films may provide hints on the possible location for film rupture, and subsequent foam collapse.

Perspectives of this work are many, but are all motivated by bringing our simulated systems closer to real foams. So far, the limitations of our system are the following: (i) the geometry is two-dimensional; (ii) the density and viscosity ratios between the liquid and the gas have been set to 10, which implies that the effect of the gas is not negligible as we would expect in real foams; (iii) we only consider the case of bubbles pinned against a solid wall, which hinders the flow and surfactant dynamics as compared to bubbles in the bulk of a foam; (iv) we consider a very wet system, with unrealistically thick films. Regarding the first two points: extension to three-dimensional systems and more realistic density and viscosity values is straightforward but will prove demanding in terms of computation time. The third point can be addressed by imposing some pseudo-periodic boundary conditions in the vertical direction —accounting for the opposite velocities between top and bottom edges. In contrast, reaching the low liquid fractions characteristic of actual foams will require new developments, including additional terms to prevent bubble coalescence upon contact. In actual foams, coalescence is prevented by non-hydrodynamical forces, such as disjoining pressure (Israelachvili 2010) (including van der Waals, electrostatic or steric interactions), which are short-ranged and thus computationally expensive. These non-hydrodynamic forces are also expected to be crucial in bubble coalescence, which would deserve further studies to understand how foam collapse can be triggered by bubble rearrangements. Finally, future work will also account for intrinsic surface dilatational and shear viscosities. This would allow to assess the relative importance of these contributions in foam rheology, and open the way to a microscopic understanding of the link between foam macroscopic behavior and interfacial properties.

Acknowledgements. The authors thank GENCI for access to the national super-computer facilities and the région Rhône-Alpes through ARC Énergies for funding. We thank Zlatko Solomenko for his help with the numerical code.

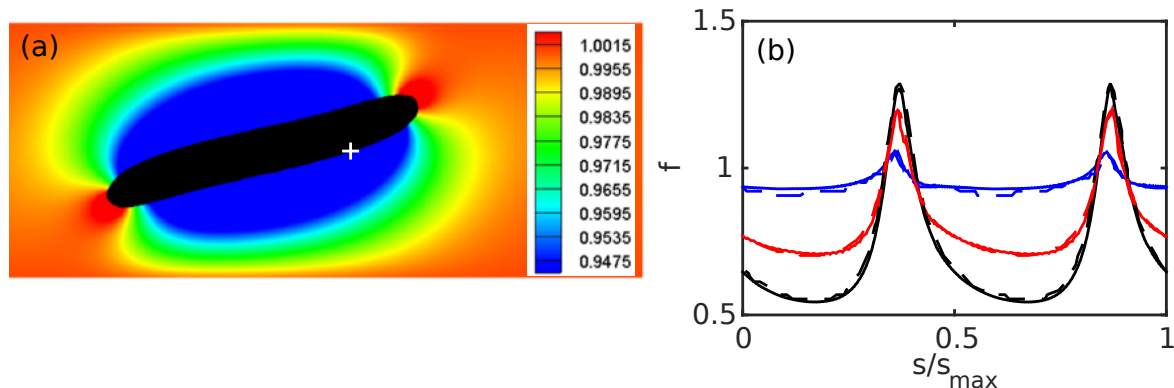


FIGURE 15. Simulations of a sheared droplet: (a) Droplet shape (black) and bulk surfactant concentration (colors) at $t = 2H/U$ for $Bi = 20$, $Pe_F = 8$ and all other parameters set to values similar to Teigen *et al.* (2011). (b) Interfacial surfactant concentration f as a function of the normalized curvilinear coordinate s/s_{\max} for three parameter sets corresponding to increasing inhomogeneities: (blue) $Bi = 20$ and $Pe_F = 8$; (red) $Bi = 2$ and $Pe_F = 80$; (black) $Bi = 0.2$ and $Pe_F = 8$. Solid lines are results from our level-set simulations, while the dashed lines were obtained by Teigen *et al.* (2011) using a diffuse-interface approach. The coordinate s increases clockwise and its origin is shown by the white cross in (a).

Appendix A. Validation of the numerical method

Several validations have been conducted on the numerical method. First, as regards numerical stability, we first investigated the generation of spurious currents (Solomenko *et al.* 2017), using as a test configuration a bubble at rest. Not only were those currents found of negligible magnitude, with a relative velocity variation below 10^{-3} but the presence of surfactants actually results in a damping of these unwanted velocity fluctuations. Second, we observed with the initial implementation a significant drift in the total amount of surfactants; the problem was overcome by adjusting the boundary conditions on the plate as described in Sec. 3.2.1. Finally a quantitative comparison was made to the results of Teigen *et al.* (2011) obtained with a diffuse-interface method. The configuration is close to ours, with a single bubble sheared by the motion of bottom and top plates (figure 15a). Shown in figure 15b is the surfactant concentration f as a function of the position s along the interface for several values of the Biot and Péclet numbers. Our curves are in close agreement with those of Teigen *et al.* (2011).

Appendix B. Viscous dissipation and work by surface forces

In the following, we detail the different contributions to dissipation in our system. The total variation of kinetic energy K is given by

$$\frac{dK}{dt} = \int_V \rho \mathbf{u} \cdot \frac{D\mathbf{u}}{Dt} dV. \quad (\text{B } 1)$$

Substituting the acceleration term from the generalized Navier-Stokes equation (2.4) with the total stress tensor $\mathbf{T}_{\text{tot}} = \boldsymbol{\sigma} + \mathbf{T}_s$, we obtain

$$\frac{dK}{dt} = \int_V \mathbf{u} \cdot (\nabla \cdot \mathbf{T}_{\text{tot}}) dV, \quad (\text{B } 2)$$

or

$$\frac{dK}{dt} = \int_V \nabla \cdot (\mathbf{u} \cdot \mathbf{T}_{\text{tot}}) dV - \int_V (\nabla \mathbf{u} : \mathbf{T}_{\text{tot}}) dV. \quad (\text{B } 3)$$

Using Green-Ostogradsky theorem, the first term can be rewritten as an integral over the volume boundary S , here the top and bottom plates:

$$\int_V \nabla \cdot (\mathbf{u} \cdot \mathbf{T}_{\text{tot}}) dV = \int_S \mathbf{u} \cdot \mathbf{T}_{\text{tot}} \cdot \mathbf{n} dS = \int_{S,\text{top}} UT_{\text{ext,top}} dS - \int_{S,\text{bot}} UT_{\text{ext,bot}} dS, \quad (\text{B } 4)$$

with T_{ext} the stress exerted on the fluid at the plates and U the plate velocity. Since the total stress includes a bulk contribution (pressure and viscous stress) and a surface one (interfacial stress tensor), this results for the top plate in a viscous contribution, which reads per unit width,

$$UF_v = \int_{S,\text{top}} \mu U \frac{\partial u_x}{\partial z} dx, \quad (\text{B } 5)$$

and a capillary one

$$UF_{\text{cap}} = \sum_{\text{contact lines}} U \gamma \cos(\theta), \quad (\text{B } 6)$$

with θ the angle between the normal to the interface and the z -axis. The two above equations are used in sections 4.1 and 4.2 to compute the forces at the wall. Note also that equation (B 4) corresponds to the instantaneous injected power \mathcal{P}_{inj} .

We now focus on the second term in the right-hand side of (B 3), which represents the dissipation rate in the system,

$$\mathcal{D} = \int_V (\nabla \mathbf{u} : \mathbf{T}_{\text{tot}}) dV. \quad (\text{B } 7)$$

Using the expression for the total stress \mathbf{T}_{tot} and the fact that the flow is incompressible yields

$$\mathcal{D} = \mathcal{D}_v + \mathcal{D}_s = \int_V \nabla \mathbf{u} : [\mu(\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T)] dV + \int_V \nabla \mathbf{u} : \mathbf{T}_s dV. \quad (\text{B } 8)$$

Whereas the first term \mathcal{D}_v corresponds to usual viscous dissipation as computed in section 4.4.1, the second term \mathcal{D}_s is a contribution from the liquid-gas interfaces which can be rewritten as

$$\mathcal{D}_s = \int_{\Gamma} \nabla \mathbf{u} : (\gamma \mathbf{I}_s) dS = \int_{\Gamma} \gamma (\nabla_s \cdot \mathbf{u}) dS. \quad (\text{B } 9)$$

\mathcal{D}_s can be interpreted as the rate of change of surface energy (Dangla 2012) or as the instantaneous work done by surface tension, a 2D analogue of the work done by pressure forces in compressible fluids. In general, this quantity can take either positive values (e.g. if interfaces are being stretched) or negative values (e.g. for homogeneous γ if interfaces are being compressed). Note, however, that if surface dilatational viscosity μ_s were incorporated in the expression of the interfacial stress tensor \mathbf{T}_s (Erni 2011; Sagis 2011), this would contribute to \mathcal{D}_s as $\int_{\Gamma} \mu_s (\nabla_s \cdot \mathbf{u})^2 dS$ which is always positive, and indeed corresponds to a true dissipation term.

As the shear-driven T1 events considered in our simulations quickly reach a steady state, we also consider the energy balance (B 3) after time-averaging over one period. Since the kinetic energy is constant on average ($\langle dK/dt \rangle = 0$), this reduces to

$$\langle \mathcal{P}_{\text{inj}} \rangle = \langle \mathcal{D}_v \rangle + \langle \mathcal{D}_s \rangle, \quad (\text{B } 10)$$

which we use in the present study to estimate the average surface work $\langle \mathcal{D}_s \rangle$. For interfaces with constant surface tension γ_0 , $\langle \mathcal{D}_s \rangle = \gamma_0 \langle \int_{\Gamma} (\nabla_s \cdot \mathbf{u}) dS \rangle$ would vanish as the variation in total length averages to zero. However, for surfactant-laden interfaces, we found that $\langle \mathcal{D}_s \rangle$ can be significant in magnitude ($\approx \langle \mathcal{D}_v \rangle / 2$), and is generally positive, which we interpret as an effective surface dissipation.

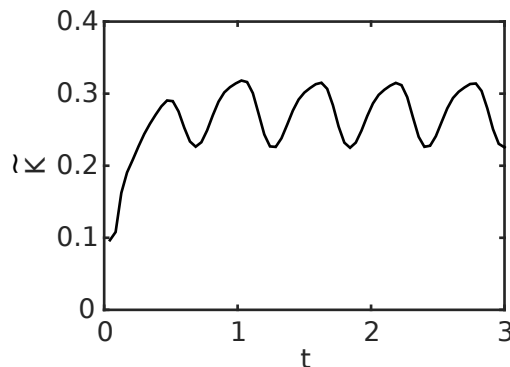


FIGURE 16. Dimensionless kinetic energy \tilde{K} as a function of time t for case A (see table 1).

Appendix C. Influence of inertia

Our simulations were conducted for $Re = \mu_l UH/\rho_l = 1$. The Reynolds number compares inertial and viscous effects, so that inertia is not negligible here a priori. However, in our configuration, viscous flows are mostly confined in the liquid films which separate bubbles, and viscosity may thus dominate inertia. To quantify this point in the illustrative case A (no surfactants, $Ca = 0.1$, see table 1), we consider the total kinetic energy of the system $K = \int dV \rho |\mathbf{u}|^2$, which is reported in dimensionless form as a function of time in figure 16. As expected, we find that, after a transient, the kinetic energy oscillates as rearrangements proceed. The average kinetic energy is $\langle \tilde{K} \rangle \approx 0.3$ whereas the oscillation amplitude is of order 0.1 and its period ≈ 0.6 , from which we obtain a rough estimate of $d\tilde{K}/dt \approx 0.2$. To assess the importance of inertia compared to viscous forces, we finally compare this value to the average viscous dissipation in the same simulation, which is $\langle \tilde{D}_v \rangle = 8.9$ (table 1): as a first approximation, the effect of inertia can be neglected in the present simulations.

REFERENCES

- AUSSILLOUS, P. & QUÉRÉ, D. 2002 Bubbles creeping in a viscous liquid along a slightly inclined plane. *Europhys. Lett.* **59**, 370–376.
- BEL FDHILA, R. & DUINEVELD, P. C. 1996 The effect of surfactant on the rise of a spherical bubble at high Reynolds and Peclet numbers. *Phys. Fluids* **8** (2), 310–321.
- BESSON, S., DEBREGEAS, G., COHEN-ADDAD, S. & HÖHLER, R. 2008 Dissipation in a sheared foam: From bubble adhesion to foam rheology. *Phys. Rev. Lett.* **101** (21), 214504.
- BIANCE, A.-L., COHEN-ADDAD, S. & HOEHLER, R. 2009 Topological transition dynamics in a strained bubble cluster. *Soft Matter* **5** (23), 4672–4679.
- BIANCE, ANNE-LAURE, DELBOS, ALINE & PITOIS, OLIVIER 2011 How topological rearrangements and liquid fraction control liquid foam stability. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 068301.
- BRACKBILL, J. U., KOTHE, D. B. & ZEMACH, C. 1992 A continuum method for modeling surface tension. *J Comput. Phys.* **100**, 335–354.
- BREHERTON, F. P. 1961 The motion of long bubbles in tubes. *J. Fluid Mech.* **10** (2), 166.
- BREWARD, C. J. W. & HOWELL, P. D. 2002 The drainage of a foam lamella. *J. Fluid Mech.* **458**, 379–406.
- BUZZA, D.M.A., LU, C.-Y. D. & CATES, ME 1995 Linear shear rheology of incompressible foams. *J. Physique II* **5** (1), 37–52.
- CANTAT, I. 2011 Gibbs elasticity effect in foam shear flows: a non quasi-static 2d numerical simulation. *Soft Matter* **7**, 448–455.
- CANTAT, I. 2013 Liquid meniscus friction on a wet plate: Bubbles, lamellae, and foams. *Phys. Fluids* **25** (3), 1–21.

- CANTAT, I., COHEN-ADDAD, S., ELIAS, F., GRANER, F., HÖHLER, R., PITOIS, O., ROUYER, F. & SAINT-JALMES, A. 2010 *Les mousses - Structure et dynamique*. Belin.
- CHAMPOUGNY, L., SCHEID, B., RESTAGNO, F., VERMANT, J. & RIO, E. 2015 Surfactant-induced rigidity of interfaces: a unified approach to free and dip-coated films. *Soft Matter* **11** (14), 2758–2770.
- COHEN-ADDAD, S., HÖHLER, R. & PITOIS, O. 2013 Flow in Foams and Flowing Foams. *Ann. Rev. Fluid Mech.* **45** (1), 241–267.
- COSTA, S., HÖHLER, R. & COHEN-ADDAD, S. 2013 The coupling between foam viscoelasticity and interfacial rheology. *Soft Matter* **9** (4), 1100–1112.
- CUENOT, B., MAGNAUDET, J. & SPENNATO, B. 1997 The effects of slightly soluble surfactants on the flow around a spherical bubble. *J. Fluid Mech.* **339**, 25–53.
- DANGLA, R. 2012 2D droplet microfluidics driven by confinement gradients. PhD thesis, Ecole Polytechnique.
- DENKOV, N. D., SUBRAMANIAN, V., GUROVICH, D. & LIPS, A. 2005 Wall slip and viscous dissipation in sheared foams: Effect of surface mobility. *Colloids Surf. A* **263**, 129–145.
- DENKOV, N. D., TCHOLAKOVA, S., GOLEMANOV, K., ANANTHAPADMANABHAN, K. P. & LIPS, A. 2008 Viscous friction in foams and concentrated emulsions under steady shear. *Phys. Rev. Lett.* **100** (13), 138301.
- DENKOV, N. D., TCHOLAKOVA, S., GOLEMANOV, K., SUBRAMANIAN, V. & LIPS, A. 2006 Foam wall friction: Effect of air volume fraction for tangentially immobile bubble surface. *Colloids Surf. A* **282**, 329–347.
- DIETER-KISLING, K., MARSCHALL, H. & BOTHE, D. 2015 Direct Numerical Simulation of droplet formation processes under the influence of multiple surfactants. *Comput. Fluids* **113**, 93–105.
- DURAND, M., MARTINOTY, G. & LANGEVIN, D. 1999 Liquid flow through aqueous foams: From the Plateau border-dominated regime to the node-dominated regime. *Phys. Rev. E* **60** (6), R6307–R6308.
- DURAND, M. & STONE, H. A. 2006 Relaxation Time of the Topological T1 Process in a Two-Dimensional Foam. *Phys. Rev. Lett.* **97** (22), 226101.
- DURIAN, D. J. 1995 Foam Mechanics at the Bubble Scale. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4780.
- DURIAN, D. J. 1997 Bubble-scale model of foam mechanics: Melting, nonlinear behavior, and avalanches. *Phys. Rev. E* **55**, 1739–1751.
- EDWARDS, DAVID, BRENNER, HOWARD & WASAN, DARSH T. 1991 *Interfacial Transport Processes and Rheology*. Boston: Butterworth-Heinemann.
- EGGLETON, C. D., TSAI, T. M. & STEBE, K. J. 2001 Tip streaming from a drop in the presence of surfactants. *Phys. Rev. Lett.* **87** (4), 048302.
- ERNI, P. 2011 Deformation modes of complex fluid interfaces. *Soft Matter* **7** (17), 7586.
- GOLEMANOV, K., DENKOV, N. D., TCHOLAKOVA, S., VETHAMUTHU, M. & LIPS, A. 2008 Surfactant Mixtures for Control of Bubble Surface Mobility in Foam Studies. *Langmuir* **24**, 9956–9961.
- HODGES, S. R., JENSEN, O. E. & RALLISON, J. M. 2004 Sliding, slipping and rolling: the sedimentation of a viscous drop down a gently inclined plane. *J. Fluid Mech.* **512**, 95–131.
- HÖHLER, R. & COHEN-ADDAD, S. 2005 Rheology of liquid foam. *J. Phys.: Condens. matter* **17** (41), R1041–R1069.
- HUTZLER, S., SAADATFAR, M., VAN DER NET, A., WEAIRE, D. & COX, S. J. 2008 The dynamics of a topological change in a system of soap films. *Colloids Surf. A* **323** (1-3), 123–131.
- ISRAELACHVILI, J. 2010 *Intermolecular and Surface Forces, Third Edition*. Academic Press.
- KERN, N., WEAIRE, D., MARTIN, A., HUTZLER, S. & COX, S. J. 2004 Two-dimensional viscous froth model for foam dynamics. *Physical Review E* **70** (4).
- KRAYNIK, A. M., REINELT, D. A. & PRINCEN, H. M. 1991 The nonlinear elastic behavior of polydisperse hexagonal foams and concentrated emulsions. *J. Rheol.* **35** (6), 1235–1253.
- KRISHAN, K., HELAL, A., HÖHLER, R. & COHEN-ADDAD, S. 2010 Fast relaxations in foam. *Phys. Rev. E* **82** (1), 011405.
- LANDAU, L. & LEVICH, B. 1942 Dragging of a liquid by a moving plate. *Acta Physicochim. URSS* **17**, 42.

- LANGEVIN, D. 2014 Rheology of Adsorbed Surfactant Monolayers at Fluid Surfaces. *Ann. Rev. Fluid Mech.* **46**, 47–65.
- LE MERRER, M., COHEN-ADDAD, S. & HÖHLER, R. 2012 Bubble rearrangement duration in foams near the jamming point. *Phys. Rev. Lett.* **108** (18), 188301.
- LE MERRER, M., COHEN-ADDAD, S. & HÖHLER, R. 2013 Duration of bubble rearrangements in a coarsening foam probed by time-resolved diffusing-wave spectroscopy: Impact of interfacial rigidity. *Phys. Rev. E* **88** (2), 022303.
- LORENCEAU, E., LOUVET, N., ROUYER, F. & PITOIS, O. 2009 Permeability of aqueous foams. *Eur. Phys. J. E* **28**, 293–304.
- LUCASSEN, J. & VAN DEN TEMPEL, M. 1972 Dynamic measurements of dilational properties of a liquid interface. *Chemical Engineering Science* **27** (6), 1283–1291.
- MITTAL, R. & IACCARINO, G. 2005 Immersed boundary methods. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **37** (1), 239–261.
- O’NÁRAIGH, L., VALLURI, P., SCOTT, D. M., BETHUNE, I. & SPELT, P. D. M. 2014 Linear instability, nonlinear instability and ligament dynamics in three-dimensional laminar two-layer liquid–liquid flows. *J. Fluid Mech.* **750**, 464–506.
- OSHER, S. & FEDKIW, R. 2003 *Level set methods and dynamic implicit surfaces*. Springer.
- OU RAMDANE, O. & QUÉRÉ, D. 1997 Thickening factor in Marangoni coating. *Langmuir* **13** (11), 2911–2916.
- PARK, C.-W. 1991 Effects of insoluble surfactants on dip coating. *J. Colloid Interface Sci.* **146** (2), 382–394.
- PEREIRA, A., TREVELYAN, P. M. J., THIELE, U. & KALLIADASIS, S. 2007 Dynamics of a horizontal thin liquid film in the presence of reactive surfactants. *Phys. Fluids* **19**, 112102.
- PETIT, P., SEIWERT, J., CANTAT, I. & BIANCE, A-L 2015 On the generation of a foam film during a topological rearrangement. *J. Fluid Mech.* **763**, 286–301.
- POZRIKIDIS, C. 2001 Interfacial dynamics for Stokes flow. *J. Comput. Phys.* **169** (2), 250–301.
- POZRIKIDIS, C. 2011 *Introduction to theoretical and computational fluid dynamics*, 2nd edn. New York: Oxford University Press, bibtext: Pozrikidis2011.
- PRINCEN, H. M. 1983 Rheology of foams and highly concentrated emulsions. 1. Elastic properties and yield stress of a cylindrical model system. *J. Colloid Interface Sci.* **91** (1), 160–175.
- PRINCEN, H. M. 1985 Rheology of foams and highly concentrated emulsions. 2. Experimental study of the yield stress and wall effects for concentrated oil-in-water emulsions. *J. Colloid Interface Sci.* **105** (1), 150–171.
- PRINCEN, H. M. & KISS, A. D. 1986 Rheology of foams and highly concentrated emulsions. 3. Static shear modulus. *J. Colloid Interface Sci.* **112** (2), 427–437.
- PRINCEN, H. M. & KISS, A. D. 1989 Rheology of foams and highly concentrated emulsions. 4. An experimental study of the shear viscosity and yield stress of concentrated emulsions. *J. Colloid Interface Sci.* **128** (1), 176–187.
- RATULOWSKI, J. & CHANG, H. C. 1990 Marangoni effects of trace impurities on the motion of long gas bubbles in capillaries. *J. Fluid Mech.* **210** (1), 303–328.
- RIO, E. & BIANCE, A.-L. 2014 Thermodynamic and mechanical timescales involved in foam film rupture and liquid foam coalescence. *ChemPhysChem* **15** (17), 3692–3707.
- ROGNON, P., EINAU, I. & GAY, C. 2010 Internal relaxation time in immersed particulate materials. *Phys. Rev. E* **81**, 061304.
- SAGIS, L. M. C. 2011 Dynamic properties of interfaces in soft matter: Experiments and theory. *Rev. Mod. Phys.* **83** (4), 1367–1403.
- SATOMI, R., GRASSIA, P. & OQUEY, C. 2013 Modelling relaxation following T1 transformations of foams incorporating surfactant mass transfer by the Marangoni effect. *Colloids Surf. A* **438**, 77–84.
- SAYE, R. I. & SETHIAN, J. A. 2013 Multiscale Modeling of Membrane Rearrangement, Drainage, and Rupture in Evolving Foams. *Science* **340** (6133), 720–724.
- SCHEID, B., DELACOTTE, J., DOLLET, B., RIO, E., RESTAGNO, F., VAN NIEROP, E. A., CANTAT, I., LANGEVIN, D. & STONE, H. A. 2010 The role of surface rheology in liquid film formation. *Europhys. Lett.* **90** (2), 24002.
- SCHWALBE, J. T., PHELAN, JR., F. R., VLAHOVSKA, P. M. & HUDSON, S. D. 2011 Interfacial effects on droplet dynamics in Poiseuille flow. *Soft Matter* **7** (17), 7797.

- SEIWERT, J., MONLOUBOU, M., DOLLET, B. & CANTAT, I. 2013 Extension of a suspended soap film : a two-step process. *Phys. Rev. Lett* **111**, 094501.
- SETH, J. R., MOHAN, L., LOCATELLI-CHAMPAGNE, C., CLOITRE, M. & BONNECAZE, R. T. 2011 A micromechanical model to predict the flow of soft particle glasses. *Nature Materials* **10**, 838–843.
- SETHIAN, J. A. 1999 *Level Set Methods and Fast Marching Methods*. Cambridge University Press.
- SEXTON, M. B., MÖBIUS, M. E. & HUTZLER, S. 2011 Bubble dynamics and rheology in sheared two-dimensional foams. *Soft Matter* **7** (23), 11252–11258.
- SOLOMENKO, Z., SPELT, P. D. M., ÓNÁRAIGH, L. & ALIX, P. 2017 Mass conservation and reduction of parasitic interfacial waves in level-set methods for the numerical simulation of two-phase flows: a comparative study. *Int. J. Multiph. Flow* **95**, 235–256.
- SONIN, A. A., BONFILLON, A. & LANGEVIN, D. 1993 Role of surface elasticity in the drainage of soap films. *Phys. Rev. Lett.* **71** (14), 2342–2345.
- STONE, H. 1994 Dynamics of drop deformation and breakup in viscous fluids. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **26** (1), 65–102.
- SUSSMAN, M. & FATEMI, E. 1999 An efficient, interface-preserving level set redistancing application to interfacial incompressible fluid flow. *SIAM J. Sci. Comput.* **20**, 1165–1191.
- SUSSMAN, M., SMERKA, P. & OSHER, S. 1994 A level set approach for computing solutions to incompressible two-phase flow. *J. Comput. Phys.* **114** (1), 146–159.
- TAKAGI, S. & MATSUMOTO, Y. 2011 Surfactant effects on bubble motion and bubbly flows. *Ann. Rev. Fluid Mech.* **43**, 615–636.
- TCHOLAKOVA, S., DENKOV, N. D., GOLEMANOV, K., ANANTHAPADMANABHAN, K. P. & LIPS, A. 2008 Theoretical model of viscous friction inside steadily sheared foams and concentrated emulsions. *Phys. Rev. E* **78**, 011405.
- TEIGEN, E. K., LI, X., LOWENGRUB, J., WANG, F. & VOIGT, A. 2009 A diffuse-interface approach for modeling transport, diffusion and adsorption/desorption of material quantities on a deformable interface. *Commun Math Sci.* **7** (4), 1009–1037.
- TEIGEN, E. K., SONG, P., LOWENGRUB, J. & VOIGT, A. 2011 A diffuse-interface method for two-phase flows with soluble surfactants. *J. Comput. Phys.* **230** (2), 375–393.
- TRYGGVASON, G., BUNNER, B., ESMAEELI, A., JURIC, D., AL-RAWAHI, N., TAUBER, W., HAN, J., NAS, S. & JAN, Y.-J. 2001 A front-tracking method for the computations of multiphase flow. *J. Comput. Phys.* **169** (2), 708–759.
- WONG, H., RUMSCHITZKI, D. & MALDARELLI, C. 1996 On the surfactant mass balance at a deforming fluid interface. *Phys. Fluids* **8** (11), 3203–3204.

4.2 Résultats préliminaires avec viscosité de surface constante

Comme mentionné au chapitre 2 (section 2.3.3), nous avons inclus dans le code numérique un terme de dissipation de surface caractérisé par un nombre de Boussinesq $Bo = \mu_{tot}/(\mu_l H)$. En présence de viscosité de surface et dans le cas bidimensionnel, l'effet de la viscosité de surface peut être caractérisé par une tension de surface effective $\gamma_{eff} = \gamma + \mu_{tot} \nabla_s \cdot \mathbf{u}$. Nous présentons dans cette section des résultats préliminaires pour le cas $Bo = 1$ que nous comparons au cas de référence $Bo = 0$.

Tout d'abord, nous avons comparé les forces capillaires exercées par le système sur la plaque pour ces deux valeurs de Bo . D'après la section 4.1 de l'article, la force tangentielle par unité de largeur exercée par les fluides sur la plaque inférieure est définie comme l'intégrale sur la plaque de $\mathbf{e}_x \cdot (\boldsymbol{\sigma} + \mathbf{T}_s) \cdot \mathbf{e}_z$, qui se décompose en trois composantes (la force capillaire, la force visqueuse dans le gaz et la force visqueuse dans le liquide) :

1. $F_{cap} = -\sum_{\text{contact lines}} \gamma_{eff} n_z \text{sgn}(n_x)$, avec \mathbf{n} le vecteur normal à l'interface,
2. $F_{vg} = \int_{\text{gas-plate}} \mu_g (\partial u_x / \partial z) dx$,
3. $F_{vl} = \int_{\text{liquid-plate}} \mu_l (\partial u_x / \partial z) dx$.

La force capillaire à la paroi s'écrit donc comme la somme du terme considéré dans l'article $\gamma \cos \theta$ (avec θ l'angle entre l'interface et la plaque) et d'un terme purement visqueux $\mu_{tot} (\nabla_s \cdot \mathbf{u}) \cos \theta$. Les résultats sont présentés sur la figure 4.1. Considérons tout d'abord les différentes contributions à la force dans le cas $Bo = 1$. Nous observons que le terme de viscosité interfaciale (en bleu) est environ dix fois plus faible que le terme de tension interfaciale classique (en trait plein noir). En comparant les deux cas $Bo = 1$ et $Bo = 0$, la force capillaire totale est plus élevée d'environ un tiers pour $Bo = 1$.

Pour comprendre cet écart, nous avons comme précédemment calculé la dissipation en volume et en surface dans le système. Les résultats sont reportés dans le tableau 4.1. Mettre de la viscosité de surface augmente la dissipation en surface (d'un facteur un peu moins de deux) mais aussi celle en volume (d'environ 25%), sans doute en modifiant la contrainte interfaciale entre le liquide et le gaz. Pour confirmer l'effet de la viscosité de surface sur l'écoulement en volume, il serait intéressant d'explorer de grandes valeurs de Bo . Nous pouvons en effet nous demander si à Bo très grand, l'interface devient presque incompressible, avec une dissipation majoritairement en volume (comparable au cas à très grand Péclet dans le cas sans viscosité de surface).

Bo	$\langle \tilde{\mathcal{P}}_{inj} \rangle$	$\langle \tilde{\mathcal{D}}_v \rangle$	$\langle \tilde{\mathcal{D}}_s \rangle$
0	14.2	9.8	4.4
1	19.7	12.4	7.3

TABLE 4.1 – Influence de la viscosité de surface : valeurs moyennes des puissances injectées, et des puissances dissipées en surface et en volume. Le cas considéré ici est pour $Ca = 0.1$, $Bi = 1$ et $Pe = 1$.

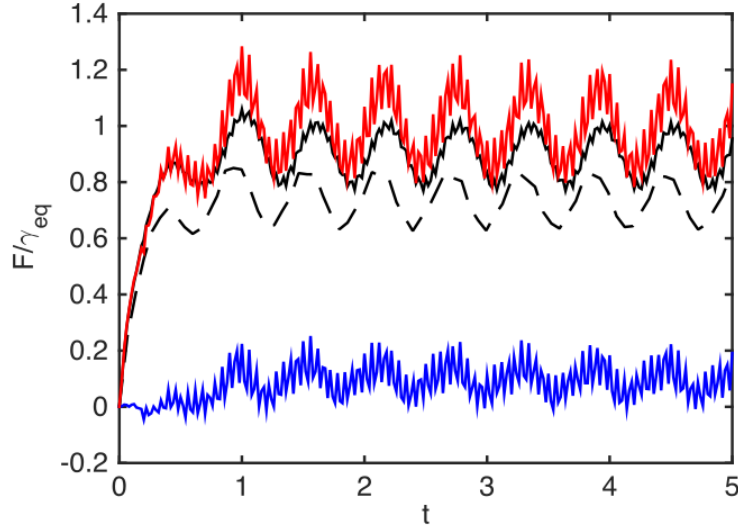


FIGURE 4.1 – Evolution temporelle de la force capillaire pour $Ca = 0.1$, $Bi = 1$ et $Pe = 1$. En traits pointillés noirs (- - -), cas sans viscosité de surface ($Bo = 0$). En traits pleins (—), cas avec viscosité de surface à $Bo = 1$. La force capillaire totale (en rouge) est la somme d’une composante en $\gamma \cos \theta$ (en noir et en trait plein (—)), et d’un terme en $(K^s + \mu^s)(\nabla_s \cdot \mathbf{u}) \cos \theta = \mu_{tot}(\nabla_s \cdot \mathbf{u}) \cos \theta$ (en bleu).

Notre étude des effets de viscosité de surface reste inachevée en raison d’une difficulté numérique aux grandes valeurs de Bo . Comme cela est visible sur la figure 4.1 pour $Bo = 1$, des oscillations apparaissent lorsque l’on calcule le terme $\nabla_s \cdot \mathbf{u}$. En effet, celui-ci est délicat à évaluer à l’interface dont l’épaisseur est de $3\Delta x$. Notons que ces premiers résultats ont été obtenus par post-traitement avec des quantités moyennées des différents champs (fonction level-set, vitesses, etc), et non avec la grille MAC utilisée dans le code numérique. Une piste à explorer serait d’une part d’effectuer le calcul du terme $\nabla_s \cdot \mathbf{u}$ directement dans le code de simulation numérique, sans utiliser des quantités moyennées. D’autre part, une interface mieux résolue numériquement permettrait de mieux évaluer ce terme. Enfin, une autre possibilité serait d’utiliser une méthode de type « ghost fluid » [69] afin de pouvoir réduire les oscillations observées au niveau des forces (figure 4.1).

En conclusion de ce chapitre, l’étude paramétrique dans le cas sans viscosité de surface nous montre que les inhomogénéités des tensioactifs créent des contraintes Marangoni aux interfaces, ce qui affecte la nature de la dissipation visqueuse. De plus, la dynamique des tensioactifs affecte la réponse mécanique du système étudié, ce qui apporte des nouvelles informations sur la rhéologie des mousses. Nous avons aussi étudié la répartition du liquide dans les films, pour ainsi apporter des informations sur l’endroit possible de rupture des films liquides, conduisant probablement à l’effondrement de la mousse.

En ce qui concerne l’effet de la viscosité de surface, ce point reste encore inachevé. Nous observons cependant qu’en ajoutant une telle dissipation surfacique, la dissipation en volume est elle aussi affectée, ce qui souligne une fois encore le couplage fort entre écoulement et

4.2. *RÉSULTATS PRÉLIMINAIRES AVEC VISCOSITÉ DE SURFACE CONSTANTE* 91

contrainte interfaciale.

Conclusion générale

Dans ce travail de thèse, nous avons étudié par simulation numérique la dynamique d'un réarrangement T1, l'événement élémentaire dans l'écoulement d'une mousse. Il s'agit d'un problème complexe puisqu'il implique des interfaces libres qui se déforment, et que la dynamique de l'écoulement est couplée à celle du transport des tensioactifs dans le liquide et à l'interface, et aux échanges qui se produisent entre le volume et la surface (adsorption et désorption des tensioactifs).

Notre approche est une méthode level-set pour écoulement diphasique, que nous avons modifiée afin de prendre en compte la présence de tensioactifs. Nous pouvons ainsi accéder à l'évolution des champs caractéristiques des interfaces (fonction level-set), de l'écoulement (champs de vitesse notamment), ainsi qu'à la répartition en tensioactifs à l'interface et en volume, et aux effets Marangoni qui en résultent. Nous avons caractérisé la réponse mécanique du système en évaluant les forces appliquées sur les parois du domaine de simulation. Nous observons qu'aussi bien avec que sans tensioactifs un état stationnaire est atteint, avec les forces oscillant autour d'une valeur d'équilibre. Nous avons aussi observé que la contribution capillaire de la force est dominante par rapport aux contributions visqueuses dans le liquide et dans le gaz. Nous avons fait varier les paramètres caractérisant la déformabilité des interfaces (nombre capillaire), l'échange des tensioactifs dans le volume et à l'interface (nombre de Biot), et la compétition entre l'advection et la diffusion des tensioactifs (nombres de Péclet dans le volume et interfacial). Nous avons constaté que la force capillaire augmente avec Ca et Pe , mais diminue avec Bi .

Notre résultat principal est qu'en raison des contraintes Marangoni aux interfaces, la présence des tensioactifs peut modifier la nature des écoulements (élongationnel ou de cisaillement) et donc la dissipation visqueuse en volume. De plus, les tensioactifs sont à l'origine d'une dissipation effective de surface, qui est maximale quand le nombre de Péclet est proche de 1. Cependant, dans nos simulations, la dissipation visqueuse dans le liquide est toujours dominante par rapport à la dissipation effective de surface. Cette situation est donc très différente des modèles de films et bulles de savon à faible fraction liquide, qui se focalisent sur la contribution de l'interface.

Ce travail ouvre de nombreuses perspectives pour des travaux futurs.

- **Systèmes tridimensionnels.** Une extension immédiate de notre travail serait d'étudier des configurations tridimensionnelles. Le code est déjà disponible mais nécessite des ressources importantes en temps de calcul.
- **Fraction volumique.** Il semble très naturel d'étudier l'effet de la fraction volumique liquide, pour pouvoir accéder à des systèmes plus secs et plus réalistes. Ceci nécessiterait d'inclure dans les simulations, au moins de manière effective, les effets physiques tels que la pression de disjonction, qui empêcherait la coalescence entre bulles.
- **Coalescence.** En explorant la répartition du liquide dans le système, nous avons obtenu des indices sur la possible rupture des films liquides, et donc sur l'effondrement de la mousse. Une perspective de ce travail serait d'explorer la coalescence et ses conséquences, en se donnant un critère pour la rupture de films.
- **Viscosité de surface.** Enfin, des études préliminaires à viscosité de surface constante ont été menées, mais restent cependant à consolider et requièrent des améliorations au niveau du code numérique. La prise en compte de ces effets permettrait d'explorer la compétition entre dissipations de surface et de volume dans une large gamme de Bo , ainsi que le découplage (pour des simulations 3D) entre les viscosités de cisaillement et de dilatation.

Si ces questions restent à explorer, elles peuvent toutes être abordées en se basant sur la méthode utilisée dans ce travail de thèse. Il fournit donc une base solide pour, à terme, fournir une vision microscopique et complète des mécanismes de réarrangement de bulles dans une mousse.

Bibliographie

- [1] I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Höhler, O. Pitois, F. Rouyer, A. Saint-Jalmes, *Les mousses - Structure et dynamique*, (Belin 2010). 11, 13, 14, 15, 17, 20, 22, 24
- [2] J. Lambert, R. Mokso, I. Cantat, P. Cloetens, J. A. Glazier, F. Graner, R. Delannay, Coarsening foams robustly reach a self-similar growth regime. *Physical Review Letters* **104**, 248304 (2010). 14
- [3] P. Petit, *Déformation d'interfaces complexes : des architectures savonneuses aux mousses de particules*, Ph.D. thesis (2014). 15, 16
- [4] M. Safouane, *Drainage des Mousses Aqueuses : Rôle de La Rhéologie du Fluide Mousseux* ., Ph.D. thesis (2003). 15
- [5] E. Rio, A.-L. Biance, Thermodynamic and mechanical timescales involved in foam film rupture and liquid foam coalescence. *ChemPhysChem* **15**, 3692 (2014). 15
- [6] R. Höhler, S. Cohen-Addad, Rheology of liquid foam. *Journal of Physics : Condensed Matter* **17**, R1041 (2005). 16, 17
- [7] S. Cohen-Addad, R. Höhler, O. Pitois, Flow in Foams and Flowing Foams. *Annual Review of Fluid Mechanics* **45**, 241 (2013). 16, 17
- [8] I. Cantat, Liquid meniscus friction on a wet plate : Bubbles, lamellae, and foams. *Physics of Fluids* **25** (2013). 18, 19
- [9] N. D. Denkov, V. Subramanian, D. Gurovich, A. Lips, Wall slip and viscous dissipation in sheared foams : Effect of surface mobility. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects* **263**, 129 (2005). 18
- [10] F. Bretherton, The motion of long bubbles in tubes of square cross section. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics* (1960). 18, 19

- [11] M. Maleki, M. Reyssat, F. Restagno, D. Quéré, C. Clanet, Landau-Levich menisci. *Journal of Colloid and Interface Science* **354**, 359 (2011). 18
- [12] L. Champougny, *Génération et rupture de films liquides minces*, Ph.D. thesis (2016). 18, 19
- [13] R. Krechetnikov, G. M. Homsy, Experimental study of substrate roughness and surfactant effects on the Landau-Levich law. *Physics of Fluids* **17**, 102108 (2005). 19
- [14] K. J. Mysels, S. P. Frankel, The effect of a surface-induced gradual viscosity increase upon the thickness of entrained liquid films and the flow in narrow channels. *Journal of Colloid And Interface Science* **66**, 166 (1978). 19
- [15] J. Seiwert, M. Monloubou, B. Dollet, I. Cantat, Extension of a suspended soap film : a two-step process **111**, 094501 (2013). 19
- [16] A. L. Biance, A. Delbos, O. Pitois, How topological rearrangements and liquid fraction control liquid foam stability. *Physical Review Letters* **106**, 068301 (2011). 20
- [17] M. Le Merrer, S. Cohen-Addad, R. Höhler, Duration of bubble rearrangements in a coarsening foam probed by time-resolved diffusing-wave spectroscopy : Impact of interfacial rigidity. *Physical Review E* **88**, 022303 (2013). 20, 21
- [18] M. Durand, H. A. Stone, Relaxation Time of the Topological T1 Process in a Two-Dimensional Foam. *Physical Review Letters* **97**, 226101 (2006). 20, 21
- [19] P. Grassia, C. Oguey, R. Satomi, Relaxation of the topological T1 process in a two-dimensional foam. *European Physical Journal E* **35**, 64 (2012). 20, 21
- [20] M. Le Merrer, S. Cohen-Addad, R. Höhler, Bubble rearrangement duration in foams near the jamming point. *Physical Review Letters* **108**, 188301 (2012). 21
- [21] P. Petit, J. Seiwert, I. Cantat, A. L. Biance, On the generation of a foam film during a topological rearrangement. *Journal of Fluid Mechanics* **763**, 286 (2015). 21
- [22] N. D. Denkov, S. Tcholakova, K. Golemanov, K. P. Ananthapadmanabhan, A. Lips, Viscous friction in foams and concentrated emulsions under steady shear. *Physical Review Letters* **100**, 138301 (2008). 21
- [23] D. Langevin, Rheology of Adsorbed Surfactant Monolayers at Fluid Surfaces. *Annual Review of Fluids Mechanics* **46**, 47 (2014). 21, 22, 23, 25
- [24] L. D. Jayalakshmi Y., Ozanne L., Viscoelasticity of Surfactants Monolayers. *Journal of Colloid and interface Science* **170**, 358 (1995). 23, 25
- [25] J. Lucassen, M. Van Den Tempel, Dynamic measurements of dilational properties of a liquid interface. *Chemical Engineering Science* **27**, 1283 (1972). 24

- [26] K. Golemanov, N. D. Denkov, S. Tcholakova, M. Vethamuthu, A. Lips, Surfactant Mixtures for Control of Bubble Surface Mobility in Foam Studies. *Langmuir* **24**, 9956 (2008). 25, 26
- [27] D. A. Edwards, H. Brenner, D. T. Wasan, *Interfacial Transport Processes and Rheology*, (Butterworth-Heinemann 1991). 28, 36
- [28] B. Cuenot, J. Magnaudet, B. Spennato, The effects of slightly soluble surfactants on the flow around a spherical bubble. *Journal of Fluid Mechanics* **339**, 25 (1997). 28
- [29] J. Mclaughlin, Numerical Simulation of Bubble Motion in Water. *Journal of colloid and interface science* **184**, 614 (1996). 28
- [30] R. Bel Fdhila, P. C. Duineveld, The effect of surfactant on the rise of a spherical bubble at high Reynolds and Peclet numbers. *Physics of Fluids* **8**, 310 (1996). 28
- [31] S. Takagi, Y. Matsumoto, Surfactant Effects on Bubble Motion and Bubbly Flows. *Annual Review of Fluid Mechanics* **43**, 615 (2011). 29
- [32] H. A. Stone, Dynamics of Drop Deformation and Breakup in Viscous Fluids. *Annual Review of Fluid Mechanics* **26**, 65 (1994). 29
- [33] K. Erik Teigen, P. Song, J. Lowengrub, A. Voigt, A diffuse-interface method for two-phase flows with soluble surfactants. *Journal of Computational Physics* **230**, 375 (2011). 29, 30, 31, 34, 35, 38, 39, 42, 45, 50, 54, 55, 56, 57, 62
- [34] C. D. Eggleton, T.-M. Tsai, K. J. Stebe, Tip Streaming from a Drop in the Presence of Surfactants. *Physical Review Letters* **87**, 048302 (2001). 29
- [35] K. Dieter-Kissling, H. Marschall, D. Bothe, Direct Numerical Simulation of droplet formation processes under the influence of soluble surfactant mixtures. *Computers and Fluids* **113**, 93 (2015). 29
- [36] B. Dai, L. G. Leal, The mechanism of surfactant effects on drop coalescence. *Physics of Fluids* **20**, 13 (2008). 29
- [37] O. K. Matar, S. M. Troian, The development of transient fingering patterns during the spreading of surfactant coated films. *Physics of Fluids* **11**, 3232 (1999). 29
- [38] J. U. Brackbill, D. B. Kothe, C. Zemach, A continuum method for modeling surface tension. *Journal of Computational Physics* **100**, 335 (1992). 30
- [39] J. Li, The effect of an insoluble surfactant on the skin friction of a bubble. *European Journal of Mechanics, B/Fluids* **25**, 59 (2006). 30
- [40] G. Tryggvason, R. Scardovelli, S. Zaleski, *Direct Numerical Simulations of Gas-Liquid Multiphase Flows*, (Cambridge University Press 2011). 30, 33

- [41] G. Tryggvason, B. Bunner, A. Esmaeeli, D. Juric, N. Al-Rawahi, W. Tauber, J. Han, S. Nas, Y.-J. Jan, A Front-Tracking Method for the Computations of Multiphase Flow. *Journal of Computational Physics* **169**, 708 (2001). 30
- [42] Q. Xu, Y. C. Liao, O. A. Basaran, Can Surfactant Be Present at Pinch-Off of a Liquid Filament? *Physical Review Letters* **98**, 054503 (2007). 30
- [43] M. Muradoglu, G. Tryggvason, A front-tracking method for computation of interfacial flows with soluble surfactants. *Journal of Computational Physics* **227**, 2238 (2008). 30, 31
- [44] R. Mittal, G. Iaccarino, Immersed Boundary Methods. *Annual Review of Fluid Mechanics* **37**, 239 (2005). 30
- [45] M. C. Lai, Y. H. Tseng, H. Huang, An immersed boundary method for interfacial flows with insoluble surfactant. *Journal of Computational Physics* **227**, 7279 (2008). 30, 31
- [46] J. A. Sethian, P. Smereka, Level Set Methods for Fluid Interfaces. *Annual Review of Fluid Mechanics* **35**, 341 (2003). 30, 31, 32, 33
- [47] J. J. Xu, Y. Yang, J. Lowengrub, A level-set continuum method for two-phase flows with insoluble surfactant. *Journal of Computational Physics* **231**, 5897 (2012). 30
- [48] D. M. Anderson, G. McFadden, A. A. Wheeler, Diffuse-Interface Methods In Fluid Mechanics. *Annual Review of Fluid Mechanics* **30**, 139 (1998). 30, 31
- [49] R. Scardovelli, S. Zaleski, Direct Numerical Simulation of Free-Surface and Interfacial Flow. *Annual Review of Fluid Mechanics* **31**, 567 (1999). 30
- [50] Y. Y. Renardy, M. Renardy, V. Cristini, A new volume-of-fluid formulation for surfactants and simulations of drop deformation under shear at a low viscosity ratio. *European J. Mech B/Fluids* **03**, 1 (2002). 30
- [51] A. Alke, D. Bothe, 3D Numerical Modeling of Soluble Surfactant at Fluidic Interfaces Based on the Volume-of-Fluid Method. *Fluid Dynamics and Materials Processing* **5**, 345 (2009). 30, 31
- [52] H. A. Stone, L. G. Leal, The effects of surfactants on drop deformation and breakup. *Journal of Fluid Mechanics* **220**, 161 (1990). 30
- [53] W. J. Milliken, L. G. Leal, The Influence of Surfactant on the Deformation and Breakup of a Viscous Drop : The Effect of Surfactant Solubility. *Journal Of Colloid And Interface Science* **166**, 275 (1994). 30
- [54] M. Sussman, A. S. Almgren, J. B. Bell, P. Colella, L. H. Howell, M. L. Welcome, An Adaptive Level Set Approach for Incompressible Two-Phase Flows. *Journal of Computational Physics* **148**, 81 (1999). 31, 32

- [55] Z. Solomenko, P. D. M. Spelt, L. Ó Náraigh, P. Alix, Mass conservation and reduction of parasitic interfacial waves in level-set methods for the numerical simulation of two-phase flows : a comparative study. *International Journal of Multiphase Flow* **95**, 235 (2017). 31, 33, 41, 45, 46
- [56] M. Sussman, P. Smereka, S. Osher, A Level Set Approach for Computing Solutions to Incompressible Two-Phase Flow. *Journal of Computational Physics* **114**, 146 (1994). 33
- [57] S. Osher, R. Fedkiw, *Level Set Methods and Dynamic Implicit Surfaces*, volume 153, (Springer 2003). 33
- [58] S. Osher, R. P. Fedkiw, Level Set Methods : An Overview and Some Recent Results. *Journal of Computational Physics* **169**, 463 (2001). 33
- [59] H. Wong, D. Rumschitzki, C. Maldarelli, On the surfactant mass balance at a deforming fluid interface. *Physics of Fluids* **8**, 3203 (1996). 34
- [60] K. Erik Teigen, X. Li, J. Lowengrub, F. Wang, A. Voigt, A diffuse-interface approach for modeling transport, diffusion and adsorption/desorption of material quantities on a deformable interface. *Commun Math Sci.* **7**, 1009 (2009). 35
- [61] L. Scriven, Dynamics of a fluid interface Equation of motion for Newtonian surface fluids. *Chemical Engineering Science* **12**, 98 (1960). 36
- [62] S. Naire, R. J. Braun, S. A. Snow, An insoluble surfactant model for a vertical draining free film with variable surface viscosity. *Physics of Fluids* **13**, 2492 (2001). 36
- [63] L. O. Náraigh, P. Valluri, D. M. Scott, I. Bethune, P. D. M. Spelt, Linear instability, nonlinear instability and ligament dynamics in three-dimensional laminar two-layer liquid–liquid flows. *Journal of Fluid Mechanics* **750**, 464 (2014). 40, 41, 45
- [64] X.-D. Liu, S. Osher, T. Chan, Weighted Essentially Non-oscillatory Schemes. *Journal of Computational Physics* **115**, 200 (1994). 41
- [65] M. Sussman, E. Fatemi, An efficient, interface-preserving level set redistancing algorithm and its application to interfacial incompressible fluid flow. *SIAM Journal of Scientific Computing* **20**, 1165 (1999). 41
- [66] Z. Solomenko, P. D. M. Spelt, P. Alix, A three-dimensional level-set method for large-scale simulations of flows with moving contact lines. *Journal of Computational Physics* (2017), accepted. 45
- [67] T. Abadie, J. Aubin, D. Legendre, On the combined effects of surface tension force calculation and interface advection on spurious currents within Volume of Fluid and Level Set frameworks. *Journal of Computational Physics* **297**, 611 (2015). 46

- [68] Z. Solomenko, *Two-phase flows over complex surfaces : towards bridging the gap between computations and experiments with application to structured packings*, Ph.D. thesis (2016). 46
- [69] R. P. Fedkiw, T. Aslam, B. Merriman, S. Osher, A Non-Oscillatory Eulerian Approach to Interfaces in Multimaterial Flows (the Ghost Fluid Method). *Journal of Computational Physics* **152**, 457 (1999). 90

Simulations level-set d'un amas de bulles cisailées : écoulement et dynamique des tensioactifs

Les mousses sont des assemblées de bulles de gaz dans une matrice liquide que l'on rencontre dans de nombreuses applications (bâtiment, extraction de matières premières, cosmétique, alimentaire, etc). La mousse est un matériau hors équilibre (donc instable) et un fluide complexe intermédiaire entre solide et liquide. Relier ces propriétés macroscopiques à la dynamique de la mousse à ses différentes échelles (bulles, films, tensioactifs) reste une question ouverte, en particulier concernant le couplage entre les écoulements et la dynamique des tensioactifs. Parce qu'elles permettent un suivi des tensioactifs (inaccessible expérimentalement) et d'appréhender des géométries complexes (au-delà des approches théoriques en approximation de lubrification), les simulations numériques constituent un outil adapté pour identifier les mécanismes de dissipation à l'échelle des bulles et films. Nous avons donc implémenté, pour la première fois dans des simulations level-set d'écoulements diphasiques, la dynamique des tensioactifs —diffusion, adsorption/désorption—et son couplage avec la mécanique des fluides —advection des tensioactifs et sauts de contrainte à l'interface. Le code développé est utilisé pour simuler des réarrangements de bulles 2D sous cisaillement, qui constituent le processus élémentaire de l'écoulement d'une mousse, pouvant être à l'origine de leur déstabilisation par coalescence. Nous accédons ainsi à une description complète de cette dynamique. Nous étudions en particulier la réponse mécanique du système, en fonction du nombre de Péclet, du nombre capillaire et du nombre de Biot. Nous montrons que la présence des tensioactifs et leur dynamique peuvent non seulement affecter les mécanismes de dissipation en volume, en modifiant la nature des écoulements (extensionnel ou de cisaillement) par le changement de condition aux limites aux interfaces liquide-gaz (interfaces mobiles ou rigides), mais également en étant à l'origine d'une dissipation effective de surface, liées au travail des forces de surface, contribution qui est maximale pour des nombres de Péclet proches de 1. Enfin, nous présentons des résultats préliminaires sur l'effet de la viscosité de surface.

Level-set simulations of a cluster of sheared bubbles : flow and dynamics of surfactants

Foams are assemblies of gas bubbles in a liquid matrix that are used in several applications (building construction, ore flotation, cosmetics, food, etc). Foam is an out of equilibrium material (therefore instable) and a complex fluid intermediate between solid and liquid. Relating these macroscopic properties to foam dynamics and to foam scales (bubbles, liquid films, and surfactants) is still an open question, in particular regarding the coupling between the flow and surfactant dynamics. Because they allow to trace surfactants (difficult to do experimentally), and to deal with complex geometries (beyond the theoretical lubrication approximation), numerical simulations are a suitable tool to identify the dissipation mechanisms occurring at bubbles and liquid film scales. We thus implemented for the first time in two-phase flow level-set simulations, the surfactant dynamics —diffusion, adsorption/desorption— and its coupling with fluid mechanics —surfactant advection and stress jump across evolving interfaces. The developed code is used to simulate 2D bubble rearrangements under shear stress. These rearrangements represent the process of flow in foams, and can be the cause of foam instability. We thereby obtain a complete description of these dynamics. We study in particular the mechanical response of the system, varying the Péclet, Capillary and Biot numbers. We show that the presence of surfactants and their dynamics can affect bulk dissipation, thereby modifying the flow nature (extensional or shear flow), by changing the boundary condition at liquid/gas interfaces (mobile or rigid interfaces). The presence of surfactants can also be responsible for an effective surface dissipation, related to the work of surface forces. This dissipation is maximal for Péclet number values close to unity. Finally, we present some preliminary results regarding the effect of surface viscosity.