



**HAL**  
open science

## Imbibition forcée en milieu poreux

Céleste Odier

► **To cite this version:**

Céleste Odier. Imbibition forcée en milieu poreux. Matière Molle [cond-mat.soft]. Université de Lyon, 2017. Français. NNT : 2017LYSEN056 . tel-01661429

**HAL Id: tel-01661429**

**<https://theses.hal.science/tel-01661429>**

Submitted on 11 Dec 2017

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

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



Numéro National de Thèse : 2017LYSEN056

**THÈSE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE LYON**  
opérée par  
**l'École Normale Supérieure de Lyon**

**École Doctorale N°52**  
**École Doctorale de Physique et Astrophysique de Lyon (PHAST)**

**Spécialité de doctorat : Physique**

Soutenue publiquement le 19/10/2017, par :

**Céleste ODIER**

---

**Imbibition forcée en milieu poreux**

---

Devant le jury composé de :

JULLIEN, Marie-Caroline	Laboratoire Gulliver, ESPCI	Rapporteuse
BODIGUEL, Hugues	Laboratoire Rhéologie et Procédés, UJF	Rapporteur
REYSSAT, Etienne	Laboratoire PMMH, ESPCI	Examineur
SANTANACH-CARRERAS, Enric	Total SA	Examineur
BARTOLO, Denis	Laboratoire de Physique, ENS de Lyon	Directeur de thèse

Cette thèse a été réalisée au :  
Laboratoire de Physique de l'Ens de Lyon,  
UMR 5672 CNRS  
46 allée d'Italie - 69364 Lyon Cedex 7 - France



et a été financée dans le cadre d'une convention Cifre par :  
Total Exploration & Production  
Pôle d'études et de recherche de Lacq  
BP 47 – 64170 Lacq - France



---

## Remerciements

---

Je souhaite tout d'abord remercier mon directeur de thèse, Denis Bartolo. Son enthousiasme et sa rigueur scientifique ont été des atouts de taille dans la réussite de cette thèse. Merci Denis pour ta confiance et pour ta patience. J'ai beaucoup appris à ton contact. Même quand ma manip s'entêtait à ne pas être reproductible, tu ne m'as jamais laissé me décourager. Toujours débordant d'idées, d'astuces, tu as su me remotiver quand il le fallait.

J'aimerais remercier les membres de mon jury d'avoir accepté d'y participer, en particulier Marie-Caroline Jullien et Hugues Bodiguel, les rapporteurs pour leur lecture très approfondie et leur compréhension très fine des problématiques tant physiques qu'expérimentales. Merci pour vos encouragements, vos remarques pertinentes et les intéressantes discussions qui ont suivi. Je remercie également Enric Santanach-Carreras, et à travers lui Total, de m'avoir fait confiance, et d'avoir suivi l'avancée de mon travail avec intérêt et bienveillance.

Un grand merci à tous les membres du "Bartolab" présents, passés et futurs. Cette thèse ne serait pas la même si elle n'avait pas été effectuée dans une équipe aussi dynamique et agréable. Chronologiquement, je commencerai par remercier Raphael, Nicolas D., Antoine et Bertrand d'avoir rendu mon stage si agréable et enrichissant qu'il m'a donné envie d'en faire une thèse. Merci en particulier à Bertrand, dont j'ai hérité de cette manip si capricieuse, qui m'a patiemment écouté me réjouir quand elle marchait et me plaindre quand rien n'allait. Merci ensuite à ceux qui ont été là tout au long de ma thèse, à Jean-Baptiste (désolée d'avoir rempli tes chaussures de neige), à Joost (Thank you Joost), à Alexandre et Nicolas B. (quand est ce qu'on fait la fête au Mariott ?) ainsi qu'à David et Michael. Merci à Delphine, ma filleule préférée, pour sa bonne humeur, ses raclettes, et ses articulations en carton (je te pardonne ton passé de Pompon). Merci à tous les stagiaires qui sont passés par le labo, et qui ont bien voulu me faire des gâteaux.

Et bon courage à Marine, qui commence sa thèse !

Je remercie églament les membres du Laboratoire de physique. Merci aux gestionnaires qui sont toujours aux petits soins pour nous, et en particulier Laurence et Fatiha. Merci aux ateliers de mécanique et d'électronique, en particulier Marius, Franck et Denis. Merci à notre directeur de laboratoire pour sa vigilance. Merci aux permanent.e.s. Merci également aux générations successives de co-bureau, Mathieu, Justine, Charles-Edouard, Alexandre (encore) et Peter, grâce à qui les mois de rédactions et les weekends au labo ont été moins solitaires malgré nos différents sur le réglage de la clim du LR6 ! Et merci à Vance et Amine pour leur optimisme et leur soutien inconditionnel de mes activités artistiques. Je remercie également tous les thésards passés et présents, ceux de l'ancienne team Ru de 11h42, Yannick pour ses discussions politiques, Arnaud pour ses provocs sexistes, Pauline, Géraldine, Thibaut, Jérôme, Victor, Gaby, Chris, Raf, Paco et tous ceux que j'oublie.

Enfin, mes années à l'ENS n'aurait pas été aussi riches et appréciables sans le soutien des équipes de volley, et je tiens donc à remercier tous les copains et les copines du volley pour tous ces matchs, ces entraînements, ces madeleines, ces vacances, et ces fous-rire ! J'espère qu'il y aura des clémentines sur la table de marque longtemps après mon départ. Merci à Delphine M. ma coéquipière de Beach préférée, à Mamie et Margaux, les capitaines solides, à toutes les coéquipières viriles, l'ancienne génération : Julie et Marie, les copines de kiné : Chloé et Laureline, et la nouvelle génération, de ne pas me faire trop ressentir ma vieillesse et de me supporter comme Assistant Coach. Merci à l'équipe des garçons, même s'ils mangent toutes les clémentines pendant qu'on joue. Sans oublier les vieux : Seb et son rire bizarre, Victor le balayeur, Baba le champion du bowling bonbonnes, Neil (et MiniMil) pour ses T-rex et pour les supers vacances. Et surtout merci à Richard, pour ses conseils avisés, son paternalisme, et sa grande sagesse d'entraîneur. Je ne peux pas remercier les gens du volley sans remercier mes kiné de choc, Benoît et Marlène, qui se relaient efficacement pour m'empêcher de prendre ma retraite sportive et pour m'initier à la télé réalité.

J'ai reçu pendant cette thèse le soutien précieux de mes amis et de ma famille. Merci donc à mes colocos Luc et Jean-Baptiste pour n'avoir pas mangé tout mon parmesan. Merci à mes cousines, meilleur comité de soutien Whatsapp du monde, à mes vrais et faux cousins, à mes copines <2 Chaya et Pauline, qui font très bien semblant de s'intéresser à ce que je fais, à Camille D. et Katy. Merci au comité Copenhagois, Sylvie, Neil, Marie et MiniMil et en particulier à Asger pour les cookies et le reste. Pour finir, merci à mes parents, ma jumelle préférée, ma grande soeur Napoléon, et mon frère fraîchement réunionnais.

La compréhension des écoulements biphasiques dans des milieux hétérogènes est déterminante pour un certain nombre de processus industriels. Le plus marquant étant la récupération assistée du pétrole piégé dans des roches poreuses, qui est un moteur pour la recherche dans ce domaine depuis plusieurs décennies. Pourtant, si l'imbibition spontanée de liquides dans un milieu poreux est relativement bien comprise, l'imbibition forcée d'un liquide dans un milieu poreux rempli d'un liquide plus visqueux n'a pas encore été décrite quantitativement. En combinant des expériences de microfluidique et d'imagerie confocale, nous avons étudié la morphologie et la dynamique d'imbibition forcée dans des milieux poreux réguliers. Nous avons mis en évidence la présence de quatre régimes d'imbibition, provenant de dynamiques d'invasion différentes à l'échelle du pore et ayant une signature claire sur les observables macroscopiques. L'étude de la dynamique locale associée à la microscopie confocale, qui donne accès à des informations tridimensionnelles, nous a permis de montrer que les transitions entre ces régimes étaient la conséquence de deux transitions de mouillage et d'une instabilité d'interface. De plus, contrairement à la majorité des études menées jusqu'à présent, nous nous sommes intéressés à l'évolution de ces motifs d'imbibition soumis à une injection continue sur des temps longs devant le temps de percolation. Cela a permis de mettre en évidence le vieillissement de ces motifs qui est le résultat d'un mûrissement d'origine capillaire.



Understanding two-phase flow in heterogeneous media is of great importance for a number of industrial processes. One of the most prominent examples is enhanced oil recovery which has driven fundamental and applied research in this field for decades. However our understanding has remained extremely unbalanced. The case of spontaneous imbibition of a fluid in a porous medium is fairly well understood, whereas quantitative descriptions of forced imbibition in the presence of an unfavorable viscosity ratio is still lacking. Combining large-scale observations and confocal imaging of microfluidic experiments, we studied the morphology and dynamics of forced imbibition in homogeneous porous media. We identify four classes of three-dimensional patterns resulting from different dynamics at the pore-scale, and having a clear signature on the macroscopic observables. By means of confocal microscopy allowing us to visualize three dimensional features of the local dynamics, we show that the transitions between the four imbibition scenarios result from two dynamical wetting transitions and one interfacial instability. In addition, unlike previous studies, we investigate the evolution of those patterns under continuous injection over long time scales. We evidence their aging according to a capillary-coarsening process.





---

Table des matières

---

<b>Résumé - Abstract</b>	<b>5</b>
<b>1 Contexte et objectifs</b>	<b>13</b>
1.1 Contexte pétrolier . . . . .	13
1.2 Écoulement biphasique en milieu poreux . . . . .	15
1.2.1 Point de vue hydrodynamique . . . . .	15
1.2.2 Paramètres de contrôle : . . . . .	17
1.3 Formation de motifs . . . . .	18
1.3.1 Drainage . . . . .	18
1.3.2 Imbibition . . . . .	23
1.4 Propagation d'une ligne de contact sur un solide . . . . .	28
1.4.1 Relation de Cox-Voinov . . . . .	28
1.4.2 Transition d'entraînement . . . . .	30
1.5 Principaux résultats de la thèse . . . . .	33
<b>2 Expériences microfluidiques</b>	<b>37</b>
2.1 Design d'une expérience d'imbibition modèle . . . . .	37
2.1.1 Choix de la géométrie du dispositif . . . . .	37
2.2 Fabrication de milieux poreux modèles . . . . .	39
2.2.1 Réalisation de Stickers microfluidiques . . . . .	39
2.2.2 Réalisation du motif initial . . . . .	40
2.2.3 Traitement de surface . . . . .	47
2.3 Contrôle des écoulements . . . . .	50
2.3.1 Méthode d'injection . . . . .	50
2.3.2 Séquence d'injection et conditions initiales . . . . .	51

2.4	Acquisition, Analyse d'image et Mesure . . . . .	53
2.4.1	Système d'acquisition . . . . .	53
2.4.2	Mesure locale de l'épaisseur d'eau . . . . .	53
2.4.3	Imagerie confocale . . . . .	59
2.5	Conclusion . . . . .	60
<b>3</b>	<b>Quatre régimes d'imbibitions : Morphologies macroscopiques</b>	<b>63</b>
3.1	Morphologie des motifs d'imbibition . . . . .	63
3.1.1	Regime A . . . . .	64
3.1.2	Regime B . . . . .	65
3.1.3	Regime C . . . . .	65
3.1.4	Regime D . . . . .	65
3.1.5	Fragmentation . . . . .	66
3.2	Impact sur les observables macroscopiques . . . . .	67
3.2.1	Observables globales . . . . .	67
3.2.2	Distribution des épaisseurs d'eau . . . . .	70
3.3	Influence du rapport de viscosité . . . . .	71
3.3.1	Morphologie à la percolation . . . . .	71
3.3.2	Impact sur les observables macroscopiques . . . . .	72
3.3.3	Cas des mélanges d'huiles silicones . . . . .	74
3.4	Au-delà des expériences modèles . . . . .	75
3.5	Conclusion . . . . .	76
<b>4</b>	<b>Dynamique d'imbibition</b>	<b>77</b>
4.1	Vitesse de front . . . . .	77
4.1.1	Définition de la vitesse de front . . . . .	77
4.1.2	Influence du nombre capillaire sur la vitesse du front . . . . .	78
4.2	Dynamique à l'échelle du pore . . . . .	79
4.2.1	Régime A . . . . .	79
4.2.2	Régimes B et C . . . . .	80
4.2.3	Régime D . . . . .	81
4.3	Transition entre les différents régimes . . . . .	82
4.3.1	Transition du régime A à B . . . . .	82
4.3.2	Transition du régime B à C . . . . .	84
4.3.3	Transition du régime C à D . . . . .	85
4.3.4	Transition vers la fragmentation . . . . .	87
4.4	Conclusion . . . . .	87

<i>TABLE DES MATIÈRES</i>	11
<b>5 Mûrissement des motifs d'imbibition</b>	<b>89</b>
5.1 Morphologie à l'état stationnaire . . . . .	89
5.1.1 Régimes A et B . . . . .	89
5.1.2 Regime C et D . . . . .	91
5.2 Impact sur les observables macroscopiques . . . . .	92
5.2.1 Observables globales . . . . .	92
5.2.2 Distributions des épaisseurs d'eau . . . . .	93
5.3 Dynamique du mûrissement . . . . .	94
5.3.1 Définition d'une échelle de temps caractéristique . . . . .	94
5.3.2 Variation du volume caractéristique avec le nombre capillaire	95
5.4 Conclusion . . . . .	96
<b>A Forced Imbibition in Porous Media : A Fourfold Scenario</b>	<b>97</b>



### 1.1 Contexte pétrolier

La production de pétrole est un enjeu économique majeur, et les progrès permettant d'augmenter son efficacité tout en réduisant son impact sur l'environnement sont cruciaux. En effet, le pétrole est la principale source d'énergie dans le monde, ainsi que la base de nombreux produits dérivés, comme les matières plastiques. En 2014, la production mondiale de pétrole s'élevait à 91678 milliers de barils par jour ( $1.4 \times 10^7 \text{ m}^3/\text{jour}$ ), avec une augmentation de 12% par rapport à 2005 [1]. Pour compenser l'épuisement des sources traditionnelles de production de pétrole, plusieurs stratégies sont employées par les compagnies pétrolières, soit découvrir et exploiter de nouveaux gisements, soit augmenter l'efficacité de la récupération dans les puits existants.

La récupération du pétrole commence par la détection d'un gisement et le forage d'un puits. Dans un premier temps, le pétrole remonte à la surface grâce à la pression interne du puits, ou est pompé vers la surface avec des pompes conventionnelles. C'est la récupération dite primaire. Lorsque la pression interne du puits n'est plus suffisante pour que le pétrole remonte à la surface, les compagnies pétrolières augmentent artificiellement la pression du puits en injectant des fluides pour pousser le pétrole piégé dans les roches poreuses vers la surface. C'est la récupération secondaire. Ensemble, les récupérations primaire et secondaire ne permettent d'extraire en moyenne que 30% du pétrole initialement présent dans le réservoir. Pour augmenter la quantité de pétrole pouvant être extraite à partir d'un gise-

ment, les compagnies pétrolières développent des méthodes dites de récupération tertiaire (EOR) qui consistent à injecter des additifs pour modifier les propriétés physico-chimiques du pétrole et du liquide injecté, afin de faciliter l'extraction.

Il existe plusieurs techniques de récupération tertiaire. Certaines consistent à diminuer la viscosité du pétrole et à augmenter sa mobilité, en injectant des gaz miscibles ou de la vapeur. D'autres consistent à modifier les propriétés physico-chimiques du liquide injecté, en ajoutant des polymères pour en augmenter la viscosité, ou des tensioactifs pour diminuer la tension de surface entre le pétrole et la phase aqueuse, et ainsi déloger le pétrole piégé dans les pores de la roche. Cependant ces méthodes sont coûteuses à mettre en place, en raison du prix des produits chimiques, et ne sont pas optimales dans le cas des pétroles très visqueux.

En effet, dans le cas des pétroles très visqueux, dits non conventionnels, comme par exemple les pétroles lourds se trouvant au Venezuela, les taux de récupération sont très bas ( $<10\%$ )[2]. La forte viscosité du pétrole, allant de 1000 à 8000 cP, et la profondeur des gisements rendent l'exploitation de ces puits très compliquée. Ces réserves, estimées à 900-1400 milliards de barils ( $1.4 - 2.2 \times 10^{11} \text{ m}^3$ ) de pétrole, représentent environ 20% des réserves mondiales, cependant, seuls 380-652 milliards de barils ( $6.0 - 10.3 \times 10^{10} \text{ m}^3$ ) de pétrole sont considérés comme récupérables, sans tenir compte du prix de l'extraction, mais uniquement des capacités technologiques actuelles [3]. Dans ce contexte, le développement des technologies de récupération tertiaire s'avèrent indispensables, et cela passe d'abord par une meilleure compréhension des écoulements biphasiques dans les milieux poreux.

La complexité de ce problème provient d'abord des milieux poreux en eux-même. Non seulement les roches ont des propriétés de mouillage hétérogènes, mais la taille des pores dans lesquelles le pétrole est piégé varie sur plusieurs ordres de grandeurs, allant de la centaine de nanomètre à la centaine de microns. Ensuite, le pétrole en lui-même étant le produit de la décomposition de matière organique associée à des transformations géologiques, ses propriétés chimiques et rhéologiques dépendent du gisement, et varient localement. Enfin, le problème de déplacement d'une interface macroscopique dans un milieu confiné dépend des écoulements à toute les échelles et est donc intrinsèquement complexe. Tous ces éléments font que les problèmes d'écoulement biphasique en milieux poreux résistent à la compréhension à la fois de la recherche académique et industrielle depuis plus de cinquante ans.

Si les outils et les technologies utilisés pour la récupération du pétrole sont macroscopiques, les processus physiques qui la gouvernent, eux, se produisent à l'échelle microscopique. Le développement de la microfluidique a révolutionné nos

possibilités de compréhension de ces processus. Il a non seulement permis de fabriquer des milieux poreux modèles dont la géométrie et les conditions de mouillage sont contrôlés mais également de visualiser des écoulements biphasiques. Ces avancées sont des étapes clés pour modéliser les problèmes de récupération du pétrole à l'échelle microscopique [4, 5]. C'est dans ce cadre que s'inscrit ce travail de thèse.

## 1.2 Écoulement biphasique en milieu poreux

Avant de s'intéresser aux écoulements biphasiques à proprement parler, commençons par revenir au cas plus simple des écoulements monophasiques. Le cas d'un écoulement monophasique d'un fluide newtonien dans un milieu poreux est un problème qui peut être décrit par la loi de Darcy. Cette loi macroscopique relie le débit d'injection  $Q$  d'un fluide à la différence de pression appliquée entre les entrées. Elle a été montrée en 1856 dans le cas où le milieu poreux est homogène et isotrope, pour des faibles nombres de Reynolds [6]. Cependant, cette approche ne permet pas de capturer la complexité du problème de déplacement d'une interface qui apparaît dans le cas des écoulements biphasiques.

### 1.2.1 Point de vue hydrodynamique

Le nombre de Reynolds compare les forces d'inertie et les forces visqueuses. Il est défini comme  $Re = \rho UL/\eta$  avec  $\rho$  la masse volumique,  $L$  une distance caractéristique du problème et  $\eta$  la viscosité. La vitesse typique des écoulements dans des puits de pétrole est de quelques mètres par jour, soit  $U \sim 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ . La densité du pétrole est mesurée en degrés API, dans le cas des pétroles non conventionnels, elle est inférieure à  $10^\circ \text{ API}$  ce qui correspond à une densité de 1. La viscosité de ces pétroles est de l'ordre de 1000 cP, et la taille des pores est de l'ordre de la centaine de microns. Le nombre de Reynolds caractéristique des écoulements dans un gisement est donc de l'ordre de  $Re \sim 10^{-6}$ . Cela nous place dans le cadre des écoulements à bas Reynolds, pour lesquels il est possible de négliger les effets inertiels.

Dans le cas d'un écoulement biphasique où les deux fluides sont non miscibles et le nombre de Reynolds est faible, le processus d'invasion peut être décrit par l'équation de Stokes incompressible pour chacun des fluides :

$$\eta_i \Delta \mathbf{v}_i - \nabla P_i = \mathbf{0} \quad (1.1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_i = 0 \quad (1.2)$$

Avec  $\eta_i$  la viscosité de la phase  $i$ ,  $\mathbf{v}_i$  le champ de vitesse, et  $P_i$  le champ de pression. A ces équations, il faut ajouter la continuité des contraintes à l'interface, la valeur



de l'angle de contact à la ligne triple, ainsi que les conditions aux limites au niveau des parois. Cette dernière condition est cependant moins triviale qu'il n'y paraît. En effet, le choix le plus naturel qui serait celui de non-glissement aux parois, mène au paradoxe de Huh-Scriven au niveau de la ligne triple.

**Paradoxe de Huh-Scriven :** Lors d'un écoulement visqueux, les conditions aux limites de non-glissement habituellement utilisées en hydrodynamique imposent que la vitesse s'annule à la paroi. Si la vitesse est nulle à l'interface liquide-solide et que le ménisque avance à une vitesse  $U$ , alors le gradient vertical de vitesse diverge à l'approche du coin, ce qui entraîne une divergence des contraintes visqueuses (fig. 1.1a). C'est ce qu'on appelle le paradoxe de Huh-Scriven [7, 8]. A une distance  $x$  de la ligne de contact, les contraintes visqueuses s'écrivent :

$$\sigma = \eta \partial_z v \sim \eta \frac{U}{x \tan \theta} \xrightarrow{x \rightarrow 0} \infty \quad (1.3)$$

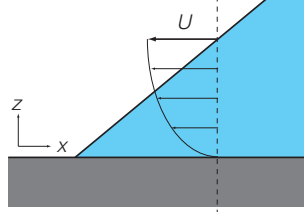


FIGURE 1.1 – Ecoulement d'un coin à la vitesse  $U$ . Le gradient de vitesse diverge à l'approche de la ligne de contact.

Il n'y a dans ce problème qu'une seule longueur caractéristique,  $L$ , qui est la longueur de la ligne de contact et est donc fixée par la géométrie du problème. Cependant, pour éviter que le taux de dissipation visqueuse par unité de longueur ne diverge, il est nécessaire d'ajouter une longueur de coupure microscopique  $\ell_\mu$ . En effet, le taux volumique de dissipation visqueuse s'écrit  $\epsilon \sim \eta(\partial_z v)^2$ . En intégrant, on obtient le taux de dissipation par unité de longueur de la ligne de contact :

$$D_{\text{visc}} = \int_{\ell_\mu}^L \epsilon h dx \sim \eta \int_{\ell_\mu}^L \left( \frac{U}{\tan \theta} \right)^2 x \tan \theta dx \sim \frac{\eta U^2}{\tan \theta} \ln \left( \frac{L}{\ell_\mu} \right) \quad (1.4)$$

La longueur de coupure microscopique,  $\ell_\mu$ , n'est pas décrite par la théorie continue et dépend des propriétés physico-chimiques des liquides et de la paroi. Plusieurs modèles existent permettant d'empêcher la divergence de l'énergie dissipée en introduisant une longueur microscopique, ce qui rend le problème multi-échelle. Certains sont basés sur l'introduction d'une longueur de glissement, comme suggérée par Hocking [9] et mesurée expérimentalement [10]. D'autres reposent sur

l'existence d'un film précurseur [11], ou sur des modèles d'interface diffuse [12]. Un résumé des différentes méthodes existant pour lever le paradoxe de Huh-Scriven est présenté dans la revue de Bonn et al. [7].

### 1.2.2 Paramètres de contrôle :

Dans le cadre des écoulements diphasiques à bas Reynolds, plusieurs nombres sans dimensions permettent de caractériser l'écoulement :

- Le rapport de longueurs  $\ell_\mu/L$  avec  $\ell_\mu$  la longueur microscopique définie dans le paragraphe précédent, fixée par les propriétés physico-chimiques de l'interface et  $L$  est une échelle de longueur fixée par la géométrie. Dans le cadre de cette thèse, la taille des pores est grande devant les longueurs microscopiques.

$$\frac{\ell_\mu}{L} \ll 1 \quad (1.5)$$

- le nombre capillaire, noté  $Ca_i$ , qui compare les forces visqueuses à la tension superficielle,  $\gamma$ , entre les deux liquides. L'indice  $i$  correspond à un des deux liquides, de viscosité  $\eta_i$ , et  $U$  est une vitesse caractéristique du problème :

$$Ca_i = \frac{\eta_i U}{\gamma} \quad (1.6)$$

- le rapport de viscosité entre les deux fluides, aussi appelé mobilité :

$$M = \frac{\eta_1}{\eta_2} \quad (1.7)$$

$i = 2$  correspond à la phase aqueuse, qui mobilise l'huile, notée  $i = 1$ , présente dans le milieu poreux avant l'invasion.

- l'angle de contact à l'équilibre entre la phase aqueuse, le solide, et l'huile.

$$\theta_e = \frac{\Delta\gamma}{\gamma} \quad (1.8)$$

Avec  $\Delta\gamma = \gamma_{2s} - \gamma_{1s}$ , la différence entre la tension des interfaces de chacun des deux liquides avec le solide.

Dans la suite, nous utiliserons uniquement le nombre capillaire de l'eau,  $Ca_2$ , que nous noteront de manière indifférenciée,  $Ca$ , pour que les paramètres de contrôle  $M$  et  $Ca$  puissent être variés indépendamment.

Ces trois paramètres de contrôle sont issus de l'hydrodynamique et la valeur de l'angle de contact à l'équilibre nous permet de distinguer deux cas de figure.

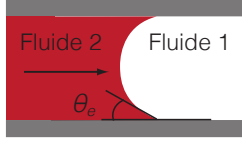


FIGURE 1.2 – Schéma présentant les différents paramètres du problème. Le fluide 1 est le fluide injecté, ou mobile, tandis que le fluide 2 est le fluide statique. L'angle de contact à l'équilibre  $\theta_e$  est défini dans le fluide 2.

**Deux cas : Drainage et imbibition** Suivant la valeur de l'angle de contact à l'équilibre, on peut distinguer deux types d'écoulement biphasiques en milieu poreux :

- Le drainage, qui est le cas le plus étudié, correspond à la situation où un liquide non mouillant déplace un liquide mouillant déjà en place.

$$\theta_e > 90^\circ \quad (1.9)$$

- L'imbibition, qui est le cas contraire, c'est-à-dire lorsqu'un liquide mouillant déplace un liquide non mouillant.

$$\theta_e < 90^\circ \quad (1.10)$$

Les mécanismes physiques d'invasion sont très dépendants des conditions de mouillages, et mènent, dans un milieu poreux, à la formation de motifs d'invasion qui diffèrent grandement selon que l'on soit en cas de drainage ou d'imbibition.

## 1.3 Formation de motifs

Historiquement, les études sur les écoulements biphasiques en milieux poreux étaient menées dans des carottes, soit prélevées sur les puits, soit fabriquées artificiellement, ce qui empêchait la visualisation directe de l'écoulement à l'échelle du pore. Avec le développement de la microfluidique, les premiers systèmes expérimentaux permettant d'étudier les écoulements biphasiques à l'échelle locale sont apparus. De nombreuses études ont alors cherché à faire le lien entre les mécanismes à l'échelle du pore, et le motif d'invasion macroscopique. Nous allons résumer les principaux résultats de ces études dans cette section.

### 1.3.1 Drainage

Des deux mécanismes physiques cités précédemment, le drainage est celui qui a été historiquement le plus étudié, principalement pour deux raisons. D'une part,

parce que le pétrole des premiers puits exploités mouille les roches qui l'emprisonnent, et ensuite car parmi les premières études portant sur les écoulements biphasiques, beaucoup utilisaient l'air comme fluide mobile, avec un angle de contact élevé  $\theta_e > 180$ . Cela a eu pour conséquence qu'encore aujourd'hui, le processus de drainage est bien mieux compris que celui d'imbibition.

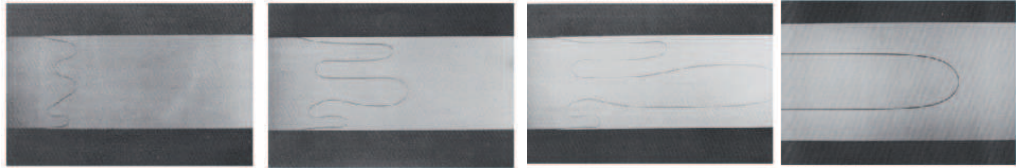


FIGURE 1.3 – Destabilisation de l'interface entre deux liquides par l'instabilité de Saffman Taylor dans une cellule de  $w = 5,4$  cm de large et  $b = 0.8$  mm d'épaisseur. Issue de [13].

**Digitation visqueuse en cellule de Hele-Shaw** La géométrie la plus simple pour étudier les écoulements biphasiques est celle de la cellule de Hele-Shaw, qui est expérimentalement facile à fabriquer. Une cellule de Hele-Shaw consiste en deux plaques séparées par une épaisseur qui est faible comparée à la longueur et à la largeur de la cellule. Les premières expériences de drainage en milieu confiné ont été menées par Saffman et Taylor dans une cellule de ce type, où un liquide peu visqueux pousse un liquide plus visqueux ( $M > 1$ ) et ont permis de mettre en évidence l'instabilité dite de digitation visqueuse (fig. 1.3)[14]. Au lieu d'avancer en formant un front plan, l'interface se déstabilise et donne naissance à des doigts. La compétition entre les différents doigts conduit alors à une solution stationnaire où un doigt unique se propage à vitesse constante, en occupant une fraction  $\lambda$  de la largeur du canal. Une description 2D où l'écoulement est moyenné sur l'épaisseur de la cellule permet de prédire la largeur  $\lambda$  en fonction d'un nombre capillaire modifié  $1/B = 12Ca/\epsilon^2$ , avec  $\epsilon$  le rapport d'aspect de la cellule de Hele Shaw.

Alors que le mécanisme de sélection des doigts est bien compris, il a été observé expérimentalement que ce doigt se déstabilise quand le rapport  $1/B$  devient grand (fig. 1.4) [15, 16]. Des épisodes de "tip-splitting" où l'extrémité du doigt se scinde en deux apparaissent, donnant naissance à une structure branchée. L'approche bidimensionnelle de l'instabilité ne permet donc pas d'appréhender toute la complexité du problème. En pratique, lorsque le doigt avance dans la cellule de Hele-Shaw, il laisse un film de mouillage le long des plaques (fig. 1.4). Ce type de film de drainage a été étudié théoriquement par Bretherton [17] lors du déplacement d'une bulle d'air dans un capillaire. Il a montré que l'épaisseur du film

était proportionnel au nombre capillaire à la puissance  $2/3$ ,  $Ca^{2/3}$ . Park et Homsy [18] ont vérifié que cette loi était applicable à un doigt de Saffman-Taylor dans une cellule de Hele Shaw. Le drainage dans une cellule de Hele-Shaw est donc un phénomène aujourd'hui bien compris, et les modèles prenant en compte le dépôt d'un film mince qui modifie le saut de pression à l'interface donnent un bon accord avec les résultats expérimentaux [18, 13].

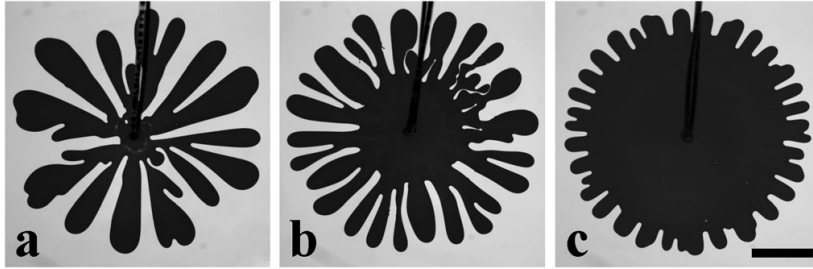
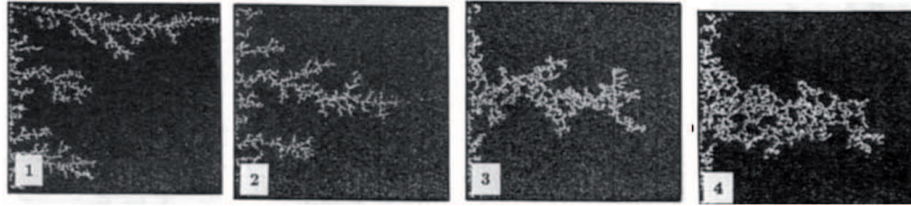


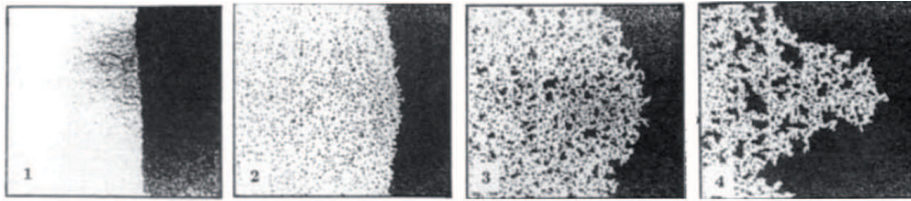
FIGURE 1.4 – Motif de digitation dans une cellule de Hele-Shaw pour différents rapports de viscosité. Le liquide mobile est un mélange eau/glycérol coloré, et le liquide statique de l'huile silicone (transparente). (a)  $\eta_{in}/\eta_{out} = 0.0033$  ( $\eta_{out} = 296.7$  mPa.s,  $\eta_{in} = 0.99$  mPa.s), (b)  $\eta_{in}/\eta_{out} = 0.14$  ( $\eta_{out} = 345.1$  mPa.s,  $\eta_{in} = 46.6$  mPa.s) and (c)  $\eta_{in}/\eta_{out} = 0.42$  ( $\eta_{out} = 530.3$  mPa.s,  $\eta_{in} = 224.4$  mPa.s) . Echelle : 4 cm. Tiré de [19].

**Drainage en milieu poreux** Dans le cas d'un milieu poreux, à l'échelle du pore, la dynamique d'invasion est dominée par la compétition entre les effets visqueux et la capillarité. Dans les régimes dominés par la viscosité, lorsque l'interface atteint un noeud du réseaux, le fluide non mouillant pénètre tous les canaux avec la même probabilité. Dans ce cas, la géométrie du poreux n'est pas importante, et le rapport de viscosité entre le fluide injecté et le fluide en place déterminera la morphologie des motifs. Lorsque la capillarité domine le processus d'invasion, la pression du fluide non-mouillant doit franchir une barrière correspondant à la pression capillaire pour envahir un canal. La pression capillaire étant inversement proportionnelle à la taille des canaux,  $P_c = 2\gamma/R$  avec  $R$  le rayon du canal, le liquide non mouillant envahira préférentiellement le canal de plus grande section. A l'échelle macroscopique, ces différents mécanismes de propagation conduisent à des motifs très différents.

Dans les années 90, Lenormand a identifié trois régimes différents pour le déplacement d'un fluide mouillant par un fluide non mouillant. Ces trois régimes correspondent aux cas limites où deux des trois forces dominant le déplacement



(a) Variation du nombre capillaire de  $Ca = 10^{-6.3}$  à  $10^{-9.1}$  pour un rapport de viscosité de  $M = 10^{4.7}$ . Le front passe d'une invasion type digitation visqueuse vers une invasion de type digitation capillaire.



(b) Variation du nombre capillaire de  $Ca = 10^{-1}$  à  $10^{-5.2}$  pour un rapport de viscosité de  $M = 10^{-2}$ . Le front d'invasion passe d'un régime de déplacement stable vers une invasion de type digitation capillaire.

FIGURE 1.5 – Evolution de la morphologie du front d'invasion à  $M = 10^{4.7}$  et  $M = 10^{-2}$  observée dans le régime de drainage lorsque le nombre capillaire  $Ca$  varie, tirées de [20].

d'une interface sont négligeables.

- Digitation capillaire : lorsque le débit d'injection est très faible, les forces capillaires dominent ( $Ca \ll 1$ ). Le motif est alors ramifié dans toutes les directions, et les doigts peuvent former des boucles (figs.1.63, 1.5(a)4 et 1.5(b)4).
- Digitation visqueuse : Le saut de pression à l'interface est négligeable mais le front est instable pour les mêmes raisons que dans l'instabilité de Saffman Taylor ( $M > 1, Ca > 1$ ). On observe alors la formation de doigts qui sont orientés vers la sortie du milieu poreux (figs.1.62 et 1.5(a)1).
- Déplacement stable : quand le rapport de viscosité est favorable ( $M < 1, Ca > 1$ ) et que le débit d'injection est élevé. Les forces capillaires sont alors négligeables et tous les canaux sont remplis à la même vitesse, ce qui conduit à un motif d'invasion isotrope qui ne tient pas compte de la géométrie du réseau (figs.1.61 et 1.5(b)4).

Il a ainsi proposé un diagramme de phase en fonction des deux paramètres de contrôle  $M$  et  $Ca$  (fig. 1.6).

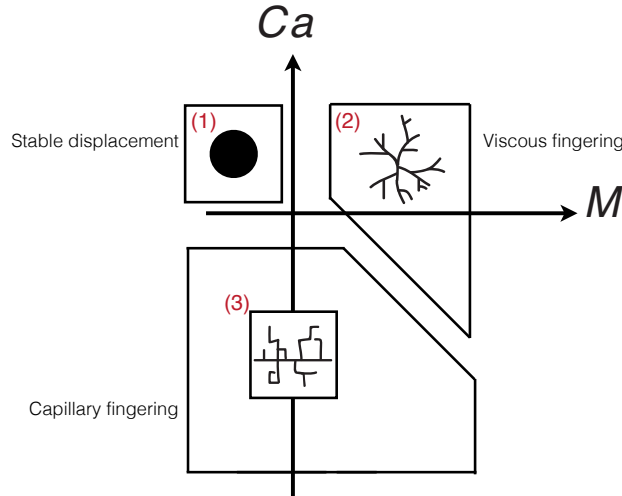


FIGURE 1.6 – Diagramme de phase exploré expérimentalement par Lenormand, tiré de [20]. Les trois régimes asymptotiques sont répartis dans le plan  $(M, Ca)$ . (1) A grand  $Ca$  et bas  $M$  le déplacement est stable. (2) A grand  $Ca$  et grand  $M$ , le front est instable pour les mêmes raisons que dans l'instabilité de Saffman-Taylor. (3) A bas  $Ca$ , les forces visqueuses deviennent négligeables, et le régime est dominé par la capillarité. Les digitations observées sont très différentes de celles obtenus en (2).

Les trois régimes définis par Lenormand permettent de décrire fidèlement les

comportements asymptotiques de drainage en milieux poreux. Des études plus récentes ont revisité ces régimes en utilisant des techniques plus modernes. Ainsi, Cottin et al. [21, 22] ont mené des expériences de drainage ainsi que des simulations utilisant un algorithme de PNM (*Pore Network Model*) dans un milieu poreux ordonné sur un réseau carré, avec une distribution aléatoire de taille de canaux. Ils ont ainsi pu étudier quantitativement la transition entre les régimes de digitation capillaire et de digitation visqueuse ainsi que l'influence du mouillage sur la transition entre le régime de déplacement stable et la digitation visqueuse. Le régime de digitation visqueuse a également été étudié sur un réseau carré régulier par Budek et al. [23] qui obtiennent un très bon accord entre les résultats expérimentaux et numériques sur la morphologie des motifs.

Les différents mécanismes d'invasion à l'échelle du pore ainsi que la morphologie des motifs de drainage sont aujourd'hui bien compris. Les régimes asymptotiques ainsi que les transitions entre ces différents régimes dans des réseaux carrés et dans des cellules de Hele-Shaw ont été étudiés quantitativement, et les résultats expérimentaux ont pu être fidèlement reproduits par des modèles statistiques et numériques.

### 1.3.2 Imbibition

Le cas de l'imbibition, lorsque le fluide injecté mouille les canaux, a été historiquement moins étudié expérimentalement, alors qu'il est tout aussi pertinent pour les problématiques de récupération du pétrole et autres applications industrielles. Il est moins bien compris que le drainage, comme nous allons le voir en passant en revue les principaux résultats expérimentaux à son sujet.

**Imbibition en cellule de Hele-Shaw** Récemment, Setu et al. ont réalisé des expériences de digitations visqueuse en cellule de Hele-Shaw en imbibition [24] pour un rapport de viscosité  $M \sim 2.3$ . Pour cela, ils ont utilisé des liquides colloïdaux à très faibles tensions de surface ( $\gamma = 30 \text{ nN.m}^{-1}$ ), ce qui permet d'atteindre des nombres capillaires élevés à faible vitesse. La faible vitesse du front d'invasion leur a permis d'observer au microscope confocale la transition entre un régime où un ménisque stable se propage, et un régime où le fluide mobile est entraîné au centre du canal, laissant un film fin du liquide mobilisé le long des parois (fig. 1.7). Ils observent que la très faible tension de surface n'empêche pas l'apparition de la digitation visqueuse, et que la courbure dans le plan  $x, z$  a une influence importante sur le seuil de déclenchement de l'instabilité. Ils ont également réalisé des simulations numériques par la méthode de Lattice-Boltzmann, utilisant un modèle d'interface diffuse, qui reproduisent parfaitement cette transition, ainsi que la morphologie des motifs obtenus.



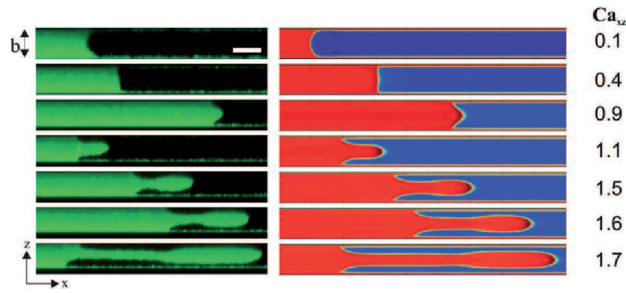


FIGURE 1.7 – Transition d’un ménisque stable à bas  $Ca$  vers un doigt se propageant au milieu du canal. *A gauche* Profil dans le plan  $xz$  de l’imbibition pour des solutions à très faible tension de surface pour différents nombre capillaire. *A droite* Simulation numérique reproduisant parfaitement cette transition. Issue de [24].

Pour des rapports de viscosité  $M > 1$ , Levaché et al. [25] mettent en évidence une nouvelle transition capillaire qui sera présentée en section 1.4.2. Dans une cellule de Hele-Shaw en imbibition, ils observent la destabilisation du ménisque entre de l’eau et de l’huile visqueuse et la formation de films minces d’eau se propageant le long des parois, tandis que l’huile reste immobile au centre du canal (fig. 1.8). La structure tridimensionnelle de ces films minces d’eau impacte fortement la morphologie des écoulements, et les motifs observés sont très différents de la croissance laplacienne habituelle de l’instabilité de Saffman-Taylor. Ils ont ensuite résolu numériquement les équations 1.2 permettant de prédire la forme stationnaire des ménisques et le nombre capillaire critique de la transition d’entraînement. Ce modèle permet également, pour des rapports de viscosité très faibles ( $M < 1$ ), de décrire la formation d’un doigt visqueux similaire à celui observé expérimentalement et numériquement par Setu et al. [24].

**Imbibition en milieux poreux** L’étude de l’imbibition en milieux poreux a commencé par celle de l’imbibition spontanée d’un liquide dans un milieu poreux rempli d’air. L’exemple classique de ce type d’invasion est la montée capillaire du café dans un carré de sucre, ou encore celle de l’encre dans le papier. Dès 1921, Washburn montre que l’invasion d’un liquide dans un capillaire cylindrique permet de modéliser correctement l’invasion capillaire dans un milieu poreux [26]. Il prouve que la longueur de capillaire envahi varie comme  $\ell \propto \sqrt{\gamma r t / \eta}$  avec  $r$  le rayon du capillaire,  $\gamma$  la tension de surface, et  $\eta$  la viscosité du liquide.

Comme dans le cas du drainage, les études portant sur l’imbibition ont d’abord cherché à faire le lien entre les mécanismes de déplacement des ménisques à l’échelle

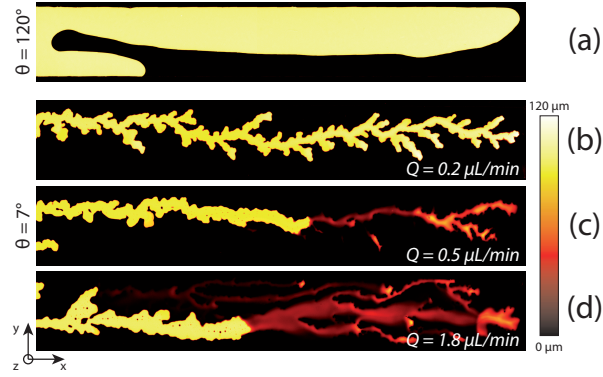


FIGURE 1.8 – Ecoulement biphasique dans une géométrie de Hele-Shaw.  $\eta_{\text{huile}} = 10^3$  cP. (a) Motif de drainage. (b), (c) et (d) Motif d'imbibition à différents débit d'injection. Lorsque le débit augmente, le ménisque se destabilise et on observe la formation de film d'eau se propageant le long des parois. Issue de [25].

du pore avec les motifs macroscopiques obtenus.

En 1984, Lenormand [27, 28], définit quatre mécanismes de déplacement du ménisque (fig. 1.9). Une différence fondamentale avec le drainage est que la pression capillaire est désormais un moteur de l'écoulement. On note l'angle de contact  $\theta$ , la profondeur des canaux  $x$ , et  $d$  la largeur des canaux :

- *Piston type* : Lorsque trois canaux sont remplis en amont, et que le ménisque est à l'entrée du canal, le ménisque avance dans le canal quand la différence de pression à l'interface est égale à la pression capillaire :  $\frac{P_p^*}{\gamma} = 2\left(\frac{1}{d} + \frac{1}{x}\right) \cos \theta$  (fig. 1.9a).
- *Snap off* : Lorsque le liquide mouillant est dans les coins du canal, il y a *Snap off* quand le liquide non mouillant n'est plus en contact avec les parois du canal, c'est-à-dire qu'un film du liquide mouillant recouvre les parois [29]. La destabilisation du cylindre d'huile est due à l'instabilité de Rayleigh-Plateau. La pression capillaire correspondante est :  $\frac{P_s^*}{\gamma} = \frac{2(\cos \theta - \sin \theta)}{d}$  (si  $d < x$ ) (fig. 1.9b).
- *I1* : Le nom 'I1' correspond à la situation où le liquide non mouillant n'est plus que dans un canal adjacent. le pore est envahi lorsque le ménisque ne touche plus les parois, ce qui correspond à une pression capillaire :  $\frac{P_{I1}^*}{\gamma} = \frac{\sqrt{2}}{d} + \frac{2\cos \theta}{x}$  (fig. 1.9c).
- *I2* : Le nom 'I2' signifie que seuls deux canaux adjacents sont remplis du fluide non-mouillant. Le liquide mouillant envahit le pore lorsque le ménisque touche le point A, ce qui correspond à la pression  $\frac{P_{I2}^*}{\gamma} = \frac{\cos \theta}{d} -$

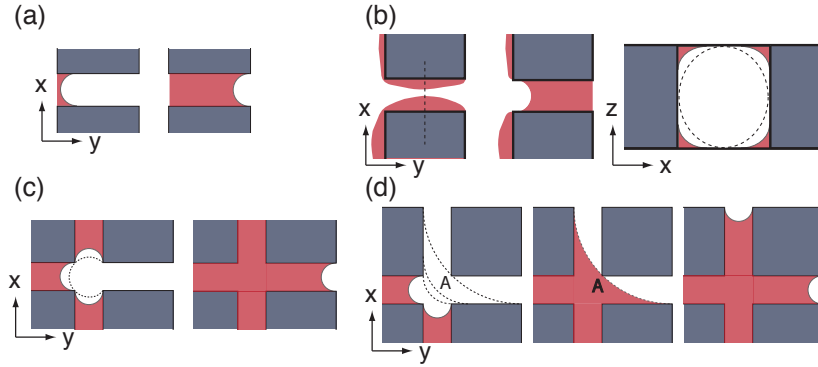


FIGURE 1.9 – Représentations schématiques des différents mécanismes d’imbibition à l’échelle du pore décrit dans [27]. (a) *Piston type*. (b) *Snap-off* où le cylindre d’huile se destabilise lorsque le liquide mouillant recouvre les parois. (c) *I1*, le pore est envahi lorsque le ménisque se détache des coins des obstacles. (d) *I2*, quand deux canaux adjacents sont remplis du liquide mouillant, les ménisques se joignent à l’intersection des canaux, et gonflent jusqu’à atteindre l’obstacle suivant.

$$\frac{1}{d\sqrt{2}} + \frac{2\cos\theta}{x} \text{ (fig. 1.9d).}$$

Ces mécanismes microscopiques ont un impact important sur la morphologie des motifs d’imbibitions. En fonction de la géométrie du milieu poreux et du forçage, on observe différents régime d’imbibitions.

- Lorsque  $M < 1$  et  $Ca$  grand, c’est le cas bien compris de l’imbibition stable (fig. 1.10 gauche). Dans ce cas, comme lors de l’expérience quotidienne du café qui imbibe un sucre, un front stable avance dans le milieu poreux rempli d’air. Pour des nombres capillaires élevés, la différence de pression entre les fluides est en effet supérieure à la pression capillaire des canaux. Dans ce cas, tous les canaux sont envahis simultanément. Le front d’invasion est isotrope et le motif n’est pas impacté par la géométrie du réseau .
- A bas  $Ca$ , la différence de pression est inférieure ou du même ordre que les pressions capillaires. C’est le régime qu’on appelle « Imbibition capillaire », observé sur l’image de droite de la figure 1.10. Le milieu poreux se remplit ligne par ligne, et le résultat est un motif qui reflète la géométrie sous-jacente du réseau.
- A très faible  $Ca$ , Lenormand conjecture d’autres mécanismes de propagation, où l’eau n’envahit pas toute la hauteur des canaux, et le déplacement du liquide non mouillant n’est pas complet. Ils peuvent alors observer des épisodes de *Snap-off*.

A partir de ces observations, Lenormand a ainsi proposé un diagramme de phase pour l’imbibition, bien qu’il n’ait observé expérimentalement que la zone

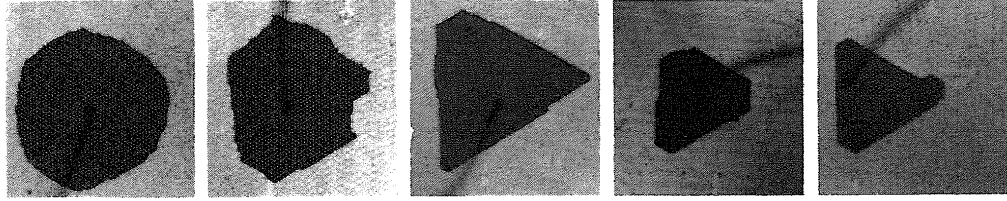


FIGURE 1.10 – Motif d’imbibition d’huile dans l’air dans un réseau triangulaire avec une faible dispersion de tailles des pores ( $M < 1$  et  $\theta_e = 0$ ). Lorsque le nombre capillaire diminue, de droite à gauche, l’invasion passe d’un régime d’imbibition stable et isotrope, à un régime d’imbibition capillaire, où le front reflète la géométrie du réseau.  $Ca = 10^{-3}, 10^{-3.7}, 10^{-4}, 10^{-5}, 10^{-6}$ , . Issue de [20].

$M < 1$  (fig. 1.11). Pour les grands nombres capillaires, la viscosité domine. Lenormand propose donc que lorsque  $Ca$  est grand, le diagramme de phase soit identique à celui observé dans le cas du drainage (fig. 1.6). Pour  $M < 1$ , il reporte l’observation d’un front stable et ne dépendant pas de la géométrie du poreux, tandis que pour  $M > 1$ , il prédit l’observation de digitation visqueuse, identique à celle observée dans le cas du drainage. A bas  $Ca$ , les motifs sont réguliers, et suivent la géométrie du réseau. C’est le régime d’imbibition capillaire, observé expérimentalement pour  $M < 1$ . A très faible  $Ca$ , le liquide mouillant se déplace le long des rugosités et des coins et des épisodes de *Snap-off* provoquent l’apparition de clusters de liquide mouillant, où toute l’épaisseur des canaux est remplie. Ce régime est appelé régime d’imbibition capillaire discontinue.

Il est important de noter que le diagramme de phase proposé par Lenormand n’a été démontré expérimentalement que pour  $M < 1$ . Il prévoit, pour  $Ca$  grand et  $M > 1$ , l’observation d’un phénomène de digitation visqueuse identique à celui observé dans le cas du drainage, et modélisable à l’aide du modèle statistique DLA (*Diffusion-Limited Aggregation*). En 1986, Stokes et al. ont mené des expériences d’imbibition forcée dans une cellule de Hele-Shaw remplie de billes de verre ( $M \sim 200$ ). Ils ont observé que la digitation observée en imbibition, pour  $Ca$  grand, était différente de celle observée dans le cas du drainage. Cette observation remet en cause la validité du modèle de DLA dans le cas de l’imbibition, car il ne prend en compte ni le nombre capillaire, ni les effets de mouillages.

Au cours de cette thèse, un des objectifs a été de valider et d’étendre le diagramme de phase proposé par Lenormand dans [20] grâce à des expériences quantitatives en imbibition forcée, dans le cas où le rapport de viscosité est défavorable, c’est-à-dire  $M > 1$ .

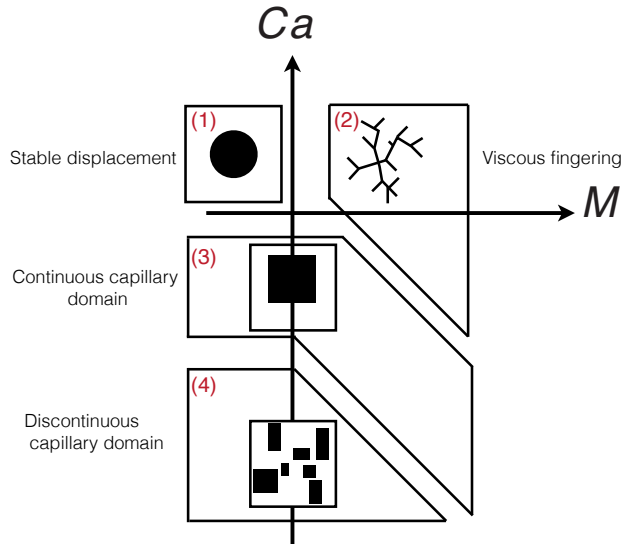


FIGURE 1.11 – Diagramme de phase proposé par Lenormand [20]. (1) Pour  $M > 1$  et  $Ca$  grand, l'imbibition est stable et la propagation du front isotrope. (2) Pour  $M > 1$  et  $Ca$  grand, prédiction d'un régime de digitation visqueuse identique à celui observé en drainage. (3) Pour  $Ca$  bas, Régime d'imbibition capillaire où le motif reflète la géométrie du réseau sous-jacent. (4) A très faible  $Ca$ , le liquide se déplace sous forme de film de coins et le long des rugosités. Des évènements de *Snap-off* entraînent l'apparition de clusters de liquide mouillant

## 1.4 Propagation d'une ligne de contact sur un solide

Comme discuté précédemment, l'approche de Lenormand pour étudier les processus d'invasion en milieu poreux consiste à étudier les mécanismes à l'échelle du pore, pour en déduire des règles d'invasion des canaux. Le but étant de relier la morphologie macroscopique de l'invasion aux mécanismes microscopiques. A l'échelle du pore, l'étude du déplacement de l'interface liquide/liquide est équivalente à celle du déplacement d'un ménisque dans un canal sans obstacle. Pour l'écoulement d'un seul fluide, c'est un problème bien connu, qui peut être décrit par l'hydrodynamique classique : c'est l'écoulement de Poiseuille. Par contre, quand l'écoulement est diphasique, il faut pouvoir résoudre le problème du déplacement d'une ligne de contact sur un solide.

### 1.4.1 Relation de Cox-Voinov

Lors de l'étude du mouvement d'une ligne de contact sur un solide, la première difficulté émerge du paradoxe de Huh-Scriven présenté en section 1.2.1 qui prédit

la divergence des contraintes visqueuses au voisinage de la ligne de contact.

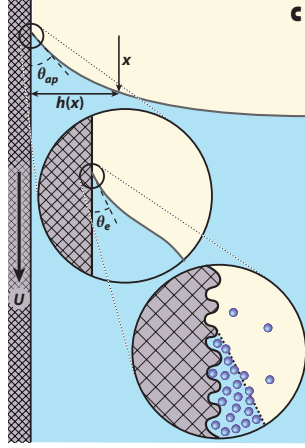


FIGURE 1.12 – Représentation schématique tirée de [30] du profil de l'interface  $h(x)$  pour une plaque plongeant dans un bain liquide à une vitesse  $U$ . Proche de la ligne de contact la courbure de l'interface n'est pas constante, et l'angle de contact apparent à l'échelle macroscopique  $\theta_{ap}$  est supérieur à l'angle de contact à l'échelle microscopique  $\theta_e$ .

A l'échelle mésoscopique, sur des distances inférieures à la longueur capillaire, la forme du ménisque est influencée par les effets visqueux (fig. 1.12). En utilisant l'approximation de lubrification, pour des angles petits, l'équation de Stokes peut être écrite comme une équation différentielle du troisième ordre pour  $h(x)$ , le profil de l'interface :

$$\frac{\partial^3 h}{\partial x^3} = -\frac{\sigma 3Ca}{h^2} \quad (1.11)$$

Avec  $\sigma = +1$  pour une ligne de contact à l'avancée et  $\sigma = -1$  au recul, et  $Ca$  positif dans les deux cas. Dans certaines limites, cette équation a une solution exacte proposée par Voinov [?] :

$$h'(x) \sim \theta(x) \sim \left[ 3Ca \ln \left( \frac{x}{\ell_\mu} \right) \right]^{1/3} \quad (1.12)$$

Avec  $\ell_\mu$  la longueur de coupure microscopique décrite en section 1.2.1. Cette équation signifie que l'angle de contact varie logarithmiquement avec la distance à la ligne de contact, et donc que l'interface est déformé par les effets visqueux. L'équation 1.12 peut être généralisé, même dans le cas où l'approximation de lubrification n'est plus valide [31, 30]. On obtient alors la relation de Cox-Voinov qui prédit

une dépendance de l'angle apparent avec le nombre capillaire tel que :

$$\theta(x)^3 = \theta_e^3 + 9\sigma Ca \ln\left(\frac{x}{\ell_\mu}\right) \quad (1.13)$$

Experimentalement, cette variation de l'angle de contact apparent par rapport à sa valeur à l'équilibre  $\theta_e$  a bien été observée lorsqu'une ligne de contact se déplace et varie bien avec le nombre capillaire en  $Ca^{1/3}$  [32, 33].

### 1.4.2 Transition d'entraînement

Pour une ligne de contact au recul, lorsque le nombre capillaire augmente, la relation de Cox-Voinov prévoit que l'angle de contact diminue. Lorsque l'angle de contact dynamique atteint  $0^\circ$ , il n'existe plus de solution stationnaire pour la forme de ce ménisque, et il y a alors une transition dite d'entraînement avec la formation d'un film d'un des deux fluides le long de la paroi solide. Plusieurs types de transitions d'entraînement ont été observés, et dépendent des propriétés de mouillage du substrat, du rapport de viscosité entre les deux fluides, ainsi que du confinement. Un tableau récapitulatif de ces différentes transitions d'entraînement est présenté en figure 1.13 et classe ces transitions en deux catégories : les transitions dite de mouillage et celles dites de démouillage.

**Transition de mouillage** Le cas le plus étudié est celui de la transition dynamique de mouillage qui a été observé expérimentalement d'abord sur des fibres par Gaucher et Ward en 1922 [35] puis par Morey en 1940 [36] et décrite théoriquement par Landau et Levich [37]. Quand on tire une plaque hors d'un bain de liquide, on observe différents comportements en fonction de la vitesse de la plaque. A basse vitesse, les effets de la tension de surface dominant, et le ménisque va trouver une forme stationnaire avec un angle de contact de recul inférieur à l'angle de contact à l'équilibre. Comme le prédit la relation de Cox-Voinov, cet angle de contact dynamique diminue lorsque la vitesse de la plaque augmente. Si la vitesse dépasse une vitesse critique pour laquelle l'angle dynamique est nul, alors il n'existe plus de solution stationnaire et un film liquide est entraîné par la plaque (fig. 1.14). C'est de cette manière qu'on réalise des dépôts de films minces par *dip-coating*, en sortant un substrat d'un liquide à une vitesse supérieure à cette vitesse critique.

Cette transition a également été observée dans le cas d'une goutte s'écoulant sur un plan incliné [32]. Dans ce cas là, l'angle à l'arrière de la goutte est un angle de contact de recul, et au dessus d'un angle critique, la ligne de contact se déforme pour former un coin, qui perle. Plus récemment, des modèles prenant en compte les effets visqueux à toutes les échelles ont été développés par Eggers et Snoeijer et ont permis de décrire quantitativement ces transitions dynamiques de mouillage [38, 39].

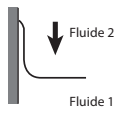
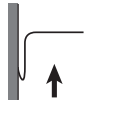



	Géométrie	Paramètre		Type de transition d'entraînement
		Angle de contact	M	
Landau-Levich		non mouillant	$\gg 1$	Doigt
A. Marchand et al		mouillant	$\ll 1$	Doigt
P. Saffman, G. Taylor		non mouillant	$\gg 1$	Doigt
S. A. Setu et al		mouillage total	$\sim 2,3$	Doigt
B. Levaché et al		mouillant	10 à 3500	Film mince

FIGURE 1.13 – Tableau récapitulatif des différents cas de transition d'entraînement étudiés. Avec  $M$  le rapport de viscosité entre le fluide statique (noté 1) et le fluide mobile (noté 2). Le mouillage est défini pour le fluide mobile (noté 2). La flèche est située à l'intérieur du fluide mobile et indique le sens de l'écoulement. Tableau adapté de [34].

**Transition de dé mouillage** La transition de dé mouillage correspond à l'inverse de la transition de mouillage. Cette transition de dé mouillage a été mise en évidence par A. Marchand [40] avec une expérience modèle où une plaque est plongée dans de l'huile silicone (fig. 1.15a). A faible vitesse, le ménisque de liquide est stationnaire, tandis que lorsque la vitesse est supérieure à une vitesse critique, ils observent l'entraînement d'un film d'air le long de la plaque. La vitesse d'entraînement décroît avec la viscosité du liquide, comme prédit par le modèle développé par Duez et al. [41] mais avec une dépendance bien plus faible (fig. 1.15b). Ils attribuent cette différence avec le modèle à la dissipation dans le film d'air, qui ne peut pas être négligée. Il est donc important de traiter le problème à toutes les échelles et pas uniquement dans le fluide le plus visqueux.



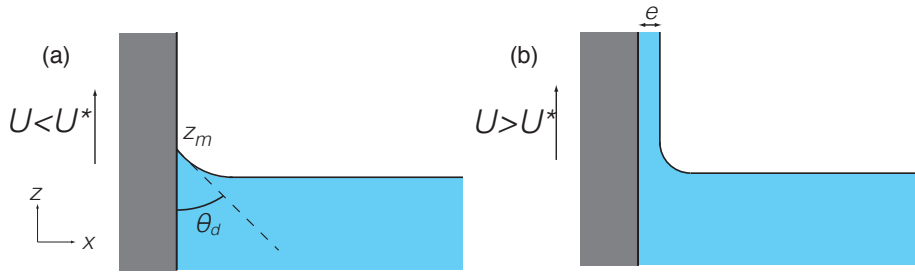


FIGURE 1.14 – Tirage d’une plaque d’un bain liquide. (a) Pour  $U < U^*$ , le ménisque se stabilise à une hauteur  $z_m$  avec un angle de recul  $\theta_d$ . (b) Pour  $U > U^*$  un film liquide d’épaisseur  $e$  est entraîné le long de la plaque.

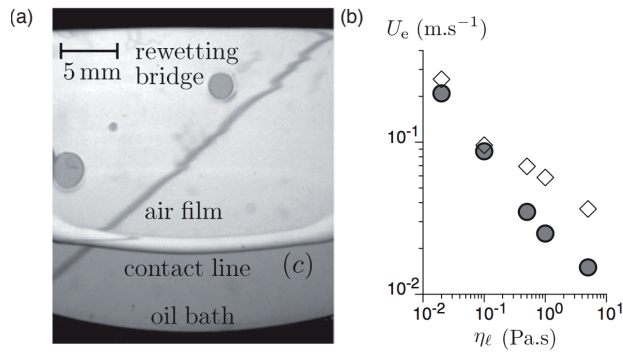


FIGURE 1.15 – (a) Image expérimentale d’un film d’air entraîné par un wafer de silicium dans un bain d’huile silicone ( $\eta_\ell = 100$  cP). (b) Vitesse d’entraînement  $U_e$  en fonction de la viscosité du liquide  $\eta_\ell$ . Issue de [40].

**Stabilité des ménisques en géométrie hétérogène** En 2016, Zhao et al. [42] ont étudié les motifs d’invasion d’eau dans de l’huile silicone ( $M \sim 340$ ) dans des milieux poreux désordonnés dont ils ont fait varier les propriétés de mouillage. Dans cette étude, proche de celle que je présente dans ce manuscrit, ils ont pu réaliser un diagramme de phase dans le plan  $(Ca, \theta_e)$  des motifs d’invasion en milieu hétérogène en variant systématiquement le nombre capillaire de l’écoulement et les propriétés de mouillage. Ils ont observé une transition de mouillage lors du passage de l’imbibition dite faible ( $\theta_e = 60^\circ$ ) à l’imbibition dite forte ( $\theta_e = 7^\circ$ ). Le liquide mouillant ne remplit plus toute l’épaisseur des canaux, et se propage dans les coins formés par les obstacles du milieu poreux.

Les travaux réalisés au cours de cette thèse ont été motivés par la volonté de comprendre comment la présence d’obstacles modifie cette transition d’entraîne-

ment et quelles conséquences cela entraîne sur les motifs d'imbibition.

## 1.5 Principaux résultats de la thèse

L'objectif de cette thèse est de décrire et comprendre les motifs obtenus lors de l'imbibition forcée dans un milieu poreux. Nous présentons ici les principaux résultats obtenus au cours de cette thèse qui sont décrits dans les chapitres suivants.

**Chapitre 2 : Expériences microfluidiques.** Dans le chapitre 2, je détaille les méthodes et techniques expérimentales qui ont permis la réalisation d'expériences d'imbibition forcée dans des dispositifs microfluidiques modèles. J'y explique les choix faits quant à la conception et à la fabrication du modèle microfluidique. En particulier, je présente en détail la méthode de fabrication utilisant le micro-usinage que nous avons mis en place au laboratoire. Dans un second temps, j'explique le protocole utilisé pour réaliser une expérience d'imbibition reproductible. Enfin, je décris les méthodes d'analyse d'image permettant d'accéder à des informations tridimensionnelles sur les films d'eau (fig. 1.16).

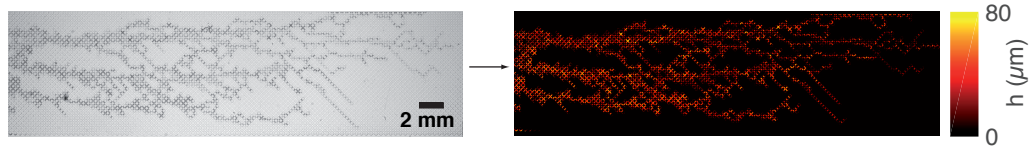


FIGURE 1.16 – Image brute d'un motif d'imbibition résultat de l'injection d'eau dans un milieu poreux rempli d'huile silicone, et mesure locale de l'épaisseur des films d'eau correspondante

**Chapitre 3 : Quatre régimes d'imbibitions : Morphologies macroscopiques.** Dans le chapitre 3, je présente les motifs d'imbibition à la percolation obtenus expérimentalement, ainsi qu'une description de ces motifs basée sur la distinction de quatre régimes d'imbibitions différents à partir de leur morphologie macroscopique. Il est intéressant de comparer ces régimes aux prédictions réalisées par Lenormand et al. [20] décrite en section 1.3.2 (fig. 1.17).

A bas nombre capillaire  $Ca$ , le régime d'imbibition capillaire continue (*Régime A*) est observé. On voit apparaître en augmentant le nombre capillaire un régime où des films fins de liquide mouillant se déplacent avec, localement, des événements de *Snap-off*, qu'on nomme *Régime B*. C'est l'inverse des prédictions de Lenormand, qui prévoit un régime d'imbibition capillaire discontinue, équivalent du *régime B*

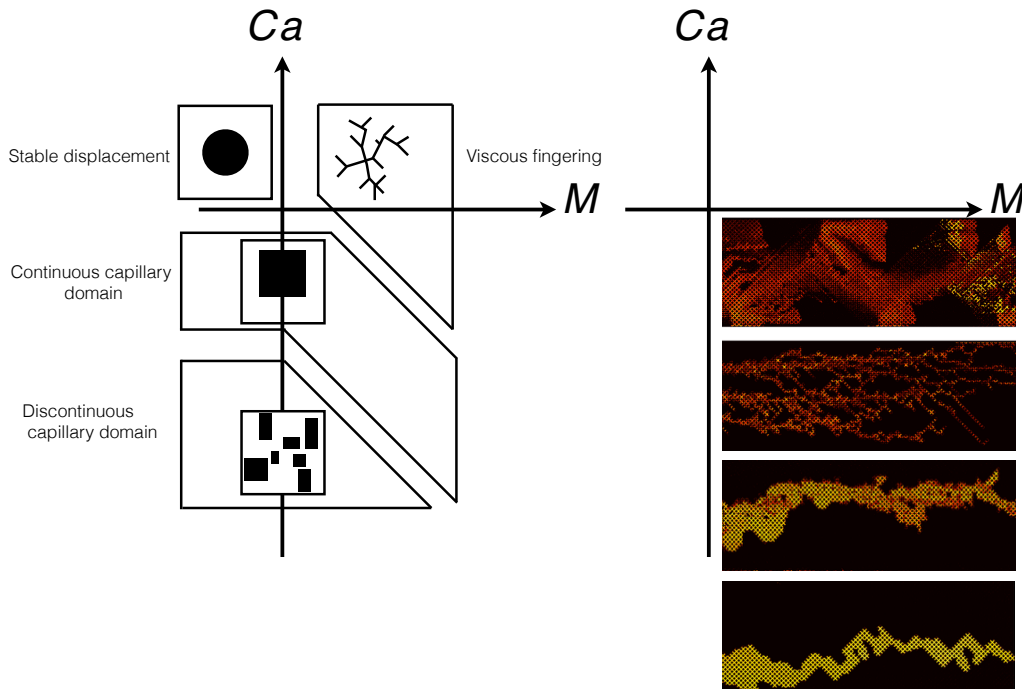


FIGURE 1.17 – Comparaison entre le diagramme de phase proposée par Lenormand, et celui réalisé expérimentalement.

à des nombres capillaires plus faibles que ceux de l'Imbibition capillaire continue (*Régime A*). En augmentant le nombre capillaire, les films fins sont stabilisés par l'écoulement et il n'y a plus de *Snap-off* (*Régime C*). Enfin, à haut  $Ca$ , on observe bien des motifs de digitations visqueuses, pour des raisons différentes de celles avancées par Lenormand, et l'augmentation du nombre capillaire provoque la fragmentation du motif (*Régime D*).

Je montre ensuite que ces quatre régimes possèdent une signature claire sur les observables macroscopiques utilisées pour décrire les motifs d'imbibitions. Enfin j'étudie l'impact d'un autre paramètre de contrôle de l'expérience, le rapport de viscosité entre le fluide mobilisé et la phase aqueuse, sur l'existence de ces régimes.

**Chapitre 4 : Dynamique d'imbibition.** Dans le chapitre 4, après avoir étudié la dynamique macroscopique, j'explique la morphologie des régimes d'imbibitions grâce à la dynamique à l'échelle du pore (fig. 1.18). En combinant mesure d'épaisseur et imagerie confocale, je montre ensuite que la transition entre le régime A et B est le résultat d'une transition d'entraînement de la ligne de contact, tandis

que la transition entre le régime B et C qui présentent la même dynamique de propagation à l'échelle locale s'explique par la suppression d'une instabilité d'interface. Enfin, la transition entre le régime C et D est également une transition de mouillage, qui a pour résultat la propagation de ces motifs dendritiques, similaires à des motifs de drainage.

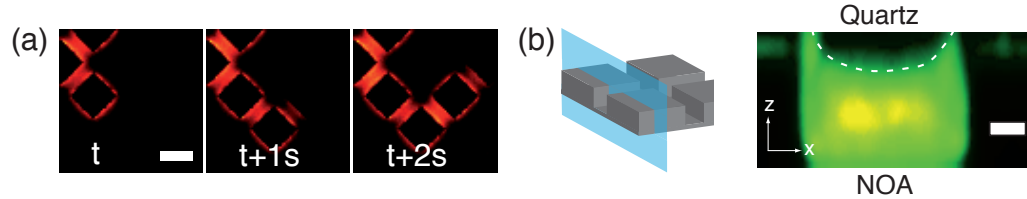


FIGURE 1.18 – (a) Séquence d'images illustrant le mécanisme de propagation des films d'eau. Echelle :  $200\ \mu\text{m}$ . (b) Coupe confocale d'une section transverse du canal après le passage de l'interface. Echelle :  $20\ \mu\text{m}$ .

**Chapitre 5 : Mûrissement des motifs d'imbibition.** Dans le chapitre 5, j'étudie l'évolution des motifs d'imbibition soumis à un écoulement constant jusqu'à atteindre un état stationnaire (fig. 1.19). J'observe que pour les régimes à haut  $Ca$  où le déplacement de l'huile n'est pas complet, les motifs subissent d'importantes modifications structurales sur des échelles de temps grandes devant le temps de percolation. Après avoir identifié l'origine de ce mûrissement, je regarde l'impact de ces changements morphologiques sur les observables macroscopiques et ce que cela implique pour les procédés de récupération tertiaire du pétrole.

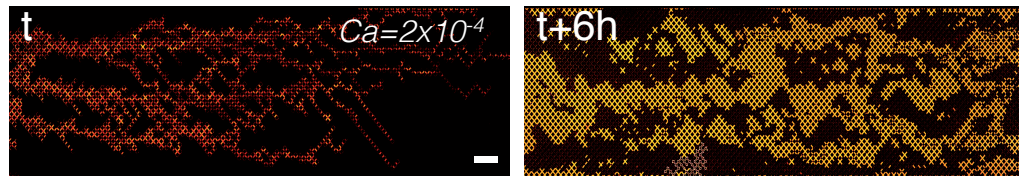


FIGURE 1.19 – Comparaison du motif d'imbibition au temps de percolation et à l'état stationnaire. Echelle :  $2\ \text{mm}$ .



## 2.1 Design d'une expérience d'imbibition modèle

Pour étudier expérimentalement l'imbibition forcée, il est nécessaire de développer un système expérimental permettant la visualisation d'un écoulement biphasique dans un milieu poreux hydrophile dont la géométrie est contrôlée. Dans ce chapitre, je fais le choix de détailler les méthodes et protocoles utilisés pour la mise en place d'une expérience de microfluidique car cela constitue une partie importante de mon travail de thèse. Cependant, la lecture de cette partie technique ne conditionne pas la compréhension des autres chapitres de ce manuscrit.

### 2.1.1 Choix de la géométrie du dispositif

On cherche à concevoir une expérience de microfluidique pour observer le déplacement ainsi que la morphologie d'une interface entre deux liquides dans un milieu poreux. La figure 2.1 présente l'objectif à atteindre. La première contrainte géométrique est sur la dimension du canal : le dispositif doit être contenu sur une lame de microscope standard de taille  $76 \times 26$  mm.

Pour obtenir un maximum de données par réalisation, on veut maximiser la zone du milieu poreux où la dynamique de l'interface ne sera impactée ni par le point d'injection, ni par la sortie du dispositif. L'écoulement étant perturbé sur une distance comparable à la largeur du canal, on décide que le milieu poreux s'étendra sur une zone de 5 cm de long et 1 cm de large afin de garder suffisamment

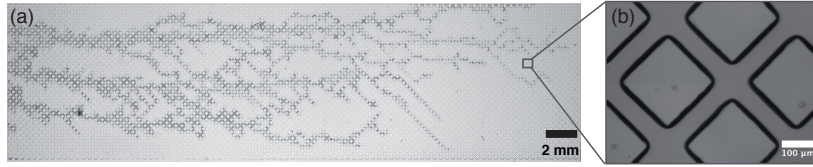


FIGURE 2.1 – Dispositif microfluidique pour l'étude de l'imbibition forcée en milieu poreux. (a) Ecoulement biphasique dans un milieu poreux hydrophile. La phase aqueuse apparaît en nuance de gris tandis que l'huile est transparente. (b) Zoom de la géométrie locale du milieu poreux.

d'espace pour les connectiques et les canaux d'injections. Cela donne une fenêtre d'observation de 3 cm de long.

Afin de pouvoir négliger la gravité, l'épaisseur du canal doit être inférieure à la longueur capillaire des fluides utilisés,  $l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{g|\rho_{\text{eau}} - \rho_{\text{huile}}|}}$ . Avec  $\gamma = 13 \pm 2 \text{ mN/m}$  la tension de surface entre l'huile silicone et la phase aqueuse, on obtient  $l_c = 6.6 \pm 0.5 \text{ mm}$ . Les canaux seront donc d'une épaisseur inférieure à  $100 \mu\text{m}$ .

Les milieux poreux naturels sont des réseaux de pores avec des tailles variant sur plusieurs ordres de grandeurs et des connectivités variables. Dans le cadre de cette thèse, on néglige le désordre, ce qui se traduit par l'étude d'un système modèle où le milieu poreux est régulier. Le milieu poreux modèle sera donc constitué d'obstacles carré de  $200 \mu\text{m}$  de côté régulièrement espacé par des canaux de section carré de  $80 \mu\text{m}$ , formant ainsi un réseau carré d'obstacles comme illustré sur les figures 2.1, 2.2. La porosité  $\phi$  de ce milieu poreux modèle, défini comme le ratio entre le volume de pores et le volume totale, est de  $\phi = 0.49$ .

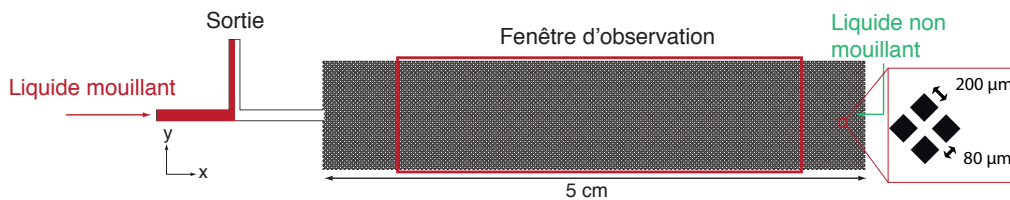


FIGURE 2.2 – Design de l'expérience modèle d'imbibition.

## 2.2 Fabrication de milieux poreux modèles

### 2.2.1 Réalisation de Stickers microfluidiques

Pour fabriquer les dispositifs microfluidiques, on utilise la technique dites des « Stickers microfluidiques » [43] qui consiste à répliquer un moule de départ sur lequel est gravée la géométrie désirée en utilisant les propriétés adhésives de la résine photosensible NOA81 (Norland Optical Adhesive) avant de fermer le dispositif à l'aide d'une lame de microscope (en verre ou en Quartz). Les différentes étapes de fabrication d'un sticker sont présentées sur la figure 2.3).

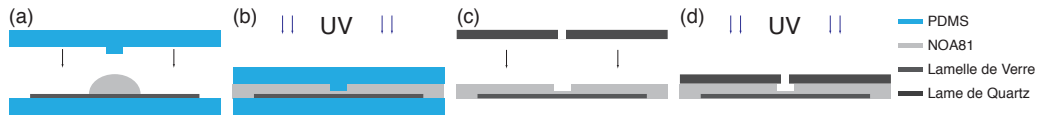


FIGURE 2.3 – Représentation schématique du protocole de fabrication d'un sticker à partir d'un moule en PDMS

A partir d'un timbre en PDMS (polydimethylsiloxane) portant la géométrie voulue, on fabrique une réplique en NOA.

- On pose sur une surface plate de PDMS une lamelle de verre, qui adhère au PDMS. On y dépose une goutte de NOA et on y imprime le timbre en PDMS portant le motif (fig.2.3a). Pour faciliter l'étalement de la NOA, on peut la faire chauffer à  $50^\circ$  à l'aide d'une plaque chauffante ce qui réduit sa viscosité. Le timbre de PDMS étant conservé sous-vide, il suffit d'attendre une dizaine de minute pour enlever les bulles d'air qui ont éventuellement été piégées au cours du processus.
- On insole ensuite  $7s$  à  $10\text{ mW}\cdot\text{cm}^{-2}$  (Lampe Hamamatsu LC8) pour réticuler la résine tout en laissant une fine couche de résine encore réactive sur la surface du sticker (fig.2.3b).
- Une fois les timbres en PDMS délicatement retirés, on obtient une surface patternée adhésive. Il ne reste qu'à refermer le canal microfluidique en pressant le sticker à la lame de microscope, en quartz dans notre cas, préalablement percée (fig.2.3c).
- Pour terminer la réticulation et s'assurer que l'adhésion est effectuée, le dispositif est insolé plus d'une minute à  $30\text{ mW}\cdot\text{cm}^{-2}$  (fig.2.3d). On cuit le dispositif une fois assemblé à l'étuve à  $90^\circ$  pendant  $12h$ . La température de transition vitreuse de la NOA étant autour de  $80^\circ$ , cette étape permet à la NOA de se réorganiser ce qui améliore la résistance mécanique du dispositif en renforçant l'adhésion avec la lame de microscope.

Le dispositif ainsi obtenu à partir de la méthode des stickers est la réplique nég-



tive exacte du timbre en PDMS. La première étape de la fabrication d'un sticker microfluidique est de fabriquer un moule à partir duquel fabriquer le timbre en PDMS. Ce moule doit être de la même polarité que le sticker final.

### 2.2.2 Réalisation du motif initial

Je décris dans cette section deux techniques efficaces et complémentaires qui permettent de réaliser les moules à partir duquel les timbres en PDMS sont fabriqués.

#### Fabrication d'un moule par Photolithographie

Le procédé de photolithographie est une technique classique qui consiste à appliquer un film fin d'une résine photosensible sur un substrat, puis à l'exposer à travers un masque formé de zones opaques et de zones transparente. Ce protocole permet de reproduire le motif du masque et de former ainsi un moule. Je présente ici les différentes étapes de cette technique classique sans les détailler.

Pour fabriquer un moule en utilisant la photolithographie, on commence par déposer une résine photosensible, ici de la SU8, sur un wafer de silicium. A l'aide d'une pipette, une goutte de résine est déposée au centre du wafer qu'on spincoat pour l'étaler de manière homogène. La vitesse de rotation du spincoater est adaptée en fonction de l'épaisseur de la couche de résine désiré. Le wafer est ensuite déposé sur une plaque chauffante pendant une étape dite de soft-baking au cours de laquelle le solvant s'évapore, ce qui rigidifie la résine. On expose ensuite la résine aux UV (365 nm) à travers un masque du motif désiré. La résine SU8 étant négative, les zones exposées aux UV réticulent. Après une étape de post-baking, on développe le motif en l'immergeant dans du développeur, ce qui permet d'enlever toute la résine non réticulée. On rince ensuite le moule à l'isopropanol pour éliminer les traces de développeur.

Pour la réalisation d'un motif d'épaisseur  $80\ \mu\text{m}$  on utilise de la résine SU8 3050, qu'on étale à l'aide d'un spin coater à 1650 rpm. Le soft baking se fait à  $95^\circ$  pendant 30 min. L'exposition nécessaire aux UV est de  $250\ \text{mJ}/\text{cm}^2$  ce qui correspond à 30 s d'exposition pour une lampe de puissance  $8.3\ \text{mW}/\text{cm}^2$ . Le post-baking est réalisé en deux étapes, d'abord 1 min à  $65^\circ$  puis 5 min à  $95^\circ$ . Il est important de bien laisser la température du moule redescendre à la température ambiante avant de le développer pour éviter les déformations dues aux contraintes thermiques. Le développement se fait pendant 7 min avant rinçage à l'isopropanol. Pour vérifier que le moule ainsi obtenu est conforme aux spécifications, on mesure l'épaisseur de la couche de résine par exemple à l'aide d'un profilomètre mécanique. Avec ce protocole, on obtient un motif d'une épaisseur de  $69.9 \pm 2.5\ \mu\text{m}$  ce qui fait un écart

d'un peu plus de 10% avec l'épaisseur voulue.

### Fabrication d'un moule par Micro-usinage

Le micro-usinage pour la microfluidique est une technique en pleine expansion et que j'ai mis en place au laboratoire de Physique de l'ENS de Lyon [44, 45]. Je fais le choix de détailler cette partie avec comme objectif de donner une méthodologie précise de la fabrication par micro-usinage. Sans être exhaustive, cette partie donne les clés de la réalisation de moules pour la microfluidique à l'aide d'une micro-fraiseuse (CNC-MicroMill, Minitech Machinery). Toutes les valeurs données ici ont été obtenues de manière empirique mais les moules ainsi réalisés sont de qualité suffisante pour être répliqués avec la méthode des Stickers. Tous ces paramètres peuvent être testés de manière systématique pour obtenir de meilleurs états de surface [46].

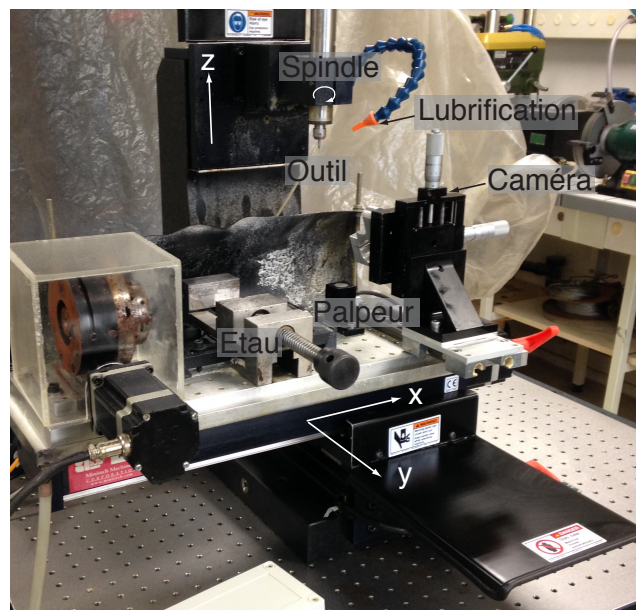


FIGURE 2.4 – Photographie de la microfraiseuse utilisée (CNC-MicroMill, Minitech Machinery). L'outil est fixé sur le Spindle, contrôlé par ordinateur. Un système de lubrification automatique permet de lubrifier le contact entre l'outil et la pièce à usiner, fixé sur l'étau. Un système de visualisation avec une caméra et un palpeur mécanique sont utilisés pour connaître la position de l'outil par rapport à la pièce à usiner. Trois moteurs pas à pas permettent de se déplacer dans l'espace (selon les axes  $x$ ,  $y$  et  $z$ ).

La micro-fraiseuse est une machine-outil contrôlée par ordinateur. Elle est composée d'une broche, qu'on appelle spindle, qui permet de mettre en rotation l'outil (la fraise) pour effectuer les opérations d'usinage (fig. 2.4). Ce spindle est monté sur une platine de translation contrôlée à l'aide de moteur pas à pas, qui permet à l'outil de se déplacer selon l'axe  $z$ . Un plateau permet de se déplacer selon les axes  $x$  et  $y$  sur lequel est fixé un palpeur qui permet de mesurer la taille de l'outil et l'étau auquel la pièce à usiner sera fixée. Grâce à ses trois axes de translation, on peut usiner des géométries tridimensionnelles.

**Du dessin au trajet de la fraise** A partir d'un dessin du motif désiré réalisé avec un logiciel de CAD (Computer-Aided Design), dans notre cas AutoCAD, il faut générer une suite d'instruction pour la micro-fraiseuse qui correspond au trajet de la fraise 2.5a. Cette suite d'instruction est en fait la liste des positions successives de la fraise, et contient les informations de vitesse de déplacement ainsi que de rotation de la broche (spindle). La microfraiseuse qu'on utilise au laboratoire (MiniMill) utilise un langage de programmation, le G-code, version Mach3. Pour générer un script en G-code, plusieurs solutions sont possibles, mais dans tous les cas il est nécessaire de connaître précisément les caractéristiques (matériau, taille, etc. . .) de l'outil et de la pièce à usiner et de choisir les conditions de coupe pour calculer le trajet de la fraise. Pour des dessins très simples, on peut utiliser directement le générateur de G-code contenu dans le logiciel de contrôle de la microfraiseuse, ou bien l'écrire manuellement. Pour des géométries plus complexes, on peut utiliser un logiciel de CAM (Computer-Aided Manufacturing) comme VisualMill, MecSoft Corporation qui à partir du dessin, va optimiser le trajet de la fraise en fonction de la géométrie voulue 2.5b.

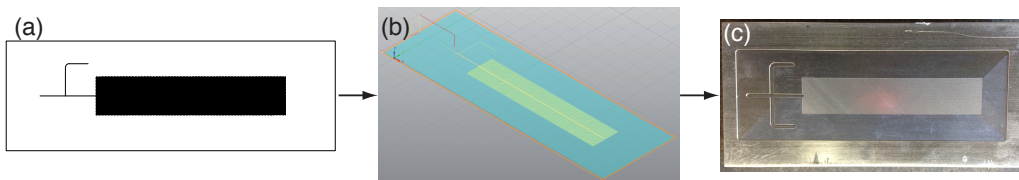


FIGURE 2.5 – (a) Design du dispositif microfluidique à l'aide d'AutoCad. Un milieu poreux de  $50 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$  est relié à des canaux d'injections. (b) Trajet de la fraise généré par VisualMill à partir du design précédent. (c) Moule en aluminium réalisé avec la microfraiseuse. Le milieu poreux fait  $50 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$  tandis que les canaux d'injections font  $1 \text{ mm}$  de large.

**Choix des conditions de coupe** Dans la suite, je ne parlerai que d'usinage avec des fraises en carbures sur de l'Aluminium ou du PMMA, deux matériaux pour lesquels on utilise des paramètres de coupes similaires, et qui sont adaptés à l'utilisation comme moule pour la réalisation de dispositif microfluidique. A chaque couple de matériau (matériau de l'outil/matériau de la pièce à usiner) est associé une gamme de vitesse de coupe, noté  $V_c$  qui ne dépend ni de la machine utilisée, ni des paramètres géométriques de la pièce et de l'outil. Plus la vitesse de coupe est grande, plus l'état de surface sera bon et l'usure de la fraise rapide. Dans le cas des couples Carbure/PMMA, la vitesse de coupe doit être comprise entre 200 et 4000 m/min tandis que pour le couple Carbure/Aluminium, elle doit être comprise entre 150 et 1000 m/min. A partir de la vitesse de coupe et du diamètre de l'outil  $d_e$ , on peut calculer la vitesse optimale de rotation du spindle :

$$n = \frac{V_c \times 10^3}{\pi d_e} \quad (2.1)$$

L'avance par dent  $f_z$  est donnée par le constructeur en mm/tour/dent en fonction des caractéristiques mécaniques de l'outil ainsi que de la matière à usiner. Cela caractérise la quantité de copeau maximale fabriquée par une dent de la fraise pendant une rotation. En connaissant le diamètre de l'outil, l'avance par dent permet de calculer la vitesse d'avance de l'outil  $v_f$  :

$$v_f = f_z \times z \times n \quad (2.2)$$

Avec  $z$  le nombre de dent de l'outil et  $n$  le nombre de rotation par minute. Dans notre cas, les constructeurs de fraises (Magafor et PMT Tools) donnent une avance par dent  $f_z = 0.012 \times d_e$  et  $f_z = 0.009 \times d_e$  avec  $d_e$  le diamètre de l'outil. Lorsque la vitesse optimale de rotation du spindle est supérieure aux recommandations de la fraiseuse, il faut utiliser la vitesse d'avance maximale en conservant la valeur de  $f_z$ . La vitesse maximale de rotation du spindle étant  $n = 60000$  rpm dans le cas de la MiniMill, cela donne une vitesse de coupe comprise entre 20 et 200 m/min pour des fraises de diamètres compris entre 0.1 et 1 mm. En conservant la valeur de  $f_z$ , on obtient des vitesses d'avance  $v_f = 144$  mm/min pour une fraise Magafor de  $100 \mu\text{m}$  de diamètre et  $v_f = 1440$  mm/min pour une fraise de 1 mm de diamètre .

**Choix des paramètres de passe et de l'outil** Les paramètres de passe, la profondeur  $a_p$  et l'engagement latéral  $a_e$  dépendent de la taille de l'outil et des vitesses d'avance et de coupe (Fig. 2.6a). Ces paramètres de passe définissent la quantité de matière que va prendre l'outil lors de l'usinage, et donc la quantité de copeaux qui va être produite ainsi que l'effort de coupe. Si la quantité de copeaux produite est trop faible, la fraise risque d'écraser le matériau au lieu de couper, avec

des risques de brûlure de la surface. Si la quantité de copeau est trop importante, alors il risque d'être mal évacué ce qui endommage l'état de surface et les efforts de coupe seront trop importants. Dans la pratique on utilise des profondeurs de passe  $a_p = 0.2d_e$  pour l'ébauche et  $a_p = 0.1d_e$  pour les passes de finitions et un engagement latéral (overlap)  $a_e = 0.25d_e$ .

La largeur des canaux réalisés en usinage ne doit jamais être inférieure à  $1.1 \times d_e$ . En effet, pour un canal de largeur égale au diamètre de la fraise, l'engagement latéral  $a_e$  est égal au diamètre de l'outil  $d_e$  ce qui donne de très mauvais états de surface. Le canal doit donc être de largeur supérieure au diamètre de la fraise. Cependant, si la largeur est inférieure à 110% du diamètre de l'outil, on risque d'avoir le problème d'écrasement de la matière due à un engagement latéral trop faible.

La profondeur maximale du motif réalisé dépend de la longueur « coupante » de l'outil. Pour des petites fraises ( $d_e < 1 \text{ mm}$ ), la profondeur maximale est de l'ordre de grandeur du diamètre de la fraise.

On choisit toujours la fraise de plus grand diamètre disponible qui permet de réaliser la géométrie voulue car la durée de l'usinage diminue beaucoup avec la taille de la fraise, par la vitesse d'avancée mais également par le nombre de passes nécessaires pour réaliser l'usinage.

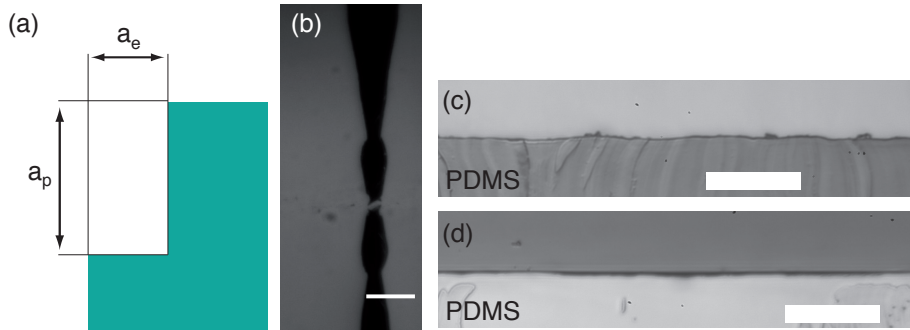


FIGURE 2.6 – (a) Définition de la profondeur de passe  $a_p$  et de l'engagement latéral  $a_e$ . (b) Image d'une fraise de  $50 \mu\text{m}$  et de son reflet sur une surface d'aluminium rectifié avec l'objectif télécentrique. (c) Image d'une fraise de  $50 \mu\text{m}$  en bon état. (d) Coupe d'un moule en PDMS réplique d'une surface en Aluminium non usinée. Echelle :  $50 \mu\text{m}$ . (e) Coupe d'un moule en PDMS réplique d'une surface en Aluminium rectifié avec une fraise de 1 mm.

**Lubrification** Au cours de l'usinage, la lubrification du contact entre la fraise et le matériau à usiner est crucial pour la qualité de l'état de surface. Les fluides d'usinages permettent en lubrifiant l'interface entre l'outil, la pièce et les copeaux

d'évacuer plus efficacement les copeaux et de refroidir l'outil et la pièce. Avec l'atelier de mécanique et d'électronique du laboratoire, nous avons mis en place un système de lubrification automatique en circuit fermé à l'aide d'une pompe. Le lubrifiant est directement injecté au niveau du contact entre la fraise et la pièce pendant l'usinage grâce à un tuyaux d'arrosage modulaire (Loc-line Kopal) fixé sur le support du spindle (fig. 2.4). Le lubrifiant est récupéré par une gouttière entourant le plateau mobile avant d'être remis en circulation. Le lubrifiant utilisé est une émulsion eau-huile de coupe. A posteriori, il apparait que la lubrification à l'air comprimé donne de meilleurs résultats pour l'usinage du PMMA [46].

**Micro-Usinage** Une fois les paramètres de coupe choisis et le G-code généré, on fixe la pièce à usiner et on effectue une première rectification avec une fraise de 1 mm pour être sûre que la surface à usiner soit plane et orthogonale au spindle. Pour cela, il faut d'abord réaliser le « zero pièce », ce qui consiste à indiquer à la machine la surface et le centre de la pièce à usiner. Comme la surface de la pièce est rugueuse, et que la fraise utilisée pour la rectification est relativement grosse ( $d_e \geq 1$  mm), le premier zero pièce peut être fait rapidement, en descendant la fraise en rotation jusqu'à l'apparition du premier copeau. Une fois ce premier surfacage réalisé, il faut à nouveau faire un zero pièce avec la fraise de plus petit diamètre qui sera utilisée pour l'usinage du canal en lui-même. De la précision de ce zero pièce dépend la précision de l'épaisseur du canal. Lorsque le diamètre des fraises est inférieur à 0.5 mm, on ne peut pas voir l'apparition du copeau à l'œil nu. J'ai donc installé un objectif télécentrique (Edmond Optics, grossissement  $\times 8$ ) et une caméra sur la microfraiseuse, ce qui permet d'imager l'extrémité de la fraise (fig. 2.4). On considère que la fraise est en contact avec la pièce lorsque la lumière ne passe plus entre l'image de la fraise et son reflet Fig. 2.6b. La précision sur la position de la fraise par rapport à la surface à usiner avec cette méthode est de 500 nm à comparer avec la précision des moteurs pas à pas de la microfraiseuse qui est de 100 nm. Les fraises de petit diamètre  $d_e < 1$  mm étant très fragiles, cette étape permet également de vérifier que les dents ne sont pas abimées avant de commencer l'usinage (fig. 2.6b). La microfraiseuse Minimill est également équipée d'un palpeur, ce qui permet de calculer la longueur de l'outil. Après avoir effectué le zero pièce, on définit les coordonnées du palpeur et on utilise la fonction fixture, qui mesure la longueur de la fraise. Ainsi, après un changement d'outil, la longueur de la nouvelle fraise est mesurée, et le zero pièce sera adapté automatiquement en fonction de la différence de longueur des outils. Il n'est donc pas nécessaire de refaire le zero pièce à la caméra.

**Ebavurage et nettoyage de la pièce** Après l'usinage, il faut ébavurer et nettoyer la pièce. Comme il est impossible d'ébavurer manuellement des motifs microscopiques, on effectue toujours une dernière passe légèrement au dessus du motif ( $\sim 1 \mu\text{m}$ ), ce qui permet d'éliminer les copeaux accrochés aux arrêtes. Pour nettoyer les pièces après l'usinage, on commence par effectuer un premier rinçage à l'isopropanol (IPA) pour éliminer les copeaux et le lubrifiant, puis on place les pièces dans un bain à ultrason dans l'IPA pendant 30 min. L'éthanol est à proscrire pour le nettoyage du PMMA, cela abîme la surface qui commence à se fendiller quelques semaines après le nettoyage.

**Contrôle de la géométrie** Pour vérifier la géométrie et l'état de surface des moules obtenus par micro-usinage, une technique simple et peu coûteuse consiste à les répliquer en PDMS, et faire une coupe au scalpel qu'on peut alors facilement observer au microscope par la tranche. Avec cette technique, on peut mesurer la rugosité en calculant par exemple l'écart type de la surface du PDMS. On compare la rugosité d'une pièce d'Aluminium avant et après rectification avec une fraise de  $d_e = 1 \text{ mm}$  sur la figure 2.6c et d. On trouve des rugosité autour de  $5 \mu\text{m}$  pour une surface non traité, alors qu'après une passe de rectification, la rugosité est de l'ordre de 100 nm. L'écart entre la géométrie mesurée sur la réplique en PDMS et celle imposée est également inférieur au micron.

### Comparaison Photolithographie/Micro-usinage

Dans la pratique, le micro-usinage est une technique complémentaire à la photolithographie. Elle permet de fabriquer des prototypes rapidement, sans avoir à commander de masque chez un fournisseur extérieur et d'accéder facilement à des géométries tridimensionnelles. Cependant, les arrêtes très coupantes des masques fabriqués en micro-usinage rendent le démoulage du timbre en PDMS plus complexe. C'est pour cette raison que les milieux poreux fabriqués au cours de ma thèse sont des répliques d'un moule obtenu par photolithographie. Pour conclure sur cette étape de fabrication, le tableau ci-dessous récapitule les spécificités de chacune de ces deux méthodes.

	Micro-Usinage	Photolithographie
Etat de surface	$< \mu\text{m}$	$\sim \mu\text{m}$
Précision sur la hauteur	$< \mu\text{m}$	10%
Reproductibilité	Oui	Non
Géométrie 3D	Pente continue	Multi-couches
Angles aigus	Seulement externe	Oui
Zone de travail	$30 \times 20 \text{ cm}$	12 cm
Coût/Moule	$< 1e$	$\sim 150e$
Temps de fabrication	15 min - 5h ( $\propto$ complexité du motif)	2h (indépendant du motif)
Temps de commande	Non	Oui (Fabrication du masque)

### 2.2.3 Traitement de surface

La résine photosensible NOA81 à partir de laquelle sont fabriqués les dispositifs est hydrophobe sans traitement de surface avec  $\theta_a = 87^\circ$  pour l'eau dans l'air. Pour travailler en imbibition, il faut que la phase aqueuse soit mouillante et donc diminuer l'angle de contact.

#### Contrôle des propriétés de mouillage

Pour contrôler les propriétés de mouillage de notre dispositif microfluidique, on utilise une méthode de traitement de surface développée au laboratoire [25]. Cette méthode repose sur l'insolation par un UV-Cleaner (Jelight 42X) normalement utilisé pour nettoyer les surfaces qui émet à  $\lambda = 184.9 \text{ nm}$  et  $\lambda = 253.7 \text{ nm}$ , deux longueurs d'ondes qui se situent dans les UV profonds. La première longueur d'onde est absorbée par l'oxygène de l'air, formant des molécules d'ozone tandis que la seconde casse les chaînes des contaminants organiques et détruit les molécules d'ozone, ce qui permet de nettoyer efficacement les surfaces et d'atteindre ainsi le mouillage total sur le verre et le quartz. L'exposition aux UV profonds permet d'augmenter l'énergie de surface de la NOA et de la rendre hydrophile. On peut varier continuellement ses propriétés de mouillage, et donc l'angle de contact en changeant le temps d'exposition (fig. 2.7). Dans la suite de cette thèse, les dispositifs seront traités pendant une durée de 30 min ce qui donne un angle de contact de l'eau dans l'air de  $\theta = 7^\circ$  et un angle de contact de l'eau dans l'huile silicone de  $9^\circ$ . Les UV profonds ne traversant ni le verre, ni la NOA, on expose le dispositif à travers la lame de Quartz. Pour protéger des surfaces du traitement aux UVs, il suffit de les recouvrir d'un film de plastique ou de verre. Pour des masques simples,



on utilise du ruban adhésif qu'on colle directement sur la lame de quartz à travers laquelle les UVs se propagent.

Le principal inconvénient de l'UV Cleaner est que la lampe chauffe ( $> 80^{\circ}\text{C}$ ) et les échantillons peuvent délaminer à cause de la différence de coefficient d'expansion thermique entre le Quartz et la NOA. Pour éviter la délamination, il faut s'assurer que l'adhésion entre le Quartz et la NOA est bonne, d'où l'importance de l'étape de cuisson à  $90^{\circ}\text{C}$  des stickers décrite en section 2.2.1.

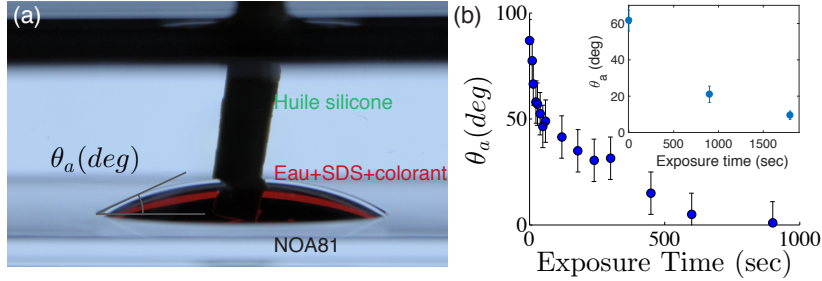


FIGURE 2.7 – (a) Mesure de l'angle de contact de l'eau dans l'huile silicone. (b) Courbe extraite de [25]. Angle de contact d'avancée d'une goutte d'eau sur un film de NOA81 dans l'air en fonction du temps d'exposition aux UV profonds. Inset : Angle de contact d'avancée d'une goutte d'eau sur un film de NOA81 dans l'huile silicone en fonction du temps d'exposition aux UV profonds.

### Stabilité du traitement de surface

Pour vérifier l'efficacité et la stabilité dans le temps du traitement de surface, on mesure l'évolution au cours du temps de l'angle d'avancée de l'eau sur des surfaces conservées dans l'air et dans l'huile silicone. On voit que le traitement est stable sur des temps allant de plusieurs heures dans l'huile silicone à plusieurs jours dans l'air. La légère augmentation de l'angle de contact avec le temps de stockage est sans doute plus due à une contamination. Les résultats sont présentés sur la figure 2.8 qui rassemble des données provenant de [25] et des mesures que j'ai faites (rond violet).

### Compatibilité avec les liquides

Certaines Huiles Silicones (Roth, M=50-350) modifient le traitement de surface. La mesure des angles d'avancé donne bien  $\theta = 10^{\circ}$  à la sortie de l'UV Cleaner, comme pour les huiles silicones Bluesil (Bluestar Silicone). Pourtant, après 20 min d'immersion dans l'huile silicone Roth, et avec la même méthode de mesure, l'angle

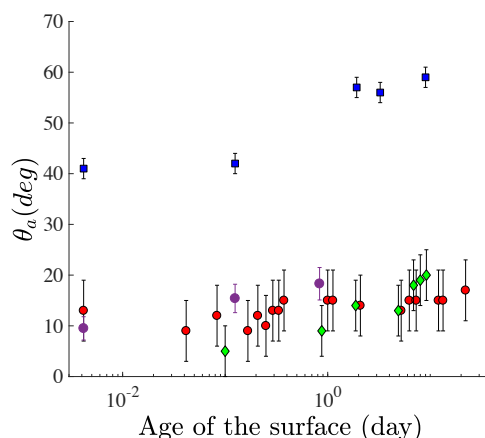


FIGURE 2.8 – Variation de l’angle de contact en fonction du temps de stockage. (carré bleu) : surface exposée 200 s, conservée dans l’air. (rond rouge) : Surface exposée 30 min, conservée dans l’air. (rond violet) : surface exposée 30 min, conservée dans l’huile silicone. (diamant vert) : surface exposée 30 min, conservée dans l’hexadecane.

de contact a doublé. La durée de préparation de l’expérience ainsi que la durée de l’expérience en elle-même étant de cet ordre de grandeur, ce vieillissement du traitement de surface a été l’origine d’un problème de non reproductibilité de l’expérience. Avec le même traitement de surface, les mêmes liquides et les mêmes conditions expérimentales, j’obtenais des angles de contacts dynamiques très différents, qui dépendait en fait du temps que j’avais mis à lancer l’expérience. Il semble donc que les huiles silicones fournies par Roth ont une interaction avec le traitement à l’UV Cleaner, qui n’a pas été observé avec d’autres huiles silicones comme celles fournies par Bluestar Silicone ou avec d’autres molécules organiques, comme l’hexadecane [25].

Une des différences entre les huiles silicones Roth et Bluesil est que la première est vendue dans des récipients en plastiques tandis que la seconde est distribuée dans des flacons en verre. L’interaction avec le traitement de surface est peut-être causé par le stockage dans des récipients en plastique de l’huile silicone, certains plastifiants y étant solubles. Cette explication est appuyée par le fait que le même problème de vieillissement du traitement de surface a été observé avec des huiles Bluesil stockées pendant plusieurs années dans des tubes en plastique (Falcon).

La résolution de ce problème de non-reproductibilité lié aux conditions de stockages de l’huile silicone peut paraître triviale, cependant il a fallu plusieurs mois pour identifier la source du problème. Pour éviter ce problème de contamination du traitement de surface, et l’incertitude sur les propriétés de mouillages, tous les résultats présentés dans cette thèse sont obtenus avec des Huiles silicones Bluesil

stockées dans des récipients en verre.

## 2.3 Contrôle des écoulements

Les étapes précédentes permettent de fabriquer un dispositif microfluidique modélisant un milieu poreux hydrophile adapté à la réalisation d'expériences d'imbibition forcée. Il faut maintenant mettre en place un système d'injection, pour induire un écoulement biphasique contrôlé.

### 2.3.1 Méthode d'injection

#### Connectiques

La première étape consiste à relier le dispositif aux systèmes d'injection. On fabrique des connectiques en PMMA qui ont l'avantage d'être transparentes, contrairement à la plupart des connecteurs microfluidiques disponibles dans le commerce. Cela permet de s'assurer qu'aucune bulle d'air ne reste piégée dans les connectiques, et ne forme un réservoir de compressibilité. Ces connectiques sont des parallélépipèdes de  $5\text{ mm} \times 5\text{ mm} \times 10\text{ mm}$  percé d'un trou de  $1\text{ mm}$  de diamètre dans lequel on insère un tube (CIL, Tefzel/Etfe) de diamètre interne  $500\text{ }\mu\text{m}$ . Elles sont alignées avec les entrées et fixées à l'aide de scotch double face découpé en utilisant une découpeuse à vinyle (Graphtec). Pour assurer l'étanchéité et la résistance à la pression, on renforce l'adhésion de ces connectiques en déposant autour de la colle epoxy (RS) (fig. 2.9).

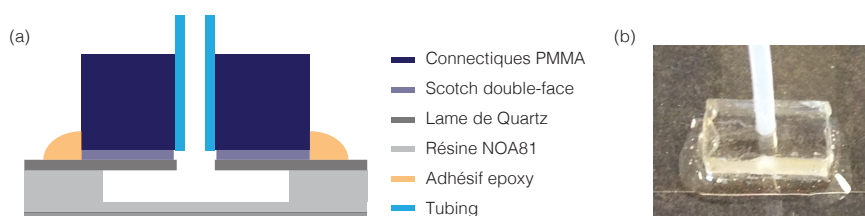


FIGURE 2.9 – (a) Schéma d'une connectique. Les connectiques sont fixées aux dispositifs microfluidiques à l'aide de scotch double-face, et l'étanchéité est assurée par un bourrelet de colle epoxy. (b) Image d'une connectique fixée sur un dispositif fonctionnel.

#### Injection des fluides

L'injection de fluides dans des canaux microfluidiques peut être faite de deux manières différentes : en imposant une différence de pression à l'aide d'un régula-

teur de pression, ou en imposant un débit constant à l'aide d'un pousse-seringue. La phase aqueuse et l'huile ayant des viscosité différentes, la résistance hydraulique du canal change au cours de l'invasion du milieu poreux par la phase aqueuse. Si on injectait la phase aqueuse à pression imposée, le débit et donc la vitesse d'invasion changerait au cours de l'expérience.

Dans la suite de ce manuscrit, toutes les expériences sont faites en imbibition forcée, c'est-à-dire que le liquide mouillant est injecté avec un débit constant à l'aide d'un pousse seringue de précision (Nemesys, Cetoni) et de seringues Hamilton (Gastight). La pression de l'huile est maintenue constante  $P_{\text{huile}} = 200$  mbar à l'aide de régulateurs de pression (Parker) et d'une carte d'acquisition (Vellmann) contrôlée par un programme LabView. Le système d'injection est schématisé sur la figure 2.10.

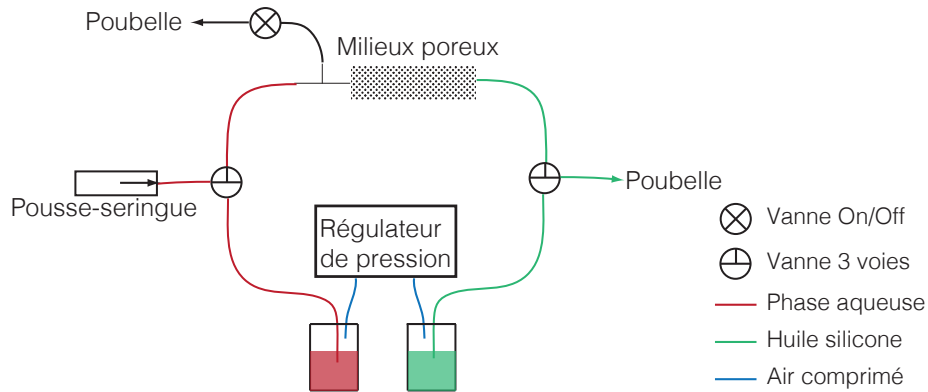


FIGURE 2.10 – Schéma du système d'injection. Le milieu poreux est relié aux systèmes d'injection et à une voie d'évacuation. Un point d'injection pour la phase aqueuse est relié à un pousse seringue et un régulateur de pression à travers une vanne 3 voies. Un point d'injection pour l'huile silicone est contrôlé en pression. Une voie d'évacuation est relié à une vanne On/Off.

### 2.3.2 Séquence d'injection et conditions initiales

L'expérience consistant à observer l'interface entre deux liquides non miscibles, l'eau et l'huile, il faut réussir à fabriquer cette interface sans piéger de bulle d'air ni créer de gouttes en amont de la fenêtre d'observation. Le canal d'injection de la phase mouillante est connecté à un canal d'évacuation via une jonction en T, ce qui permet de former une interface plane à l'entrée du milieu poreux comme schématisé sur les figures 2.2, 2.11. Pour assurer la reproductibilité des expériences d'imbibition forcée, le remplissage du poreux se fait selon un protocole d'injection présentée Fig. 2.11 .

- Etape 1 : L'huile est injectée à pression imposée par l'entrée situé à l'extrémité du poreux
- Etape 2 : Lorsque l'interface huile-air atteint la jonction en T, on injecte, également à pression imposée, la phase aqueuse afin de limiter le piégeage de bulles d'air dans les connectiques. L'eau et l'huile s'écoulent alors simultanément vers la voie d'évacuation
- Etape 3 : A l'aide d'une vanne trois voies, on bascule l'injection d'eau sur le pousse-seringue. Quand l'interface eau-huile est stationnaire au niveau de la jonction en T, on ferme la vanne située sur la voie d'évacuation
- Etape 4 : la phase aqueuse envahit le milieu poreux à débit constant

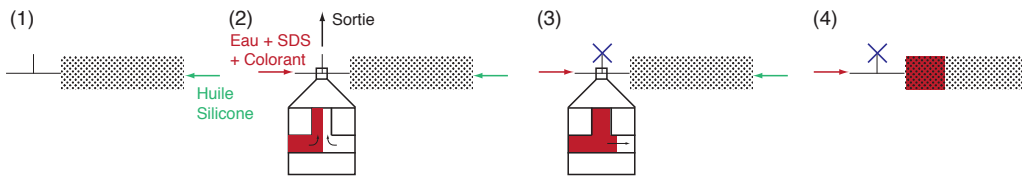


FIGURE 2.11 – Représentation schématique du protocole d'injection. (1) Injection d'huile silicone à pression imposée. (2) Injection simultanée de la phase aqueuse et d'huile silicone. Une interface plate se forme à la jonction en T. (3) Fermeture de la vanne sur la voie d'évacuation. (4) La phase aqueuse envahit le milieu poreux rempli d'huile.

Pour éviter une déstabilisation de l'interface en amont du poreux qui dépendrait des paramètres de l'expérience, les canaux d'injection sont protégés à l'aide d'un masque lors du traitement de surface à l'UVO cleaner qui rend le dispositif hydrophile. De plus pour éviter la contamination du traitement de surface par adsorption des composants de la phase aqueuse (Eau, SDS 1%wt, Colorant 0.2%wt) et assurer la reproductibilité de l'expérience, les dispositifs microfluidiques ne sont pas recyclés et sont utilisés dans la demi-journée suivant le traitement de surface. Au cours de cette thèse, une centaine de dispositifs différents ont été fabriqués.

## 2.4 Acquisition, Analyse d'image et Mesure

Le montage expérimental ainsi formé permet de varier indépendamment les différents paramètres de contrôles de l'expérience, comme la géométrie du milieu poreux, la vitesse d'injection, le rapport de viscosité ou encore les propriétés de mouillage. Il faut maintenant mettre en place un système d'acquisition de données pour exploiter ces expériences.

### 2.4.1 Système d'acquisition

Le système d'acquisition d'image doit permettre d'avoir à la fois un large champ d'observation et une résolution spatiale suffisante pour observer des canaux de  $80\ \mu\text{m}$  sur des distances de l'ordre du centimètre. On utilise un objectif macro à focale fixe (Nikon 60mm Nikkor f/2.8G ED AF-S) montée sur une caméra 8MPx, de sensibilité maximale 14bit (Prosilica GX3300 Allied Vision). L'avantage d'utiliser un objectif macro est qu'il est possible de faire varier la taille de la chambre d'observation et la résolution spatiale en fonction de la distance de l'objectif à l'échantillon. Avec ce système, on obtient une résolution spatiale de  $11\ \mu\text{m}/\text{pixel}$  sur une chambre d'observation de  $3.5 \times 1\ \text{cm}^2$ . Le système de visualisation est présenté sur la figure 2.12. Pour s'affranchir des variations de l'éclairage extérieur qui pourrait perturber les mesures, l'échantillon est placée dans une enceinte noire. On éclaire l'échantillon avec une lampe à LED bleu (Alliance Vision Backlight MDLB-CB100). Le choix du colorant rouge pour la solution aqueuse permet de maximiser l'absorption de la lumière bleue et d'améliorer ainsi le contraste.

### 2.4.2 Mesure locale de l'épaisseur d'eau

#### Principe de la mesure

Pour mesurer localement l'épaisseur des films d'eau on utilise une méthode basée sur l'absorption de la lumière par un colorant. En effet, la loi de Beer-Lambert relie l'absorbance d'une solution à la concentration de colorant, qu'on note  $c$ , à l'épaisseur de liquide traversé  $h$  et à  $\epsilon$  le coefficient d'extinction molaire, qui dépend de la longueur d'onde de la lumière incidente  $\lambda$ , dans le cas d'une lumière monochromatique :

$$\frac{I_{\text{transmis}}}{I_{\text{initiale}}} = e^{-\epsilon(\lambda)ch} \quad (2.3)$$

A concentration de colorant connu, on peut remonter à l'épaisseur locale du film d'eau  $h(x, y, t)$  à partir du rapport entre l'intensité transmise et initiale.

$$I_{\text{transmis}} = I_{\text{initiale}} \times A_{\text{Dispositif}} \times A_{\text{Gap}} \times A_{\text{Support}} \times A_{\text{fluide}} \quad (2.4)$$

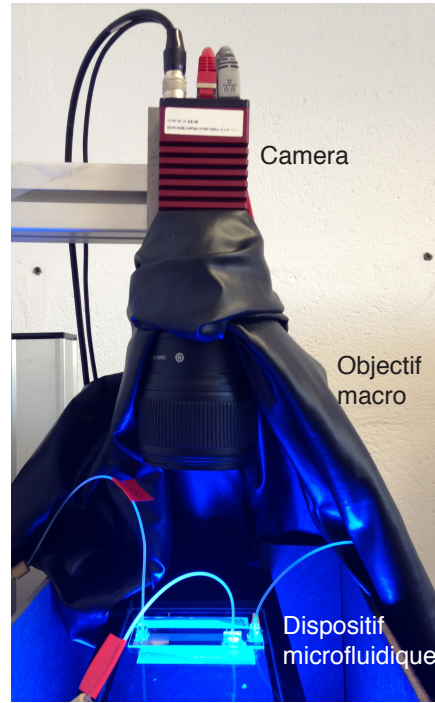


FIGURE 2.12 – Photographie du système d’acquisition. L’échantillon est éclairé par une LED bleu et les images sont acquises à l’aide d’un objectif macro (Nikon 60mm) fixé sur une caméra (Prosilica GX3300) reliée à l’ordinateur en GigE (débit allant jusqu’à 240Mbits/s) et contrôlée par un programme Labview

L’absorbance du dispositif, du gap et du support ne varient pas au cours d’une expérience. Pour isoler le terme  $A_{\text{fluide}}$ , on réalise la même mesure avec un fluide dont on connaît l’absorbance. Ainsi, l’équation précédente devient :

$$\frac{I_{\text{fluide1}}}{I_{\text{fluide2}}} = \frac{A_{\text{fluide1}}}{A_{\text{fluide2}}} \quad (2.5)$$

Au début de l’expérience, le dispositif est rempli d’huile silicone non colorée. On prend donc comme référence une image du canal rempli d’huile avant que la phase aqueuse n’ait envahi le canal.

On en déduit l’épaisseur locale des films d’eau :

$$h(x, y, t) = -\frac{1}{\epsilon C} \ln \frac{I(x, y, t)}{I_{\text{huile}}} \quad (2.6)$$

### Calibration de la méthode de mesure

La mesure de l'intensité permet de calculer l'absorbance d'une solution. Pour calibrer cette méthode de mesure de l'épaisseur d'eau, il faut déterminer le coefficient  $\epsilon$  de l'équation, en connaissant la concentration de colorant  $C = \frac{c}{c_0}$  normalisée par la concentration utilisée lors des expériences  $c_0$ .

$$A_{\text{eau}} = A_{\text{huile}} e^{-\epsilon h c_0 \frac{c}{c_0}} = A_{\text{huile}} e^{-\epsilon_0 h C} \quad (2.7)$$

Pour accéder à  $\epsilon_0 = \epsilon c_0$  il faut donc mesurer l'absorbance dans un canal de hauteur connu entièrement rempli par la solution aqueuse de concentration connu. Pour ce faire, on fabrique un canal en escalier avec des marches de hauteurs connues à partir d'un moule réalisé par micro-usinage. On remplit successivement ce canal avec sept solutions de concentrations différentes connues, comprise entre  $C = 0.05$  et  $C = 1$ . La pente de la courbe  $\ln A$  en fonction de  $hC$  donne la valeur de  $\epsilon_0$ , tandis que l'ordonnée à l'origine donne la valeur de l'absorbance de la solution d'huile silicone (fig. 2.13).

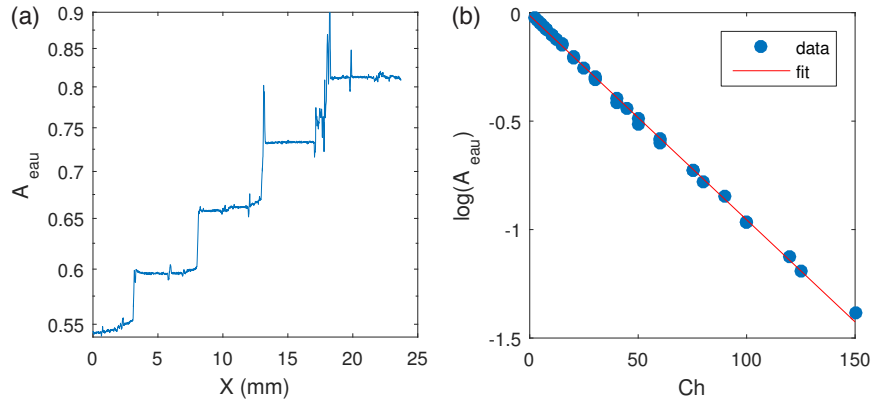


FIGURE 2.13 – Calibration de la méthode de mesure. (a) Absorbance  $A_{\text{eau}}$  moyennée sur  $y$  du canal en escalier pour une concentration  $C = 0.4$ . La hauteur des marches est de  $h = 150, 125, 100, 75, 50 \mu\text{m}$ . (b) Absorbance moyenne  $\ln A_{\text{eau}}$  en fonction du produit  $hC$  mesurée dans le canal en escalier. Le fit linéaire donne :  $\epsilon_0 = (9.415 \pm 0.123) \times 10^{-3}$  et  $A_{\text{huile}} = 0.9866 \pm 0.0072$ .

Un fit linéaire nous donne une pente de  $\epsilon_0 = (9.415 \pm 0.123) \times 10^{-3}$  et on déduit de l'ordonnée à l'origine  $A_{\text{huile}} = 0.9866 \pm 0.0072$ . En connaissant la valeur de la concentration de colorant dans la solution aqueuse  $c_0$  utilisée dans les expériences, on est maintenant capable de mesurer l'épaisseur des films d'eau  $h(x, y, t)$  en chaque point de la fenêtre d'observation et à chaque instant.



### Correction spatiale et temporelle

**Correction Spatiale** L'éclairage dans la zone d'observation n'est pas homogène, comme on peut le voir sur la figure 2.14 où l'intensité moyennée dans la direction Y est tracé en fonction de X. La méthode habituelle pour corriger des inhomogénéité de l'éclairage est de soustraire aux images le fond, qui peut être soit calculé en appliquant un flou gaussien par exemple, soit à partir d'une image de référence. La méthode de mesure d'épaisseur des films effectuée automatiquement cette correction en divisant les images par une image du canal rempli uniquement d'huile silicone. On voit sur la figure 2.14 que la correction spatiale obtenue en divisant l'image par cette image de référence permet de réduire efficacement l'inhomogénéité spatiale. La variation de l'éclairage moyenné selon l'axe  $y$  passe d'environ 20% pour l'image non corrigée, à une variation d'environ 0.3% pour l'image corrigée.

Cependant, cette correction spatiale devient inefficace si le dispositif a été déplacé

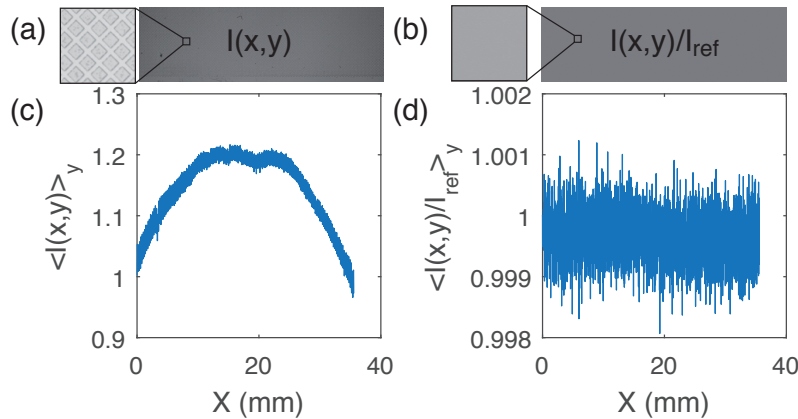


FIGURE 2.14 – Vérification de l'efficacité de la méthode de correction spatiale. (a) Image non corrigée spatialement. L'image zoomée montre la présence des bords de plots. (b) Image corrigée spatialement par division avec une image de référence. Les bords de plots n'apparaissent plus. (c) Profil moyenné selon Y de l'image non corrigée en fonction de X. (d) Profil moyenné selon Y de l'image corrigée par division de l'image de référence.

au cours de l'expérience. Ainsi, l'analyse par mesure de l'intensité transmise donne sur certaines expériences isolées des résultats très bruités, qu'on peut associer aux vibrations du système d'acquisitions. Sur la figure 2.15 est présentée une carte des hauteurs pour une expérience au cours de laquelle le dispositif s'est légèrement déplacé à cause d'un choc sur la table où le montage expérimental est fixé. On observe que les bords des plots sont apparents, contrairement à l'image corrigée

dont le support n'a pas bougé.

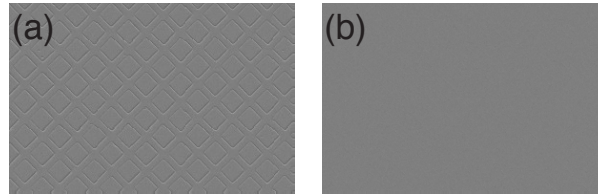


FIGURE 2.15 – a : Image corrigé spatialement mais dont le support a vibré. b : Image corrigé spatialement sans vibration du support.

**Correction temporelle** L'éclairage étant corrigé spatialement, il faut maintenant corriger les variations d'éclairage au cours du temps. Pour s'affranchir des variations temporelles de l'éclairage extérieure à l'expérience, le montage est placé dans une enceinte fermée et noire, comme illustré sur la figure 2.12. Cependant, la mesure de la valeur moyenne de l'intensité dans une zone d'observation au cours du temps n'est pas constante, même lorsque cette zone n'est pas affectée par l'avancée du front d'imbibition (figures 2.16a et b). Pour corriger ces variations temporelles de l'éclairage, on définit une zone de référence, en dehors du canal, dont l'intensité ne devrait pas varier au cours de l'expérience. On corrige ensuite à chaque instant la valeur de l'intensité dans la zone d'observation par l'intensité moyenne de cette zone de référence. Pour vérifier l'efficacité de cette méthode, la zone d'observation est choisie dans une zone non affectée par l'écoulement. La courbe de l'intensité corrigée dans la zone d'observation située hors du canal montre une diminution des variations temporelles de l'éclairage fig. 2.16c). La correction de l'éclairage par l'utilisation d'une zone de référence prise en dehors du canal microfluidique permet de réduire les variations d'éclairage d'un facteur 5.

### Limites et précision

Pour vérifier la validité de cette mesure de hauteur à partir de l'intensité transmise pour une expérience réelle avec une interface eau-huile, on mesure le volume d'eau  $V_{\text{mesuré}}$  présent dans le canal et on le trace en fonction du volume injecté  $V_{\text{inj}} = Qt$  avec  $Q$  le débit imposé au pousse-seringue sur la figure 2.17a. L'écart entre le débit imposé et mesuré est de 4% et peut être en partie expliqué par le fait que le motif peut s'élargir en amont de la zone d'observation, ce qui diminue le débit mesuré.

Cette méthode de mesure repose sur plusieurs hypothèses. D'abord, la loi de Beer-Lambert n'est valide que pour des sources lumineuses monochromatiques.

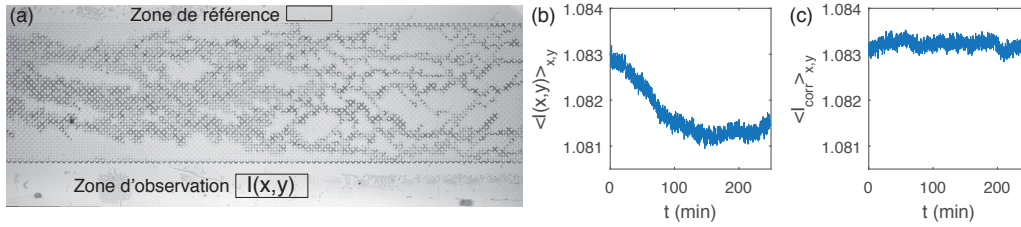


FIGURE 2.16 – Vérification de l’efficacité de la méthode de correction temporelle. (a) Zone d’observation et zone de référence sur l’image non corrigé spatialement. (b) Intensité moyenne de la zone d’observation non corrigé temporellement en fonction du temps. L’intensité dans cette zone n’est pas affecté par l’écoulement. (c) Intensité moyenne de la zone d’observation corrigé par l’intensité moyenne de la zone de référence en fonction du temps. La méthode utilisée pour corriger l’éclairage permet de réduire d’un facteur 5 les variations temporelles.

Dans notre cas, la lampe utilisée est une lampe bleue, mais non-monochromatique. On pourrait améliorer la qualité de la mesure en utilisant un éclairage monochromatique, par exemple à l’aide d’un filtre placé entre la source lumineuse et l’échantillon.

De plus, cette méthode fait l’hypothèse que les deux liquides utilisés sont matchés en indice. La valeur de l’indice de réfraction de l’huile silicone est de 1.40, tandis que celle de l’eau est de 1.33 pour des longueurs d’onde dans le bleu à des températures de 25°. La différence entre ces deux indices de réfraction est faible, cependant cela signifie que lorsque l’interface fait un angle important avec le plan orthogonal, une partie de la lumière incidente est réfléchi. Cela a pour effet de diminuer l’intensité transmise et d’augmenter l’absorbance mesurée. La mesure de  $h$  sera donc surestimée par rapport à sa valeur réelle. On observe parfois ce phénomène au niveau des ménisques (voir Fig. 2.17b).

La résine qu’on utilise pour fabriquer les canaux, la NOA81 a un indice de réfraction de 1.56, et donc différent de celui de l’eau. En conséquence, le bord des obstacles diffuse la lumière, ce qui augmente l’absorbance mesurée sur les pixels proches des bords de plots.

Cette méthode de mesure permet néanmoins de mesurer des variations très faibles de hauteurs. Ainsi, dans les canaux en escalier fabriqués pour réaliser la calibration (fig. 2.18), on observe la présence de rugosités due à la méthode de fabrication par micro-usinage. La coupe du moule en PDMS utilisé pour fabriquer ces dispositifs de calibrations présente de très légères irrégularités, traces du passage de la fraise (fig. 2.18c). Ces irrégularités sont parfaitement observées sur

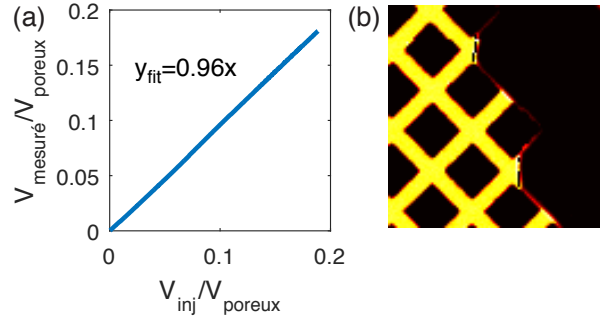


FIGURE 2.17 – Validité de la méthode de mesure d'épaisseur. (a) Volume d'eau mesuré dans le canal en fonction du volume injecté. On observe un écart de 4% avec le débit imposé. (b) Carte des épaisseurs d'eau. Proche du ménisque on observe des pixels noirs et blancs qui correspondent aux défauts dus à l'index matching.

le profil de hauteur mesuré grâce à l'intensité transmise (fig. 2.18d). Cette méthode de mesure utilisant la loi de Beer-Lambert permet donc une mesure locale et précise des épaisseurs d'eau lors d'expériences en imbibition.

### 2.4.3 Imagerie confocale

La technique de mesure des épaisseurs d'eau nous donne accès à des informations quasi-tridimensionnelles en mesurant la quantité d'eau dans le plan  $x, y$  à partir d'une image en niveau de gris. Cependant, cela ne donne aucune information sur la répartition de l'eau à l'intérieur du canal. Pour accéder à la visualisation en trois dimensions de l'interface, une des solutions est l'imagerie confocale. Le principe d'un microscope confocal est de réaliser plusieurs coupes à différents niveaux de profondeurs dans l'échantillon en déplaçant le plan focal de l'objectif, et en bénéficiant de la faible profondeur de champ du système. Ces coupes, fabriquées en balayant l'échantillon avec un laser focalisé, permettent ensuite de reconstruire l'image tridimensionnelle de l'échantillon.

Le microscope confocal utilisé au cours de cette thèse est composé d'un kit Thorlabs permettant de transformer un microscope inversé Zeiss (Axio Observer A1) en microscope confocal par l'ajout de modules comprenant un module d'excitation avec une tête laser à balayage ( $\lambda = 488 \text{ nm}$ ), un module d'acquisition, composé de photomultiplicateurs et une platine de translation en  $z$ . Les objectifs utilisés (Zeiss Plan-neofluar x20 et Achroplan x40) permettent une résolution spatiale respectivement de  $0.74 \text{ pxl}/\mu\text{m}$  et  $1.47 \text{ pxl}/\mu\text{m}$  pour une fenêtre de  $512 \times 512 \text{ pxl}$ . Les vitesses d'acquisition sont de 2 à 8 fps en mode normal, et montent à 30 fps en mode Z-streaming.

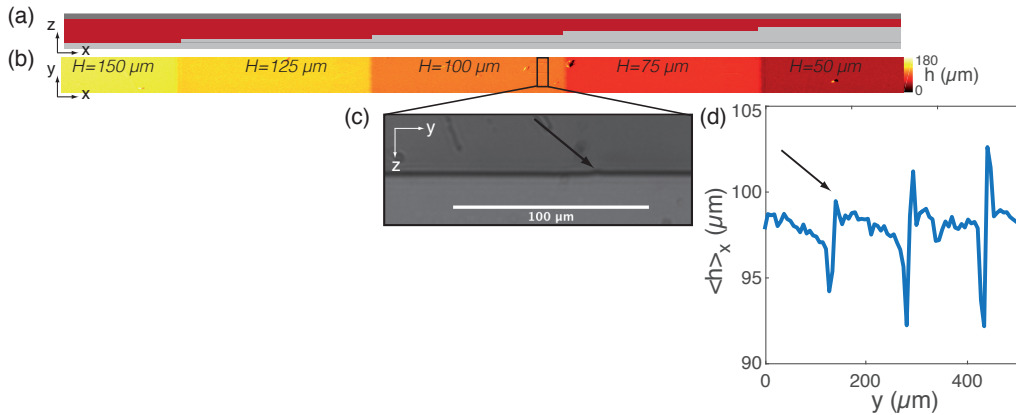


FIGURE 2.18 – Précision de la mesure d'épaisseur. (a) Schéma du canal en escalier utilisé pour calibrer la méthode de mesure. (b) Mesure de l'épaisseur d'eau dans le canal en escalier avec une concentration en colorant connue. (c) Coupe du moule en PDMS utilisé pour fabriquer le sticker du canal en escalier dans la zone encadré d'un rectangle noir sur (b). (d) Profil de l'épaisseur moyenne moyenné sur  $500 \mu\text{m}$  dans la direction  $x$ . La flèche indique le maximum local correspondant au défaut à peine visible sur la coupe (c).

On cherche à réaliser des images de l'interface formée entre la phase aqueuse et l'huile silicone, pour cela on ajoute un colorant fluorescent à la phase aqueuse, la fluoresceine, avec une concentration de 0.02%.

La figure 2.19 montre l'image confocale du dispositif microfluidique rempli uniquement d'huile silicone. On observe que les surfaces de NOA sont auto-fluorescentes à la longueur d'onde  $\lambda = 488 \text{ nm}$ . Cela s'explique par le traitement de surface aux UV-profonds qui rend la NOA traitée auto-fluorescente, comme observé dans l'article [25]. Une solution pour imaginer l'interface sans être gêné par les surfaces de NOA serait d'utiliser une autre longueur d'onde pour illuminer l'échantillon.

## 2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai décrit les différentes méthodes expérimentales mises en oeuvre pour obtenir un dispositif microfluidique hydrophile. Ce dispositif fonctionnel permet l'étude de la morphologie et de la dynamique d'une interface entre deux fluides non miscibles en imbibition, et permet de faire varier indépendamment les uns des autres les différents paramètres de contrôles de l'expérience.

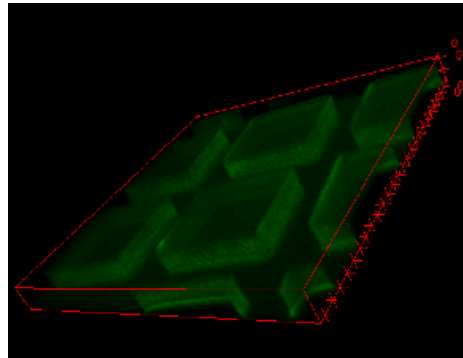


FIGURE 2.19 – Image confocal du dispositif rempli d’huile silicone (sans colorant fluorescent). La couche de NOA traitée aux UV-Ozone autofluoresce à 488 nm

J’ai également présenté une méthode d’analyse d’image permettant de mesurer localement l’épaisseur d’eau à partir de l’intensité lumineuse transmise. Cette mesure permet de calculer différentes quantités physiques qui seront utilisées dans la suite pour étudier l’imbibition en milieux poreux.



---

## Quatre régimes d'imbibitions : Morphologies macroscopiques

---

Pour étudier l'imbibition forcée, on injecte à débit constant une solution aqueuse (Eau + 1%SDS + colorant) dans un milieu poreux hydrophile formé par des obstacles carrés de  $200\ \mu\text{m}$  de côté espacé de  $80\ \mu\text{m}$  et disposés sur un réseau carré orienté à  $45^\circ$  préalablement rempli d'huile silicone (Figs. 2.1, 3.1). Ce montage expérimental est pensé de manière à pouvoir varier les différents paramètres de contrôle de l'expérience indépendamment :

- Le nombre capillaire définit comme  $Ca = \eta_{\text{eau}}Q/\gamma S$  avec  $Q$  le débit d'injection,  $S$  la section des canaux, et  $\gamma$  la tension de surface entre la phase aqueuse et l'huile silicone.
- La mobilité  $M = \eta_{\text{huile}}/\eta_{\text{eau}}$ , le rapport de viscosité des deux liquides non miscibles.
- L'angle de contact à l'équilibre  $\theta_e$  qui caractérise les conditions de mouillages. Dans la suite de cette thèse, le milieu poreux est hydrophile ( $\theta_e = 7^\circ$ ).

### 3.1 Morphologie des motifs d'imbibition

Pour un rapport de viscosité constant ( $M = 560$ ), à géométrie et angle de contact fixés, on observe sur la figure 3.1 une grande diversité dans les morphologies d'invasion lorsque le nombre capillaire varie. Non seulement la morphologie évolue dans le plan  $xy$ , mais elle change également dans le plan orthogonal à la direction de propagation, comme le montre la variation de l'épaisseur d'eau. Pour comparer ces différents motifs, on définit la morphologie à la percolation, ce qui correspond à la forme de l'interface entre l'eau et l'huile au moment où la phase aqueuse



atteint la sortie du dispositif microfluidique. L'analyse de ces morphologies à la percolation permet de définir quatre scénarios d'imbibition différents.

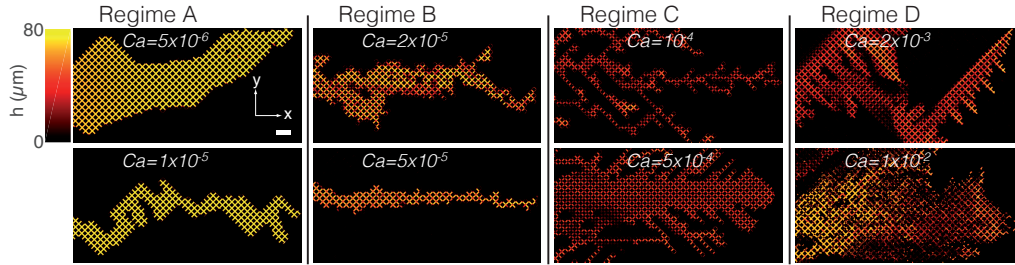


FIGURE 3.1 – Variations du motif d'imbibition avec le nombre capillaire  $Ca$ . La couleur code pour l'épaisseur d'eau.  $M = 560$ ,  $\theta_e = 7^\circ$ . Echelle : 1 mm.

### 3.1.1 Regime A

A bas nombre capillaire,  $Ca < 2.3 \times 10^{-5}$ , un doigt unique se propage du point d'injection à la sortie du canal, et la phase aqueuse remplit toute la hauteur du canal (fig. 3.1). Le périmètre du motif est facété, reflétant la structure carré de la géométrie sous-jacente [47, 48]. Les bords du doigt sont formés par des ménisques dont la propagation s'est arrêté à l'extrémité des canaux séparant les obstacles (fig. 3.2). Le motif à l'échelle du pore est typique de l'imbibition capillaire décrite par Lenormand [20]. Cependant la formation d'un doigt montre que la dissipation visqueuse joue un rôle important. Le milieu poreux étant homogène, dans un régime uniquement piloté par la capillarité et sans dissipation visqueuse, la phase aqueuse remplirait de manière homogène le milieu poreux, avec un front d'invasion plat. Ce régime est donc un crossover entre l'imbibition capillaire et la digitation visqueuse. De plus, de la même façon que pour la digitation visqueuse, où la taille des doigts est fixée par la vitesse, la largeur du doigt diminue avec le nombre capillaire.

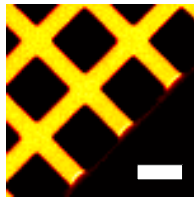


FIGURE 3.2 – La frontière du motif reflète la géométrie du milieu poreux sous-jacent. Les ménisques s'arrêtent au bout des canaux.  $Ca = 5 \times 10^{-6}$ . Echelle :  $200 \mu\text{m}$ .

### 3.1.2 Regime B

En augmentant le débit, dans la gamme  $2.3 \times 10^{-5} < Ca < 9.1 \times 10^{-5}$ , on observe toujours un doigt unique se propager. Cependant, la dynamique de l'interface entre la phase aqueuse et l'huile silicone ne se résume plus au déplacement d'un ménisque stable à travers le réseau d'obstacles. Les fluctuations spatiales de l'épaisseur d'eau indiquent que la phase aqueuse ne remplit pas toute la hauteur du canal. L'eau se propage sous forme de films fins le long des parois, piégeant de l'huile en amont du front d'invasion. Sur la figure (Fig. 3.3), des gouttes d'huile ont été piégées aux noeuds du réseau, entourées par des canaux où l'eau remplit toute la hauteur du canal. Quand le nombre capillaire augmente, la largeur du motif d'imbibition diminue, et le trajet suivi par l'eau devient plus rectiligne.

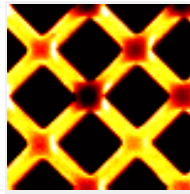


FIGURE 3.3 – Des gouttes d'huile sont piégées aux noeuds du réseaux, entourées de canaux dont toute la hauteur est occupée par la phase aqueuse.  $Ca = 2.3 \times 10^{-5}$ .

### 3.1.3 Regime C

En augmentant encore le débit,  $9.1 \times 10^{-5} < Ca < 1.1 \times 10^{-3}$ , plusieurs doigts avec de multiples branchements sont formés par de fins films d'eau (fig. 3.4). L'eau est majoritairement présente le long des parois des obstacles, ne remplissant que partiellement les canaux, piégeant de l'huile au centre. Il est intéressant de noter que les ramifications forment des boucles fermées (fig. 3.1), ce qui permet de distinguer ces motifs des digitations visqueuses, ainsi que de toutes les autres formes de croissance Laplacienne [49]. En augmentant le débit dans le régime C, le nombre de doigts diminue et leur largeur augmente tandis que l'épaisseur des films d'eau semble inchangée.

### 3.1.4 Regime D

A haut débit,  $1.1 \times 10^{-3} < Ca < 1.1 \times 10^{-2}$ , la morphologie à la percolation est très différente du régime C. La phase aqueuse ne remplit pas toute l'épaisseur du canal. Cependant, les doigts se sont propagés à  $45^\circ$ , suivant les axes du réseaux d'obstacles. Le motif en résultant est ramifié, mais sans intersection. De manière surprenante, ces morphologies rappellent des motifs de croissance dendritique et de

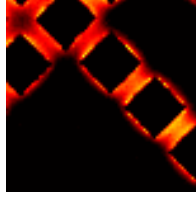


FIGURE 3.4 – Des films d'eau très fins entourent les obstacles, et de l'huile reste piégée au centre des canaux.  $Ca = 1.1 \times 10^{-4}$ .

drainage [50, 23, 51] alors que les propriétés de mouillage n'ont pas été modifiées par rapport aux expériences précédentes : le milieu poreux est hydrophile. En amont du front (fig. 3.5a), le milieu poreux est bien hydrophile, puisqu'on observe des films d'eau qui mouillent les parois. Pourtant, en regardant le motif à l'échelle du pore, la courbure des doigts proche du front d'imbibition fait penser à un milieu hydrophobe (fig. 3.5b). Cette inversion de courbure du ménisque est donc un phénomène dynamique et n'est pas due à un échec du traitement de surface.

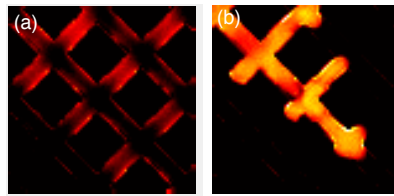


FIGURE 3.5 – Pour la même réalisation de l'expérience,  $Ca = 2.3 \times 10^{-3}$ , l'angle de contact dynamique varie. Il est hydrophile en amont du front d'imbibition (a) tandis qu'il semble hydrophobe au niveau du front d'imbibition (b).

### 3.1.5 Fragmentation

Quand  $Ca > 1.1 \times 10^{-2}$ , les doigts se fragmentent, conduisant à la formation d'émulsions stabilisées par l'écoulement, que ce soit des gouttes d'eau dans l'huile, des doubles émulsions, ou encore des gouttes d'huile dans l'eau, comme présenté sur la figure (fig. 3.6). Des gouttes coalescent, se fragmentent, et ces émulsions sont transportées dans le milieu poreux. La richesse de ce régime mérite une étude plus approfondie, mais dépasse le cadre d'un problème d'imbibition et ne sera donc pas étudiée au cours de cette thèse.

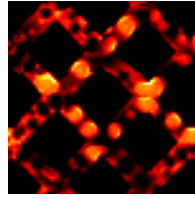


FIGURE 3.6 – Des gouttes d’eau et d’huile sont formées et se déplacent dans le milieu poreux.  $Ca = 1.1 \times 10^{-2}$ .

## 3.2 Impact sur les observables macroscopiques

Une fois ces différents régimes observés et identifiés, on cherche un moyen de les caractériser de manière quantitative. La mesure locale de l’épaisseur d’eau permet de calculer des observables macroscopiques pour caractériser la morphologie de ces motifs d’imbibition à la percolation. Le nombre capillaire,  $Ca$ , a un impact fort sur ces observables, prouvant que les différents régimes observés proviennent de processus physiques différents qui ont des répercussions à toutes les échelles.

### 3.2.1 Observables globales

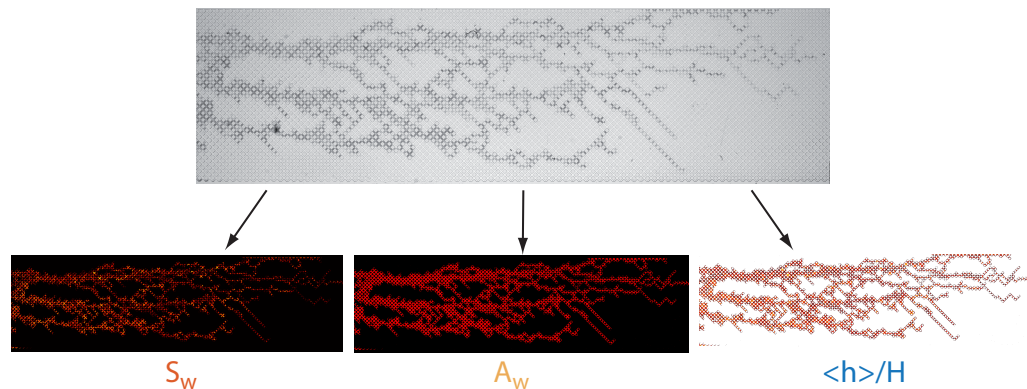


FIGURE 3.7 – A partir du champ d’épaisseur d’eau  $h(x, y)$ , on calcule  $S_w$ , la saturation en eau,  $A_w$  la fraction du poreux mouillée, et  $\langle h \rangle / H$  l’épaisseur moyenne calculée uniquement sur les zones mouillées.

**Saturation.** Une quantité standard utilisée pour décrire les motifs d’imbibition est la saturation en eau, qui correspond au taux de récupération de l’huile.  $S_w$  compare la quantité d’huile extraite du milieu poreux au temps de percolation à

la quantité d'huile présente initialement. De façon équivalente, la saturation est égale à la quantité d'eau mesurée dans le milieu poreux au temps de percolation (fig. 3.7) normalisée par le volume disponible du milieu poreux. Une saturation égale à 1 signifierait que la phase aqueuse remplit tout le milieu poreux, c'est-à-dire que toute l'huile a été extraite.

Cette observable ne varie pas de manière monotone avec le nombre capillaire (fig. 3.8a). Elle commence par diminuer avec le nombre capillaire, avec un minimum à  $Ca = 9.1 \times 10^{-5}$  avant d'augmenter. L'existence de ce minimum est surprenante, car cela signifie qu'il ne faut pas nécessairement augmenter la vitesse d'injection pour augmenter le taux de récupération. Le minimum de  $S_w$  correspond exactement à la transition entre le régime B et le régime C, et permet de différencier ces deux régimes.

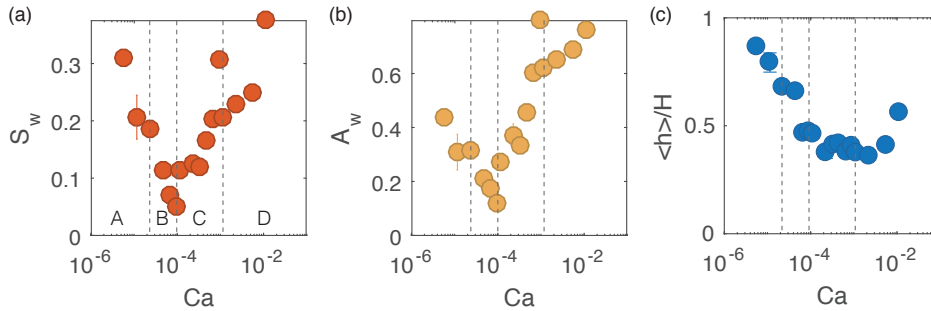


FIGURE 3.8 – (a) Variation de la saturation en eau  $S_w$  avec le nombre capillaire  $Ca$ . Il y a un minimum à la transition entre les régimes B et C. (b) Variation de la fraction de poreux mouillée  $A_w$  avec  $Ca$ . (c) Variation de l'épaisseur moyenne  $\langle h \rangle / H$  avec  $Ca$ . L'épaisseur moyenne est minimum à la transition entre les régimes C et D.

**Fraction du poreux mouillée.** En ignorant les hétérogénéités d'épaisseur de la phase aqueuse, nous pouvons maintenant définir la fraction du poreux mouillée par l'eau  $A_w$ . Cela revient à mesurer l'aire des zones où l'épaisseur d'eau est positive et à normaliser par l'aire disponible du milieu poreux, comme illustré figure 3.7. En pratique, seuls les pixels dont la valeur est supérieure à un seuil, fixé à  $2 \mu\text{m}$ , sont pris en compte, pour limiter le bruit de la mesure. Dans les régimes A et B, la fraction mouillée diminue avec le nombre capillaire (fig. 3.8b), ce qui permet de quantifier la diminution de la largeur des motifs d'imbibition observé qualitativement dans la section 3.1. La fraction mouillée atteint un minimum à la transition entre les régimes B et C, lorsque le doigt unique formant le motif d'imbibition est remplacé par des doigts très ramifiés. Dans les régimes C et D, la

fraction du poreux mouillé par l'eau augmente avec le débit, ce qui correspond à nos observations qualitatives.

**Épaisseur moyenne.** Une autre observable globale pertinente pour la caractérisation des morphologies à la percolation est l'épaisseur moyenne des films d'eau, qui correspond à la moyenne des épaisseurs d'eau uniquement calculée sur les zones mouillées du milieu poreux. Pour calculer cette moyenne  $\langle h \rangle$ , seules les valeurs de l'épaisseur supérieures à un seuil, défini dans le paragraphe précédent et fixé à  $2\ \mu\text{m}$  (fig. 3.7), sont prises en compte. Cette mesure de l'épaisseur moyenne est ensuite normalisée par la hauteur du canal  $H$ .

La variation de l'épaisseur  $\langle h \rangle/H$  avec le nombre capillaire  $Ca$  n'est pas monotone, et présente un minimum à la transition entre les régimes C et D (fig. 3.8c). Le changement dans la morphologie des motifs entre ces deux régimes s'accompagne d'une augmentation de l'épaisseur moyenne, ce qui est cohérent avec les observations qualitatives réalisées en section 3.1. L'existence de ce minimum reflète la différence entre ces deux processus physiques d'invasion et les morphologies qui en résultent.

De manière surprenante, la transition entre le régime A et B n'a pas de signature claire sur la courbe  $\langle h \rangle/H$  en fonction de  $Ca$  (fig. 3.8c). En effet, pour le régime A où l'eau remplit toute l'épaisseur du canal, l'épaisseur moyenne devrait être égale à la hauteur du canal ( $\langle h \rangle/H = 1$ ). À l'inverse, l'hétérogénéité spatiale de l'épaisseur des films d'eau  $h$  dans le régime B entraîne une diminution de  $\langle h \rangle/H$  qui deviendrait inférieur à 1. Cependant, la mesure de  $\langle h \rangle/H$  dans le régime A est inférieure à 1 et il n'y a pas de rupture de pente à la transition entre les régime A et B. Ainsi, dans le régime A, l'épaisseur moyenne diminue avec le nombre capillaire alors que le déplacement de l'huile dans les zones mouillées est toujours complet, la phase aqueuse envahissant toute la hauteur du canal. La diminution de  $\langle h \rangle/H$  va de pair avec l'augmentation de la rugosité de la frontière du motif d'imbibition. On en déduit que cette différence entre la valeur attendue et mesurée de la moyenne dans le régime A s'explique par la présence des ménisques qui forment la frontière du motif d'imbibition.

Les différents régimes d'imbibitions ont donc un fort impact sur ces trois observables globales, et permettent de caractériser les morphologies à la percolation. La transition entre les régimes B et C se traduit par l'existence des minima de la saturation  $S_w$  et de la fraction mouillée  $A_w$  tandis que la transition entre les régimes C et D est reflétée par le minimum de l'épaisseur moyenne  $\langle h \rangle$ . C'est la preuve que les différences qualitatives observées en regardant les morphologies macroscopiques proviennent de processus physiques différents à l'échelle du pore qui

ont des répercussions à toutes les échelles.

### 3.2.2 Distribution des épaisseurs d'eau

La mesure locale de l'épaisseur d'eau permet de calculer la distribution de l'épaisseur des films d'eau,  $P(h)$ , présentée fig. 3.9a.

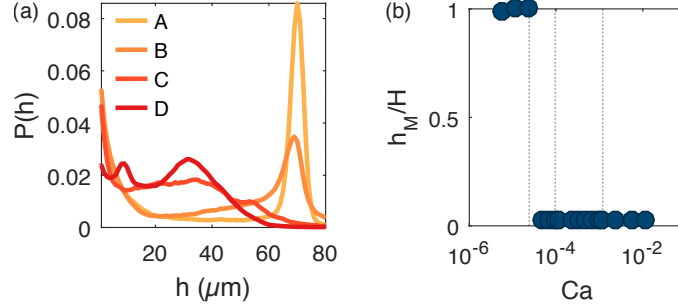


FIGURE 3.9 – (a) Distribution de l'épaisseur d'eau pour quatre expériences aux quatre régimes. A :  $Ca = 1.1 \times 10^{-5}$ , B :  $Ca = 5 \times 10^{-5}$ , C :  $Ca = 1.1 \times 10^{-4}$ , D :  $Ca = 2.3 \times 10^{-3}$ . (b) Variation de la valeur la plus probable de l'épaisseur d'eau  $h_M$  avec  $Ca$ . La valeur la plus probable de l'épaisseur d'eau devient nulle à la transition entre les régimes C et D.

A bas  $Ca$ , en régime A, la distribution est bimodale, avec un maximum global localisé à  $h = H$ . Ce maximum représente la proportion d'eau contenu dans les zones où la phase aqueuse remplit toute la hauteur du canal, c'est-à-dire les zones où le déplacement de l'huile est complet. Un second pic, centré sur  $h = 0$  correspond aux ménisques et plus généralement aux limites du motif d'imbibition. La transition du régime A au régime B coïncide avec l'inversion de l'amplitude des maxima à  $h = 0$  et  $h = H$ . Pour le vérifier, on trace l'épaisseur la plus probable,  $h_M$ , à partir de la distribution des épaisseurs de films d'eau  $P(h)$ , en fonction de  $Ca$  (fig. 3.9b). La valeur la plus probable chute à zéro exactement à la transition entre ces deux régimes.

La distribution d'épaisseur d'eau permet également de noter la transition entre le régime B et C. En effet, en atteignant  $Ca > 9.1 \times 10^{-5}$ , le pic à  $h = H$  correspondant aux canaux complètement remplis d'eau disparaît complètement. Toute l'eau formant le motif d'imbibition est alors contenue dans des films d'eau. Il est important de noter que la distribution est alors une fonction décroissante de  $h$ , avec un plateau entre  $h = 10 \mu\text{m}$  et  $h = 40 \mu\text{m}$ . Il est donc impossible de définir une épaisseur caractéristique des films d'eau pour ces motifs.

Quand le régime D est atteint, et comme pour le régime C, il n'y a pas de pic à canal plein, cependant la distribution est très différente de celle du régime C, puisque deux pics larges sont apparus autour de  $h = 10 \mu\text{m}$  et  $h = 35 \mu\text{m}$ . Ces deux maxima correspondent respectivement aux films très fins déposés en amont du front d'imbibition par la propagation des doigts et aux doigts eux-mêmes.

La distribution des épaisseurs d'eau est donc un bon moyen de distinguer de manière objective les différents régimes d'imbibition à la percolation. L'inversion des maxima à  $h = 0$  et  $h = H$  correspond à la transition entre les régimes A et B tandis que la disparition du maximum à  $h = H$  indique celle avec le régime C. Enfin, l'apparition de pics d'épaisseurs intermédiaires marque la transition avec le régime D.

### 3.3 Influence du rapport de viscosité

Avant d'expliquer l'origine microscopique de ces différents régimes d'imbibition, nous nous intéressons à l'impact de la variation des autres paramètres de contrôle du problème sur l'existence des ces quatre régimes. Dans cette partie, nous regardons comment les motifs d'imbibition sont modifiés par le rapport de viscosité  $M$ , en maintenant le nombre capillaire,  $Ca$ , et l'angle de contact à l'équilibre,  $\theta_e$ , constants.

#### 3.3.1 Morphologie à la percolation

Une première série d'expériences a été réalisée par Bertrand Levaché, dans une géométrie légèrement différente, avec un milieu poreux s'étendant sur  $4 \text{ cm} \times 1.5 \text{ cm}$ , mais localement identique (obstacles carrés de côté  $200 \mu\text{m}$  séparés par des canaux de sections  $80 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m} \times 70 \mu\text{m}$ ). Il a fait varier la mobilité  $M$  entre 5 et 3500, avec  $Ca = 2.2 \times 10^{-4}$  constant (fig. 3.10). J'ai ensuite reproduit certaines de ses expériences, et analysé l'ensemble des données en utilisant les techniques présentées dans la section 2.4.2.

**Régime A.** Pour  $M < 22$ , le motif ressemble à de l'imbibition capillaire classique, ce qui correspond au régime A décrit dans la section 3.1. La phase aqueuse remplit toute la hauteur du canal, tandis que le motif reflète la géométrie du réseau d'obstacles sous-jacent. Pour  $M = 5$  le doigt occupe toute la largeur du canal. L'augmentation de  $M$  a pour résultat un rétrécissement de la largeur du doigt unique.



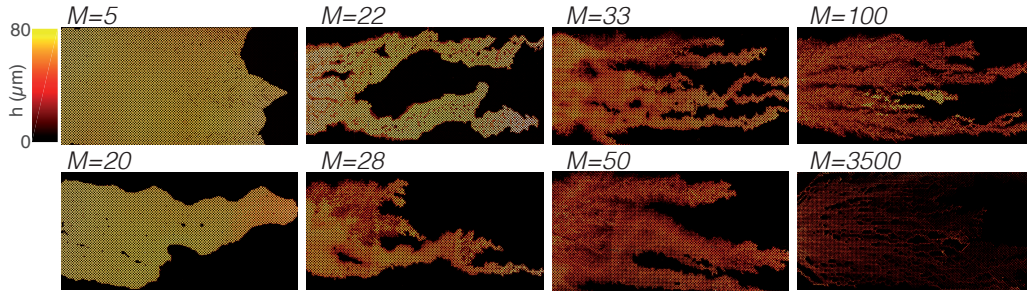


FIGURE 3.10 – Variations du motif d'imbibition avec le rapport de viscosité  $M$ .

**Régime B.** Pour  $M > 22$ , les motifs sont caractéristiques du régime B décrit dans la section précédente 3.1. Toutefois, une différence notable est qu'il n'y a plus un doigt unique. Des films d'eau d'épaisseurs hétérogènes forment un motif de digitation, avec un nombre de doigts qui augmentent avec la mobilité  $M$ . Cette différence dans le nombre de doigts pourrait aussi être le résultat de l'élargissement du canal principal.

**Régime C.** La transition entre le régime B et le régime C est moins nette que lorsque  $Ca$  varie et se produit pour  $28 < M < 50$ . Au dessus de  $M = 50$ , il n'y a pas de doute sur l'appartenance des motifs au régime C. Des films fins forment des motifs très branchés, avec des boucles. L'augmentation du rapport de viscosité  $M$  a pour résultat l'amincissement des films d'eau et le motif est de plus en plus ramifié.

Dans cette configuration, le régime D n'a jamais été observé, malgré la variation de la mobilité de  $M = 5$  à  $M = 3500$ , soit une variation de  $M$  sur trois ordres de grandeurs.

### 3.3.2 Impact sur les observables macroscopiques

Il est possible d'observer les régimes A, B et C en faisant varier un autre paramètre de contrôle que le nombre capillaire, en l'occurrence la mobilité. Ces différents régimes ont un impact sur les observables macroscopiques. Les variations avec la mobilité  $M$  de ces observables sont différentes de celles obtenues en faisant varier le nombre capillaire  $Ca$ . Cependant, la distribution des épaisseurs d'eau permet toujours de distinguer de manière objective les différents régimes d'imbibition.

#### Distribution des épaisseurs d'eau

Ces différents régimes sont distinguables de manière quantitative en utilisant les critères définis dans la section 3.2. La distribution des épaisseurs d'eau pour

le régime A est une distribution bimodale avec un maximum situé à  $h = H$  et un second pic à  $h = 0$  (fig. 3.11). L'amplitude de ces pics nous renseigne sur la transition entre le régime A et B. Lorsque l'amplitude du pic à  $h = 0$  dépasse celle de celui à  $h = H$ , le régime B est atteint. La disparition du pic à  $h = H$  se produit à la transition avec le régime C. Tout comme pour la série d'expériences précédentes, la distribution des épaisseurs d'eau pour le régime C présente un plateau entre  $h = 10 \mu\text{m}$  et  $h = 40 \mu\text{m}$ , ce qui nous empêche de définir une épaisseur caractéristique des films d'eau.

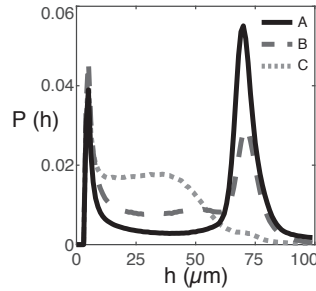


FIGURE 3.11 – Distribution de l'épaisseur d'eau pour trois expériences à différents  $M$ . A :  $M = 5$ , B :  $M = 22$ , C :  $M = 100$ .

### Observables globales

L'épaisseur moyenne des films d'eau sur les zones occupées,  $\langle h \rangle$ , est une fonction monotone décroissante de  $M$  (fig. 3.12a). Un plateau à bas  $M$  correspond aux motifs appartenant au régime A. Contrairement aux expériences faites en variant le nombre capillaire, il n'y a pas de minimum ni de croissance à haut  $M$ , ce qui s'explique par le fait que le régime D n'a pas été observé.

La saturation en eau,  $S_w$ , qui quantifie le taux de récupération de l'huile, décroît de manière monotone avec  $M$  (fig. 3.12b). Cela signifie que plus l'huile mobilisée est visqueuse, moins la récupération est efficace. Il n'y a pas de minimum à la transition entre le régime B et le régime C, contrairement au cas où  $Ca$  variait.

La mesure de la fraction de poreux mouillée,  $A_w$ , paraît également décroître avec  $M$ , sans faire apparaître de minimum, bien qu'un point à  $M = 28$  soit très inférieur aux autres points de la même région (fig. 3.12c). L'image correspondant à cette valeur de la mobilité (fig. 3.10) montre qu'un seul doigt s'est développé et a atteint l'extrémité du dispositif, ce qui explique cette valeur basse de  $A_w$ .

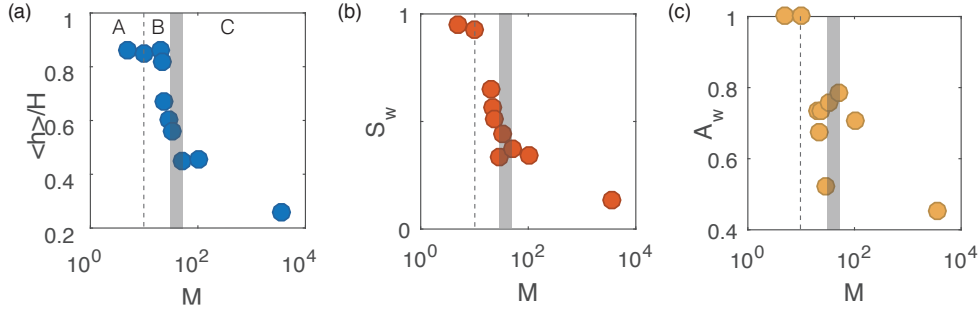


FIGURE 3.12 – (a) Variation de l'épaisseur moyenne  $\langle h \rangle / H$  avec la mobilité  $M$ . Il n'y a pas de croissance à haut  $M$ . (b) Variation de la saturation en eau  $S_w$  avec  $M$ . (c) Variation de la fraction de poreux mouillée  $A_w$  avec  $M$ .

### 3.3.3 Cas des mélanges d'huiles silicones

Dans certaines expériences complémentaires, dont les résultats n'ont pas été présentés ci-dessus, les huiles silicones utilisées avaient été obtenues en mélangeant deux huiles silicones de viscosités différentes selon les proportions définies par le constructeur [52]. Les huiles utilisées pour fabriquer les mélanges étaient les huiles bluesil respectivement 47V50 et 47V1000 ( $M = 50$  et  $M = 1000$ ). Pour l'huile 47V50, à  $Ca = 2.2 \times 10^{-4}$ , la morphologie est de type régime A. Avec l'huile de mobilité  $M = 560$ , et à ce nombre capillaire, les morphologies sont de type régime C.

La mesure de la viscosité à l'aide d'un rhéomètre, donne pour les différents mélanges :  $M = 68, 100, 200$  et  $300$  à  $25^\circ$ . Pour ces huiles, il est possible de distinguer localement des morphologies de type régime A, B et C. Cependant, au cours d'une même réalisation de l'expérience, suivant les régions du milieu poreux, nous observons des morphologies rappelant des régimes différents (fig. 3.13).

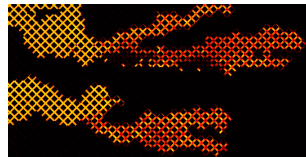


FIGURE 3.13 – Motif d'imbibition pour un mélange d'huile silicone avec 60%wt de  $M = 1000$  et 40%wt  $M = 50$ .  $Ca = 2.2 \times 10^{-4}$ . Localement, il est possible de distinguer des régions de morphologies type régime A, B et C.

Nous attribuons cette différence avec les résultats de la section précédente à

la méthode de préparation de ces huiles silicones qui sont formées par des mélanges entre deux huiles de viscosités très différentes. La viscosité d'une huile silicone est fixée par la distribution de longueurs des chaînes de polymère la constituant. L'huile 47V5 est formée par des polymères de masses moléculaires 900 à 1100 g/mol, tandis que la 47V1000 est formée de polymères de masses moléculaires 38000 à 40000 g/mol.

La méthode pour préparer des mélanges d'huiles silicones donnée par Bluesil [52] insiste sur la nécessité de mélanger des huiles de viscosités proches de la valeur cible. Un critère pour prédire la qualité d'un mélange serait de ne mélanger que des huiles dont les distributions de longueurs de chaînes se recouvrent.

### 3.4 Au-delà des expériences modèles

Lors des processus de récupération du pétrole, l'injection d'un fluide est utilisé pour augmenter artificiellement la pression dans le puits et faire migrer le pétrole vers la surface. Cela engendre un écoulement biphasique dans les roches poreuses où le pétrole est piégé.

La géométrie modèle que nous avons choisi pour cette expérience est simple, elle est régulière, et homogène. Dans la réalité, les milieux poreux dans lesquels le pétrole est piégé ont une géométrie tridimensionnelle, avec des tailles de pores variant sur plusieurs ordres de grandeurs. D'autres expériences modèles ont été menées par Juanes et al. dans un système expérimental proche du notre, mais dans une géométrie radiale avec un milieu poreux désordonné [42]. Les résultats obtenus dans ces milieux poreux ne présentent pas de transitions aussi marquées, mais plutôt des crossovers entre les différents régimes. On ne s'attend donc pas à observer dans un milieu poreux réel les mêmes régimes bien différenciés que dans les expériences modèles. Cependant, à l'échelle du pore, les processus physiques d'invasion sont les mêmes.

De plus, dans les expériences en imbibition forcée, le débit d'injection est constant, et ne varie pas au cours de l'expérience. La vitesse du front d'invasion varie avec le débit sur trois ordres de grandeurs, de  $V = 2.5 \times 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$  et  $V = 4.2 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$  pour  $Ca$  variant de  $5.5 \times 10^{-6}$  à  $1.1 \times 10^{-2}$ . Dans un puits de pétrole, la vitesse d'injection dépend de la distance au point d'injection, avec des vitesses d'écoulement variant sur plusieurs ordres de grandeur, allant de  $10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$  à  $10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$  sur des distances d'une dizaine de mètres. Nos expériences balayent donc toute la gamme de vitesses d'écoulement rencontrée dans la pratique lors de la récupération assistée du pétrole.

Cependant les liquides utilisés ici, en particulier pour la phase non mouillante sont des liquides modèles. Les huiles silicones sont des liquides newtoniens, très

bien caractérisés, et dont la viscosité peut être variée continuellement. L'huile silicone est formée de polymères dont la formulation et la distribution de tailles de chaînes sont connues. Le pétrole brut piégé dans les roches a une composition complexe et dépendant du gisement, puisqu'il est le résultat de la décomposition de matières organiques. Il est constitué d'hydrocarbures, avec des longueurs de chaînes et des structures différentes. Sans changer la chimie de la phase non mouillante, le seul fait d'augmenter la polydispersité de l'huile silicone en mélangeant des huiles de masses moléculaires très différentes modifie le comportement de l'interface, et rend l'analyse et la compréhension des expériences modèles plus complexes.

### 3.5 Conclusion

En utilisant un milieu poreux modèle dont la géométrie est contrôlée, nous avons pu mettre en évidence quatre régimes d'imbibition distincts en variant le nombre capillaire,  $Ca$ . Il est apparu que la distribution des épaisseurs d'eau fournit des critères objectifs pour distinguer ces différents motifs. Les variations abruptes des observables macroscopiques traduisent le fait que ces différents régimes proviennent de processus physiques distincts à l'échelle du pore.

Cette classification est compatible avec les résultats présentés par Zhao et al [42], où les transitions sont brouillées par la géométrie radiale du dispositif expérimental et la répartition désordonnée d'obstacles de rayons variables, qui induit des variations importantes dans le débit local du fluide injecté.

Ces différentes transitions entre les régimes A, B et C sont retrouvés lorsque le nombre capillaire,  $Ca$  est maintenu constant et le rapport de viscosité  $M$  varie. Elles ont les mêmes signatures sur la distribution des épaisseurs d'eau que celles observées en variant  $Ca$ . Les expériences réalisées au cours de cette thèse permettent de construire deux lignes, une horizontale et une verticale d'un diagramme de phase dans le plan  $(M, Ca)$ . Il serait intéressant d'étudier comment varient les nombres capillaires critiques des différentes transitions en fonction du rapport de viscosité.

La grande diversité des morphologies d'invasion observée à la percolation est le résultat direct de la dynamique de l'interface entre la phase aqueuse et l'huile silicone. La percolation permettant de définir une échelle de temps comparable quelque soit le nombre capillaire, l'étude de la morphologie a permis la classification en quatre régimes d'imbibition, résultant de processus d'invasion différents. Dans ce chapitre, nous nous intéressons à la dynamique de l'interface, tant à l'échelle macroscopique, avec l'étude de la vitesse de front, qu'à l'échelle des pores, ce qui permet de comprendre la nature des transitions entre ces différents régimes.

## 4.1 Vitesse de front

Il est difficile d'obtenir une vitesse caractéristique de la dynamique d'imbibition à l'échelle macroscopique, car localement, la vitesse de l'interface mesurée à l'échelle des pores varie sur plusieurs ordres de grandeurs. Une vitesse caractéristique peut cependant être défini à partir du déplacement du front.

### 4.1.1 Définition de la vitesse de front

Pour définir la vitesse du front d'imbibition, on moyenne l'épaisseur des films d'eau selon la direction transverse à la propagation,  $y$ , à chaque pas de temps. Un diagramme spatio-temporel de l'épaisseur moyennée selon  $y$  est présenté sur la figure 4.1. Chaque ligne de ce diagramme spatio-temporel correspond donc au profil d'épaisseur longitudinal moyenné selon la direction transverse  $y$ . A partir de ce diagramme, il est facile de détecter la position du front d'imbibition projeté sur

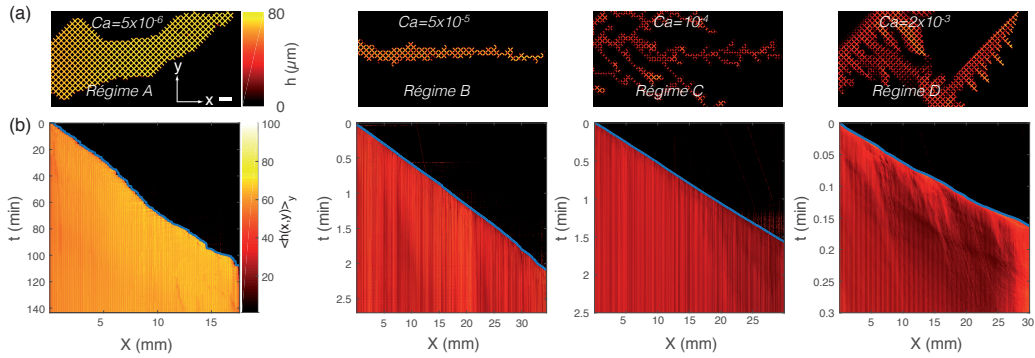


FIGURE 4.1 – (a) Motif d'imbibition à la percolation pour les différents régimes. Échelle : 1 mm. (b) Diagramme spatio-temporel du profil d'épaisseur moyenné selon la direction transverse  $y$  correspondant aux motifs présentés en (a). On trace en bleu la position  $X$  du front en fonction du temps. Quelque soit le régime, le front d'imbibition se déplace à vitesse constante.

l'axe  $x$ . La position  $X$  du front d'imbibition varie linéairement avec le temps dans la fenêtre d'observation. Cela signifie que dans des zones peu affectés par le point d'injection et la sortie du dispositif, la vitesse du front est stationnaire. Il est alors possible d'extraire une vitesse caractéristique bien définie, la vitesse du front, en calculant la pente de la position  $X$  en fonction du temps  $t$ .

#### 4.1.2 Influence du nombre capillaire sur la vitesse du front

Le nombre capillaire  $Ca = \eta Q / \gamma S$  est proportionnel au débit d'injection. Avec ce paramètre, on fait varier la vitesse d'injection de la phase aqueuse, ce qui impacte la vitesse du front d'imbibition. La vitesse du front extraite des diagrammes spatio-temporels est monotone croissante avec le nombre capillaire  $Ca$ , et présente une rupture de pente à la transition entre les régimes B et C (fig 4.2).

A bas  $Ca$ , la vitesse de front est une fonction puissance de  $Ca$  avec une pente de 1.5 en échelle logarithmique. Dans un écoulement de type bouchon où toute la largeur et la hauteur du milieu poreux serait envahie par la phase aqueuse, la vitesse du front serait proportionnelle à la vitesse d'injection  $Q/S$  et donc à  $Ca$ .

Dans les régimes A et B, la largeur du motif et l'épaisseur moyenne des films d'eau diminuent avec le nombre capillaire. La section réelle de l'écoulement de la phase aqueuse décroît donc avec le nombre capillaire. A vitesse d'injection égale, la vitesse du front sera donc plus grande que dans un écoulement de type bouchon, ce qui se traduit par une pente de 1.5 supérieur à 1 en échelle logarithmique.

A haut  $Ca$ , dans les régimes C et D, la pente en échelle logarithmique est de

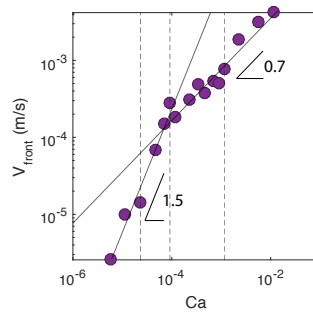


FIGURE 4.2 – Vitesse du front d’imbibition  $V_{\text{front}}$  en fonction du nombre capillaire  $Ca$ . Il y a une rupture de pente à la transition entre les régimes B et C.

0.7, soit inférieure à 1. Dans le régime C, l’épaisseur moyenne est constante tandis que la largeur du motif est croissante avec le nombre capillaire (fig. 3.8). Cela entraîne que la section réelle de l’écoulement croît avec la vitesse d’injection, la croissance de la vitesse du front sera donc inférieure à celle correspondant au cas d’un écoulement de type bouchon.

## 4.2 Dynamique à l’échelle du pore

La morphologie et la dynamique du front d’imbibition dépendent du mécanisme d’invasion à l’échelle du pore. Il est possible d’identifier les mécanismes à l’origine de ces quatre différents régimes en étudiant cette dynamique locale.

### 4.2.1 Régime A

A bas  $Ca$ , la séquence d’image (fig. 4.3a) montre une dynamique typique de l’imbibition capillaire à l’échelle du pore [20, 27]. Lorsque deux canaux adjacents sont remplis, les ménisques se joignent aux noeuds du réseau, et le nouveau ménisque ainsi créé gonfle jusqu’à toucher le plot suivant. Le ménisque se sépare alors et la phase aqueuse envahit les deux canaux suivants. De cette manière, la phase aqueuse remplit le milieu poreux ligne par ligne, reflétant la géométrie du réseaux sous-jacent [47] et le déplacement de l’huile est complet : la phase aqueuse occupe toute la section des canaux.

La figure 4.3b présente le spatio-temporel de la propagation du ménisque sur une ligne située au centre des canaux, présentée sur la figure 4.3a. L’interface ne se déplace pas à vitesse constante. Dans les canaux, elle se déplace à vitesse élevée ( $\sim 3 \times 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ ) dans les canaux, puis fusionne avec le ménisque adjacent, et



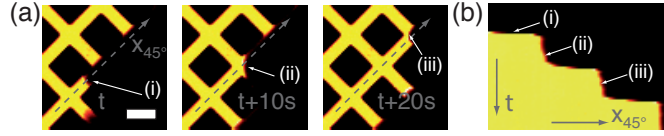


FIGURE 4.3 – Dynamique local du régime A. (a) Séquence d’images illustrant le mécanisme de propagation de l’interface.  $Ca = 5 \times 10^{-6}$ . Barre d’échelle :  $200 \mu\text{m}$ . (b) Spatio-temporel de la propagation de l’interface selon la flèche en pointillé dans (a). On peut définir localement deux vitesses de propagation, dans les canaux, et dans les pores.

gonfle avec une vitesse faible dans le pore ( $\sim 8 \times 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ ) jusqu’à toucher l’obstacle suivant, pour ensuite envahir à nouveau les canaux à vitesse élevée.

#### 4.2.2 Régimes B et C

Les séquences d’images correspondant aux régimes B et C (figs. 4.4a et b) montrent un changement marqué avec la dynamique du régime A. Localement, les dynamiques d’invasion des régimes B et C sont très similaires. L’invasion ne suit plus la géométrie du réseau, et l’avancée du front ne peut plus être décrite comme la propagation d’un ménisque stable. Dans ces régimes, des films d’eau se déplacent le long des obstacles, en laissant une quantité d’huile significative à l’intérieur des canaux. Lorsque la ligne de contact atteint le coin formé par un obstacle carré et les parois du canal, la phase aqueuse entoure l’obstacle. Le film d’eau gonfle ensuite jusqu’à toucher l’obstacle adjacent, et l’interface se propage ainsi de manière discrète à travers le réseau d’obstacles. Ce comportement est cohérent avec les observations faites par Juanes et al. dans des géométries désordonnées [42].

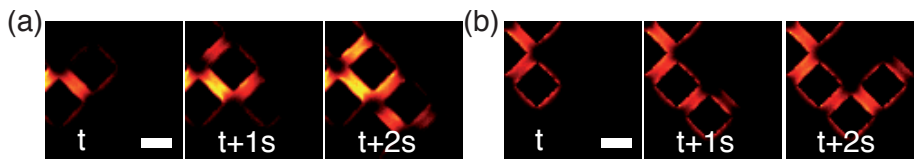


FIGURE 4.4 – Dynamique local des régimes B et C. (a) Séquences d’images illustrant le mécanisme de propagation de l’interface dans le régime B. Echelle :  $200 \mu\text{m}$ . (b) Séquence d’images illustrant le mécanisme de propagation de l’interface dans le régime C.

Pour mieux comprendre la répartition des films d’eau à l’intérieur des canaux, on utilise l’imagerie confocale qui permet de réaliser une image tridimensionnelle

de l'interface et d'accéder à la répartition spatiale des films d'eau. La figure 4.5 présente une vue en coupe de l'interface entre l'eau et l'huile dans un canal, peu de temps après le passage du front d'imbibition. La phase aqueuse recouvre toute la surface du sticker en NOA, laissant un demi-cylindre d'huile silicone piégé le long de la paroi en quartz.

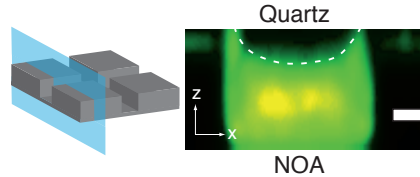


FIGURE 4.5 – Coupe confocal d'une section transverse du canal dans le régime B après le passage de l'interface. On note que le film d'eau est localisé à la surface du dispositif, laissant un demi-cylindre d'huile silicone le long de la paroi de Quartz. Echelle :  $20\ \mu\text{m}$ .

### 4.2.3 Régime D

A haut  $Ca$ , le déplacement de l'huile est toujours incomplet, cependant la dynamique locale de l'interface est très différente des régimes précédents. La série d'images présentée en figure 4.6a montre que l'angle de contact apparent entre la phase aqueuse, les parois du dispositif microfluidique et l'huile silicone est inversé : le milieu poreux paraît hydrophobe. Les doigts formés par la phase aqueuse se propagent au centre des canaux, laissant un film d'huile le long des parois. Ces doigts se déplacent en suivant les axes du réseaux, à  $45^\circ$ , et sont réfléchis par les parois du dispositif.

La dynamique de ces doigts qui se déplacent le long des parois lubrifiées par l'huile silicone est analogue à une dynamique de croissance dendritiques typiques de la dynamique de drainage en accord avec la grande similarité des motifs macroscopiques avec les motifs observés dans des expériences de drainage (fig. 4.6b) [50, 23, 51].

La vitesse de propagation de ces doigts étant très élevée, de l'ordre du mm/s, l'observation de la dynamique locale à l'aide d'un microscope confocal est impossible. Ce type d'inversion de l'angle de contact apparent en imbibition a été reporté pour des liquides colloïdaux à très faibles tensions de surfaces ( $\gamma = 30\ \text{nN}\cdot\text{m}^{-1}$ ) par Setu et al [24] dans des géométries de Hele Shaw (fig. 4.6c). Dans ce cas, il est possible d'atteindre des valeurs de nombre capillaire très élevées allant jusqu'à  $Ca_{xz} = 1.7$ , à faible vitesse, ce qui a permis la visualisation de l'interface en trois dimensions à l'aide d'un microscope confocal (fig. 4.6c). Cette image prouve qu'un

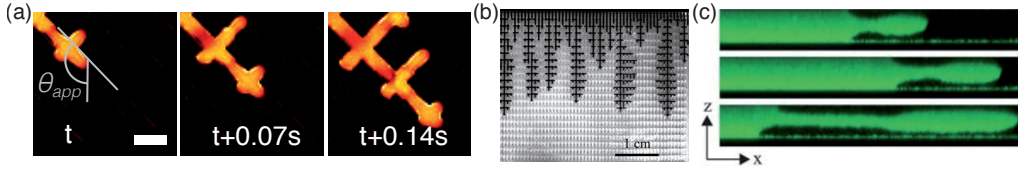


FIGURE 4.6 – Dynamique local du régime D. (a) Séquence d’images illustrant le mécanisme de propagation de l’interface dans le régime D. Echelle :  $200\ \mu\text{m}$ . (b) Expérience de drainage pour deux liquides non miscibles tirée de [23] présentant la digitations visqueuses dans un réseau régulier. (c) Profil dans le plan  $xz$  de l’imbibition pour des solutions colloïdales en cellule de Hele-Shaw tiré de [24] pour trois nombres capillaire  $Ca_{xz} = 1.5, 1.6, 1.7$  avec  $Ca_{xz} = (\eta_1 + \eta_2)U/2\gamma$  et  $\eta_1, \eta_2$  les viscosité des deux solutions, et  $U$  la vitesse du front.

doigt de la phase mouillante se forme dans le plan  $xz$ , et se propage au milieu des canaux, laissant un film de liquide non mouillant le long des parois.

### 4.3 Transition entre les différents régimes

Pour comprendre d’où proviennent ces différences de dynamique d’invasion à l’échelle du pore, on s’intéresse à présent à la nature des transitions entre les différents régimes d’imbibition.

#### 4.3.1 Transition du régime A à B

A la transition entre le régime A et le régime B, la phase aqueuse ne remplit plus toute la hauteur du canal. La dynamique caractéristique de l’imbibition capillaire du régime A laisse place à la propagation de films fins d’eau le long des parois de NOA du dispositif. Pour mieux comprendre la dynamique de la propagation de ces films d’eau, on utilise un microscope confocal pour imager le déplacement de l’interface sur une coupe proche de la surface inférieure du dispositif (figs. 4.7a et b).

La progression des films d’eau dans ce plan de coupe est très similaire à la dynamique d’imbibition capillaire caractéristiques du régime A, où les ménisques se joignent aux noeuds du réseaux et gonflent jusqu’à toucher l’obstacle suivant, avant d’envahir les canaux adjacents (fig. 4.3). Cette séquence d’images confocales montre que même si la ligne de contact est accélérée quand elle touche un des coins formé par un obstacle avec la surface du dispositif, elle se propage également le long des surfaces de NOA, loin des coins. La dépression due à la courbure négative de l’interface dans les coins n’est donc pas nécessaire pour générer l’écoulement des

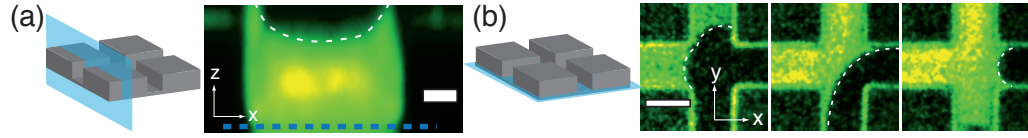


FIGURE 4.7 – (a) Coupe confocale d’une section transverse du canal dans le régime B après le passage de l’interface. La surface de quartz est recouverte d’huile silicone, il est donc inutile d’imager la propagation de l’interface le long de cette surface. Echelle :  $20\ \mu\text{m}$ . (b) Séquence d’images confocales illustrant la propagation de la phase aqueuse le long de la surface de NOA dans le régime B. La coupe est réalisée environ  $5\ \mu\text{m}$  au dessus de la surface, schématisé par la ligne pointillée grise sur (a). Echelle :  $100\ \mu\text{m}$ .

films d’eau [53, 54, 55]. Une explication pourrait être que la NOA traitée aux UV profonds possède une rugosité de surface importante qui agirait comme moteur de l’imbibition [28]. Cette hypothèse est éliminée par les mesures de microscopie à force atomique (AFM) qui donne une rugosité de surface inférieure à  $10\ \text{nm}$  pour une résine traitée dans les mêmes conditions que celles de fabrications des dispositifs microfluidiques. En conséquence, la seule explication permettant de justifier la formation de films fins dans les régimes B et C est une transition d’entraînement.

A la transition entre les régimes A et B, la ligne de contact se propageant le long de la résine se destabilise et entraine un film d’eau à une vitesse supérieure à la vitesse moyenne d’avancée du front, laissant de l’huile immobile à l’intérieur des canaux et le long de la paroi en quartz. La localisation de cet entrainement sur les surfaces de NOA et non pas de quartz provient probablement de la légère différence entre les angles de contacts d’avancée de l’eau dans l’huile silicone mesurés sur des surfaces de quartz ou de NOA :  $\theta_{\text{quartz}} = 30^\circ$  et  $\theta_{\text{NOA}} = 20^\circ$ .

Les études de l’avancée d’un ménisque sur un solide ont prouvé l’existence de ce type de transition d’entraînement de type Landau-Levitch, avec un nombre capillaire critique à partir duquel le ménisque se destabilise, et un des fluides est entraîné le long de la paroi solide [7, 56, 40, 37]. La transition de mouillage à l’origine de l’entraînement des films d’eau empêche alors la propagation d’un ménisque stable. Cette transition de mouillage a été étudiée par Levaché et al. [57] qui ont résolu numériquement un modèle basé sur l’équation de Laplace permettant de calculer la forme stationnaire des ménisques et de prédire le nombre capillaire critique à partir duquel il n’existe plus de solution stationnaire. Dans le cas de l’étude de la transition entre les régimes A et B dans un milieu poreux, la complexité de la géométrie du canal à l’échelle du pore, et du motif d’imbibition en lui-même rendent difficile toutes tentatives de prédiction d’un capillaire critique.

### 4.3.2 Transition du régime B à C

Les dynamiques locales de l'interface des régimes B et C sont similaires. Cependant, une instabilité d'interface sépare ces deux régimes caractérisé par des distributions de hauteurs d'eau différentes (fig. 3.9). Dans les deux cas, le déplacement incomplet du liquide non mouillant entraîne la formation d'une interface hémicylindrique. Dans le régime B, en amont du front d'imbibition, les films d'eau gonflent. L'interface hémicylindrique est instable, et le demi-cylindre d'huile se casse au milieu des canaux selon un mécanisme dit de *Snap-Off* [29, 27](fig. 4.8a), formant des gouttes d'huile aux noeuds du réseau par l'instabilité de Plateau-Rayleigh (fig. 4.8b).

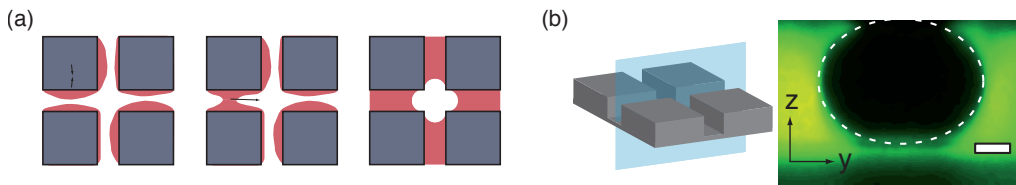


FIGURE 4.8 – (a) Représentation schématique du processus de *snap-off* dans le régime B. Les films d'eau entourant les obstacles gonflent, et le demi-cylindre d'huile se fracture, entraînant la formation de gouttes d'huile aux noeuds du réseaux. (b) Image confocale d'une goutte d'huile piégée au noeud du réseau (régime B). Echelle :  $20 \mu\text{m}$ .

En augmentant le débit, dans le régime C, l'instabilité de Plateau-Rayleigh est supprimé, et l'interface est stable sur des temps grand devant le temps de percolation. En principe, cette stabilisation du demi-cylindre d'huile peut-être due soit à l'accrochage de la ligne de contact [58, 59] soit à l'étirement du cylindre d'huile qui altère le développement des instabilités capillaires [60, 61]. Pour identifier l'origine de cette stabilisation de l'interface, nous effectuons une expérience dans le régime C ( $Ca = 2.2 \times 10^{-4}$ ) au cours de laquelle l'écoulement de la phase aqueuse est abruptement interrompu après le passage du front d'imbibition (fig. 4.9). Lorsque le débit d'injection devient nul, l'interface se destabilise, et des gouttes d'huile apparaissent, formant localement un motif typique du régime B. Ces gouttes d'huile sont piégées aux noeuds du réseaux, et entourées de canaux dont toute la hauteur est occupée par l'eau. La destabilisation des interfaces hémicylindriques provoquée par l'arrêt de l'injection prouve que l'interface est bien stabilisée dynamiquement par l'écoulement de la phase aqueuse.

La transition entre les régimes B et C correspond donc à la suppression de l'instabilité de Plateau-Rayleigh due à la stabilisation dynamique de l'interface

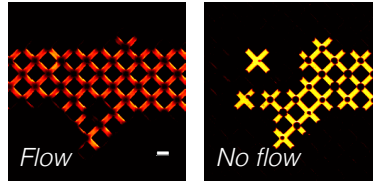


FIGURE 4.9 – Déstabilisation du demi-cylindre d’huile : à gauche, image après le passage du front prise en régime C, les films fins sont stables ( $Ca = 2.2 \times 10^{-4}$ ). A droite : l’arrêt de l’injection provoque la destabilisation de l’interface, formant des gouttes aux intersections des canaux. Echelle :  $200 \mu\text{m}$ .

par l’écoulement dans la phase aqueuse.

### 4.3.3 Transition du régime C à D

Dans le régime D, à haut  $Ca$ , des doigts se propagent au milieu des canaux, en laissant un film d’huile immobile le long des parois du dispositif (fig. 4.11a). Deux hypothèses différentes permettent d’expliquer cette transition.

Un premier scénario expliquant ce phénomène serait l’existence d’une transition de mouillage où contrairement aux régimes B et C la destabilisation de l’interface ne se produit plus le long des surfaces de NOA, mais au centre des canaux, où un doigt se développe. L’angle de contact apparent serait alors caractéristique d’un mouillage nul. Ce type de transition de mouillage est analogue à celle décrite pour des solutions colloïdales dans des géométries Hele-Shaw dans [24] ainsi qu’à la transition d’entraînement de type Landau-Levitch dans le cas d’une surface hydrophobe [37].

Un second scénario pour expliquer la formation de ces doigts au centre des canaux serait qu’ils sont la conséquence de la différence de mouillage entre les canaux d’injections et le milieu poreux (fig. 4.10). En effet, les canaux d’injection étant protégé du traitement de surface lors de la préparation des dispositifs, sont hydrophobes (Section 2.3.2). Un doigt se formerait alors au milieu du canal d’injection, sans toucher les parois, et continuerait sa propagation dans le milieu poreux sans que la phase aqueuse n’entre en contact avec les parois solides du dispositif, lubrifiées par l’huile.

Pour trancher entre ces deux scénarios, il faut vérifier s’il est possible d’atteindre le régime D à partir d’un motif d’imbibition où l’eau est en contact avec les parois hydrophiles du milieu poreux. Pour cela, on réalise une expérience dans le régime C ( $Ca = 2.2 \times 10^{-4}$ ) auquel on impose un brutal changement de débit vers  $Ca = 2.2 \times 10^{-3}$ , qui appartient au régime D. Au début de l’expérience, avant le changement de débit, des films d’eau se propagent le long des parois et forment

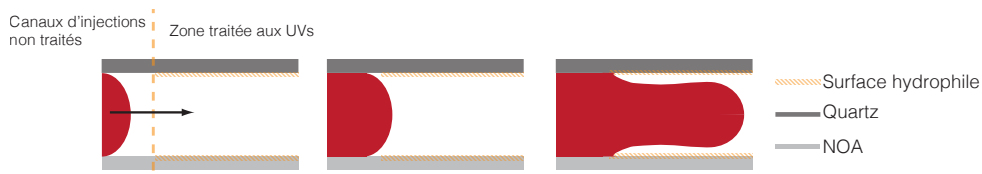


FIGURE 4.10 – Représentation schématique du scénario où l'inversion de courbure provient du contraste de propriétés de mouillages entre les canaux d'injection et le milieu poreux hydrophile. Le doigt se propageant au centre des canaux ne voit pas les parois.

les motifs caractéristiques du régime C. Après le brutal changement de débit, la courbure de l'interface s'inverse, et localement on observe des motifs de drainage semblables à ceux obtenus en régime D (fig. 4.11b).

Le fait qu'on retrouve une morphologie de type régime D alors que des films s'étaient formés le long des parois prouve que la transition du régime C au régime D est bien une transition de mouillage conduisant à l'inversion de la courbure du ménisque, et ne dépend pas des propriétés de mouillage des canaux d'injection. On observe cependant que la morphologie macroscopique est différente, avec un doigt symétrique qui se déplace rectilignement, et des ramifications qui se développent à  $45^\circ$ . Dans le régime D, les doigts se propageaient à  $45^\circ$  et se réfléchissaient sur les paroi. Ces différences dans la morphologie macroscopique liées aux changements de conditions initiales prouvent l'importance de contrôler précisément les conditions initiales de cette expérience pour en assurer la reproductibilité.

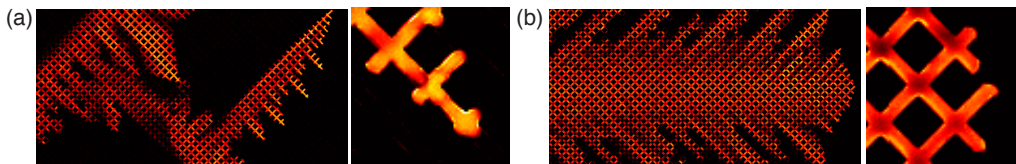


FIGURE 4.11 – (a) Motif d'imbibition à la percolation (Régime D :  $Ca = 2.2 \times 10^{-3}$ ). Le motif rappelle un motif de drainage. Le zoom (image de gauche) permet d'observer que l'angle de contact dynamique est nul. (b) Motif d'imbibition à la percolation après une transition du régime C à D au cours de l'expérience. Conditions initiales :  $Ca = 2.2 \times 10^{-4}$  puis brusque changement de débit vers  $Ca = 2.2 \times 10^{-3}$ . On retrouve l'inversion de courbure observé en (a).

#### 4.3.4 Transition vers la fragmentation

Dans le régime D, des doigts d'eau se forment au centre des canaux, et se propagent en suivant les axes du réseau d'obstacles. En augmentant le nombre capillaire, des gouttes d'eau dans l'huile ainsi que des gouttes d'huile dans l'eau se forment. Si les processus de transports des emulsions ainsi formées dans le milieu poreux n'ont pas été étudiés au cours de la thèse, on a néanmoins observé que les gouttes d'eau et d'huile sont produites par des mécanismes très différents.

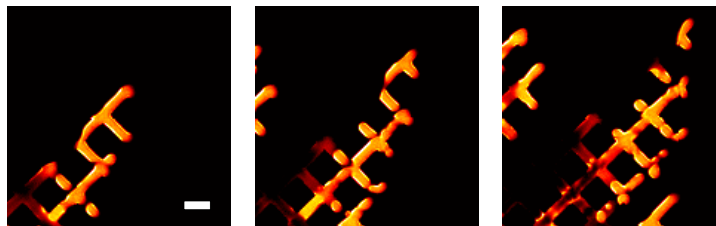


FIGURE 4.12 – Séquence d'image montrant la fragmentation du motif de régime D à l'origine de la formation de gouttes d'eau dans l'huile. Les images sont réalisées à 0.1 s d'écart ( $Ca = 1.1 \times 10^{-2}$ ). Echelle : 200  $\mu\text{m}$ .

Le filament liquide qui se propage au centre des canaux en régime D se destabilise à grande vitesse, ce qui conduit à la formation de gouttes d'eau, comme illustré par la séquence d'image présentée figure 4.12. Cette destabilisation est le résultat d'une instabilité d'interface analogue à celle de Plateau-Rayleigh. Ces phénomènes se produisant à grandes vitesses, la caméra utilisée ne permet pas l'acquisition à une vitesse suffisante pour étudier de manière quantitative ces phénomènes de fragmentations.

La formation des gouttes d'huile dans l'eau se produit par différents mécanismes. On peut observer la coalescence de films d'eau, dans les zones déjà mouillées par l'eau, ce qui piègent des gouttes d'huile ensuite mobilisées par l'écoulement de la phase aqueuse. Dans d'autres zones, un doigt secondaire se développe en amont du front et pousse l'huile dans une région déjà mouillée par l'eau. Des mécanismes de *snap-off* se produisent alors, créant des gouttes d'huile, qui viennent ensuite se fragmenter, ou coalescer.

## 4.4 Conclusion

L'étude de la dynamique locale permet d'expliquer la morphologie macroscopique des motifs d'imbibition. A bas  $Ca$ , le régime A présente une dynamique typique de l'imbibition capillaire. Une transition de mouillage intervient en augmentant le nombre capillaire, avec la formation de films d'eau le long de la paroi



de NOA. La dynamique du front d'imbibition dans les régimes B et C est alors identique, et les deux régimes se distinguent par l'évolution du film d'eau sur des temps comparables au temps de percolation. Lorsque  $Ca$  augmente, ils sont stabilisés par l'écoulement, ce qui supprime l'instabilité de Rayleigh-Plateau à l'origine de la formation de gouttes d'huile.

Enfin, à haut capillaire, on observe une inversion de courbure de l'interface, résultat d'une seconde transition de mouillage, qui donne naissance au régime D. La dynamique locale du régime D est similaire à une dynamique de drainage en raison du film d'huile statique le long des parois du dispositif. Si on continue à augmenter le nombre capillaire, les doigts formés en régime D se destabilisent et se fragmentent, formant des gouttes qui sont ensuite transportées dans le milieu poreux.

---

## Mûrissement des motifs d'imbibition

---

Comme dans la plupart des travaux précédents [62, 20, 42], on a jusqu'à présent uniquement étudié l'imbibition jusqu'au temps de percolation, où la phase aqueuse atteint la sortie du dispositif. Cette limite n'est pas importante dans les cas où le rapport de viscosité est grand et le déplacement de l'huile est complet, c'est-à-dire dans le cas du drainage, ou dans le régime A. En effet, le motif est alors également le chemin de moindre résistance hydraulique. La phase aqueuse, injecté à débit constant, s'y écoule, ce qui entraîne un gel de la dynamique du motif [21]. Cependant, lorsque la phase aqueuse se déplace sous forme de film fin, les motifs d'imbibition mûrissent sur des temps longs devant le temps de percolation.

### 5.1 Morphologie à l'état stationnaire

Le mûrissement des films d'eau se traduit par une évolution de la morphologie des motifs d'imbibition. Dans cette partie, nous comparons les motifs d'imbibition à la percolation aux motifs à l'état stationnaire pour les différents régimes définis précédemment, à  $M = 560$ .

#### 5.1.1 Régimes A et B

Dans le régime A, le déplacement de l'huile par la phase aqueuse est complet, tandis que dans le régime B, si la phase aqueuse occupe toute la section des canaux séparant les obstacles, des gouttes d'huile sont piégées aux noeuds du réseau. On observe sur les figures 5.1a et 5.1b qu'il y a peu de différences entre les morphologies à la percolation, et celles aux temps longs pour ces deux régimes. En effet,

la phase aqueuse s'écoule par le chemin déjà envahi qui est aussi celui de moindre résistance hydraulique, l'huile silicone étant plus visqueuse ( $M > 1$ ). Cependant, quelques canaux supplémentaires sont envahis, à cause des fluctuations de l'interface et des films très fins se développent autour des motifs d'imbibition (fig. 5.1b).

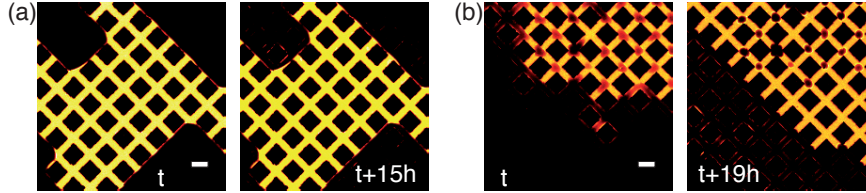


FIGURE 5.1 – Comparaison de la morphologie à la percolation et à l'état stationnaire. (a) Régime A,  $Ca = 1 \times 10^{-5}$ . Un film très fin se développe autour du motif d'imbibition. Echelle :  $200 \mu\text{m}$ . (b) Régime B,  $Ca = 2 \times 10^{-5}$ . Les gouttes d'huile piégées aux noeuds du réseaux deviennent sphériques, et un film très fin d'eau s'est propagé. Echelle :  $200 \mu\text{m}$ .

Ces films très fins sont observables autour des obstacles, là où ils sont les plus épais. Malheureusement, les obstacles fabriqués en résine ont un indice de réfraction légèrement différent de celui des liquides utilisés, ce qui affecte les mesures d'épaisseur de films d'eau proche des obstacles (section 2.4.2). Il est donc difficile d'étudier quantitativement la formation de ces films d'eau.

En plus de la formation de ces films très fin, on observe dans le cas du régime B, un changement de forme des gouttes d'huile piégées aux noeuds du réseau. Alors que les gouttes étaient étalées sur les parois en quartz du dispositif, leur forme change, et les gouttes à l'état stationnaire sont des sphères situées aux centre des pores (fig. 5.1b et fig. 5.2).

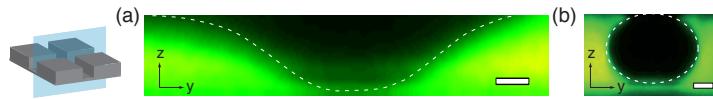


FIGURE 5.2 – Evolution de la forme des gouttes d'huile. (a) Image confocale d'une goutte d'huile piégée au noeud du réseau juste après le passage du front d'imbibition. Echelle :  $30 \mu\text{m}$ (b) Image confocale d'une goutte d'huile piégée au noeud du réseau longtemps après le passage du front. Echelle :  $20 \mu\text{m}$ . Ces deux images ont été prises au cours de la même expérience, mais à des endroits différents du dispositif.

### 5.1.2 Régime C et D

Il a été observé dans la section 4.3.2 que les films d'eau qui se forment le long des parois dans le régime C ne sont pas stables lorsque l'injection est interrompue. L'interface se destabilise alors pour former les gouttes d'huile caractéristiques du régime B. Il est donc intéressant d'étudier comment ces films d'eau vieillissent lorsqu'on continue d'injecter la phase aqueuse pendant des temps longs devant le temps de percolation.

Les morphologies obtenues à l'état stationnaire sont formées de zones où la phase aqueuse remplit toute la section des canaux, entourées de zones où de très fin films d'eau subsistent (fig. 5.3). Il est important de remarquer que ces motifs sont cependant très différents de ceux formés par la destabilisation du demi-cylindre d'huile due à l'instabilité de Rayleigh-Plateau, puisqu'il n'y a pas de gouttes d'huile piégées aux noeuds du réseau. Après la percolation, les films d'eau continuent à s'étendre latéralement, jusqu'à ce que l'intégralité du milieu poreux soit recouvert d'un film d'eau et des zones où le déplacement de l'huile est complet apparaissent. La comparaison entre les morphologies à la percolation et à l'état stationnaire met en évidence le fait que les films d'eau ne gonflent pas de manière homogène, mais subissent d'importants changements structurels sur des échelles de temps longues (fig. 5.3). En effet, les zones où la phase aqueuse remplit toute l'épaisseur de dispositif ne sont pas nécessairement superposables avec les zones envahies à la percolation. Il est également intéressant de noter qu'il existe toujours un chemin principal qui relie le point d'injection à la sortie du dispositif.

Dans le régime D, en amont du front d'imbibition, le dispositif est rempli de films fins d'eau qui se sont déposés sur les parois en NOA du dispositif, et le vieillissement est alors dicté par les mêmes processus physiques que dans le régime C. Cependant, la fragmentation du motif d'imbibition observée complique l'analyse de ces motifs aux temps longs.

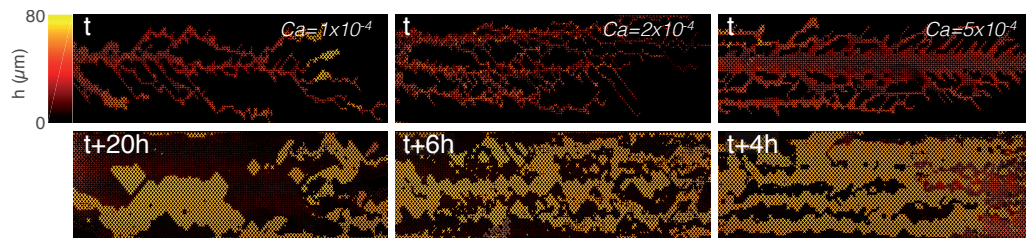


FIGURE 5.3 – Comparaison de la morphologie à la percolation et à l'état stationnaire dans le régime C. Les motifs d'imbibition ne gonflent pas de manière homogène, mais mûrissent.

Ce mûrissement a une origine microscopique claire. Comme représenté schématiquement en figure 5.4, les canaux où les films d'eau sont fins sont associés à une courbure plus faible de l'interface eau-huile, et donc à une pression de Laplace plus faible. Par conséquent, le gradient de pression de Laplace provoque un écoulement de l'huile depuis les canaux où les films d'eau sont épais vers ceux où ils sont plus fins. Le motif devient stationnaire lorsque les canaux sont soit totalement remplis d'eau, soit remplis d'huile et recouverts d'un très fin film d'eau.

Le mûrissement repose sur l'écoulement par capillarité de l'huile, qui est la phase la plus visqueuse. Cela en fait un processus beaucoup plus lent que la propagation des films d'eau avant la percolation. C'est la raison pour laquelle on observe ce mûrissement sur des échelles de temps différentes du temps de percolation.



FIGURE 5.4 – Schéma du mécanisme de mûrissement. L'huile (représentée en noir) s'écoule depuis les régions de forte pression de Laplace. De manière équivalente, par conservation de la masse, les films fins d'eau (en rouge) se vident dans les films épais.

## 5.2 Impact sur les observables macroscopiques

Les changements structuraux de la morphologie des motifs d'imbibition qui ont lieu entre le temps de percolation et l'état stationnaire ont un impact sur les observables utilisées pour caractériser les motifs d'imbibition.

### 5.2.1 Observables globales

La saturation en eau à l'état stationnaire,  $S_w^*$ , correspond à la quantité d'eau mesuré dans le milieu poreux, normalisée par le volume du milieu poreux lorsque le système atteint un état stationnaire. Contrairement à la saturation en eau à la percolation,  $S_w^p$ , cette observable est monotone croissante avec le nombre capillaire (fig. 5.5a). En effet, les valeurs de la saturation dans les régimes A et B ont peu changé par rapport à celles mesurées au temps de percolation, tandis que celles des régimes C et D ont beaucoup augmenté. Cela a pour conséquence de faire disparaître le minimum qui se situait à la transition entre les régimes B et C. La conséquence pratique de la croissance de la saturation à l'état stationnaire,  $S_w^*$ , est que pour augmenter la récupération de l'huile présente initialement dans le milieu

poreux, il faut augmenter la vitesse d'injection.

La fraction mouillée,  $A_w^*$ , devient également monotone croissante avec le nombre capillaire à l'état stationnaire. Il est intéressant de noter qu'à haut  $Ca$ , la fraction mouillée sature à 1, ce qui signifie que tout le milieu poreux est mouillé par la phase aqueuse à l'état stationnaire. Un film d'eau d'épaisseur hétérogène recouvre alors l'intégralité du dispositif.

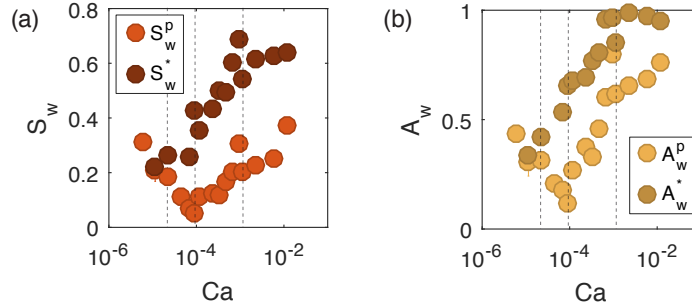


FIGURE 5.5 – Comparaison de la variation des observables globales avec  $Ca$  à la percolation et à l'état stationnaire. (a) Variation de la saturation en eau avec  $Ca$ . L'indice p indique la mesure à la percolation tandis que \* correspond à la valeur asymptotique. Le minimum à la transition entre les régimes A et B disparaît à l'état stationnaire. (b) Variation de la fraction de poreux mouillée avec  $Ca$ . La fraction mouillée sature à 1 à haut  $Ca$ .

### 5.2.2 Distributions des épaisseurs d'eau

La morphologie des motifs des régimes A et B à l'état stationnaire étant très proche de celle à la percolation, la distribution des épaisseurs dans ces deux régimes n'est pas modifiée. Ce sont des distributions bimodales, avec un pic à  $h = H$  et un pic à  $h = 0$  correspondant aux films fins et aux ménisques (fig. 3.9).

En revanche, dans les régimes C et D, on voit apparaître un pic à  $h = H$  qui était absent des distributions mesurée à la percolation (figs. 5.6a et b). Les distributions à l'état stationnaire sont donc toutes bimodales, quelque soit le régime d'imbibition. Seule l'amplitude relative des pics diffèrent selon les régimes.

Pour avoir une idée de la dynamique du processus de mûrissement, on trace la distribution des épaisseurs d'eau à différents instants de l'expérience. Le diagramme spatio-temporel présenté en figure 5.6c montre bien l'apparition du pic à  $h = H$ . Les films d'épaisseurs moyennes qui correspondent au plateau, situé entre

$h = 25 \mu\text{m}$  et  $h = 25 \mu\text{m}$ , sur la distribution à la percolation, disparaissent, tandis qu'on observe l'augmentation tant du pic à  $h = H$  et à  $h = 0$ .

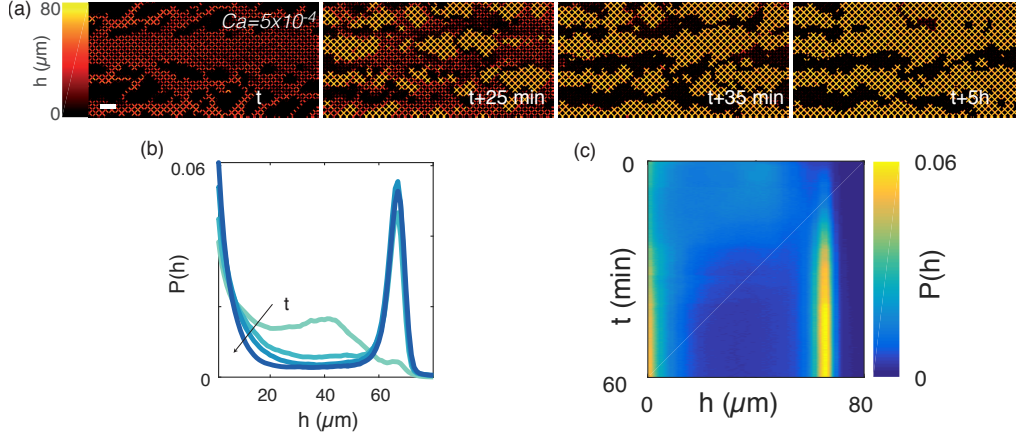


FIGURE 5.6 – Dynamique de mûrissement. (a) Evolution du motif d'imbibition dans le régime C au cours du temps ( $Ca = 5 \times 10^{-4}$ ). La première image correspond à la percolation,  $t \sim 150 \text{ s}$  après le début de l'injection. Echelle : 1 mm. (b) Distribution de l'épaisseur des films d'eau correspondants aux images présentées en (a). (c) Evolution temporelle de la distribution de l'épaisseur des films d'eau pendant la première heure de l'expérience. Un pic apparaît à  $h = H$  tandis que les films d'épaisseurs intermédiaires disparaissent.

### 5.3 Dynamique du mûrissement

La figure 5.6 montre que l'apparition du pic à  $h = H$  est relativement rapide comparé au temps de percolation, cependant, le motif continue à évoluer sur des temps très longs. Il faut donc définir un temps caractéristique permettant de comparer les motifs à l'état stationnaire.

#### 5.3.1 Définition d'une échelle de temps caractéristique

Il faut injecter pendant des temps longs devant le temps de percolation pour que les motifs d'imbibition atteignent de manière asymptotique un état stationnaire. A partir des observables macroscopiques, il est possible de déterminer un volume d'eau injecté caractéristique du processus de mûrissement, équivalent à un temps caractéristique à débit constant. On cherche donc à mesurer un volume caractéristique à partir de la courbe de la saturation en eau en fonction du volume

injecté (fig. 5.7). Le volume d'eau injecté est défini par  $V_{inj} = Qt/V_{Total}$ , avec  $Q$  le débit d'injection qu'on normalise par  $V_{Total}$  le volume total du milieu poreux. La saturation en eau  $S_w$  tend asymptotiquement vers une valeur  $S_w^*$  aux temps longs. A partir de l'évolution de la saturation en eau  $S_w$ , on définit le volume injecté caractéristique,  $V_{inj}^*$ , sans présumer de la nature de cette fonction, à part qu'elle est monotone croissant, tel que :

$$V_{inj}^* = \int \left(1 - \frac{S_w}{S_w^*}\right) dV_{inj} \quad (5.1)$$

L'aire colorée sur la figure 5.7 correspond à la mesure de  $V_{inj}^*$  pour une expérience donnée.

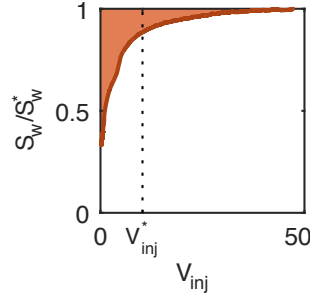


FIGURE 5.7 – Mesure de la saturation en eau  $S_w$  normalisée par  $S_w^*$  en fonction du volume injecté  $V_{inj} = Qt/V_{Total}$  pour  $Ca = 6.6 \times 10^{-4}$ . L'aire colorée correspond à la mesure de  $V_{inj}^*$ . La ligne pointillée représente la valeur de  $V_{inj}^*$ .

### 5.3.2 Variation du volume caractéristique avec le nombre capillaire

Le volume injecté caractéristique,  $V_{inj}^*$ , varie de manière monotone avec le nombre capillaire (fig. 5.8a). Plus le débit est grand, plus le volume nécessaire pour atteindre le maximum de la saturation en eau et un motif stationnaire est important. Il est cependant intéressant de noter que le temps caractéristique, qui est proportionnel au volume injecté caractéristique, décroît avec le nombre capillaire, c'est-à-dire que le temps effectif pour atteindre l'état stationnaire est plus court à haut nombre capillaire.

Ensemble, les variations de  $S_w^*$  et  $V_{inj}^*$  donnent des informations intéressantes pour l'optimisation de la récupération d'huile piégée dans un milieu poreux (fig. 5.8b). Dans le cas de la récupération commerciale du pétrole, où l'utilisation de produits chimiques et la logistique entrent en considération, il faut trouver un



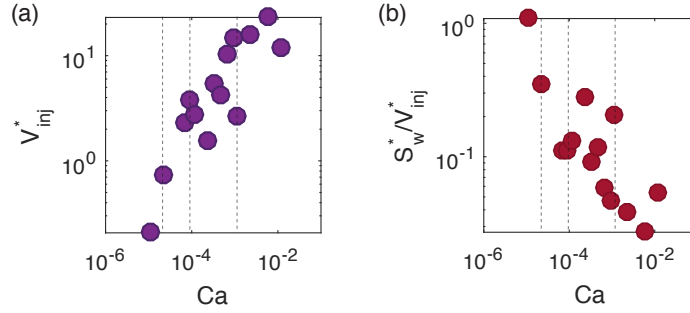


FIGURE 5.8 – (a) Variation du volume injecté caractéristique  $V_{inj}^*$  avec le nombre capillaire  $Ca$ . (b) Variation du ratio  $S_w^*/V_{inj}^*$  avec le nombre capillaire  $Ca$ .

compromis entre injecter très fort pour récupérer rapidement une grosse quantité d'huile, et limiter le coût de l'injection, ce qui revient à maximiser le rapport  $S_w^*/V_{inj}^*$ . Si le but est de récupérer le maximum d'huile sans tenir compte des coûts, par exemple dans le cas de la décontamination d'un sol, il faut maximiser  $S_w^*$  en injectant au plus haut débit possible.

## 5.4 Conclusion

L'observation du motif d'imbibition sur des temps longs devant le temps de percolation a permis de mettre en évidence de véritables changements structuraux des motifs pour les régimes où le déplacement de l'huile est incomplet. Ce mûrissement d'origine capillaire a un impact fort sur les observables macroscopiques.

Une analyse plus poussée de la morphologie des motifs à l'état stationnaire, serait intéressante. Cependant, l'étude de l'évolution de la taille des clusters avec le volume injecté et le nombre capillaire sont difficiles à cause du manque de statistiques. Celui-ci pourrait être résolu en utilisant un milieu poreux plus long associé à une fenêtre d'observation plus grande.

Il serait également pertinent de comparer les effets du rapport de viscosité à ceux du nombre capillaire sur le temps nécessaire pour atteindre l'état stationnaire, et son influence sur l'optimisation des stratégies de récupération de l'huile.

## ANNEXE A

---

Forced Imbibition in Porous Media : A Fourfold Scenario

---



## Forced Imbibition in Porous Media: A Fourfold Scenario

Céleste Odier,<sup>1,2</sup> Bertrand Levaché,<sup>2,3</sup> Enric Santanach-Carreras,<sup>2,3</sup> and Denis Bartolo<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>Univ Lyon, Ens de Lyon, Univ Claude Bernard, CNRS, Laboratoire de Physique, F-69342 Lyon, France

<sup>2</sup>Total SA. Pôle d'Etudes et Recherche de Lacq, BP 47-64170 Lacq, France

<sup>3</sup>Laboratoire Physico-Chimie des Interfaces Complexes, Total-ESPCI Paris-CNRS-UPMC, BP 47-64170 Lacq, France

(Received 19 May 2017; revised manuscript received 6 September 2017; published 17 November 2017)

We establish a comprehensive description of the patterns formed when a wetting liquid displaces a viscous fluid confined in a porous medium. Building on model microfluidic experiments, we evidence four imbibition scenarios all yielding different large-scale morphologies. Combining high-resolution imaging and confocal microscopy, we show that they originate from two liquid-entrainment transitions and a Rayleigh-Plateau instability at the pore scale. Finally, we demonstrate and explain the long-time coarsening of the resulting patterns.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.119.208005

About a hundred years ago field engineers noticed that water does not homogeneously displace oil confined in porous media [1]. After a century of intense research, our understanding of driven liquid interfaces remains surprisingly unbalanced. The case of drainage where the defending fluid wets the confining solid, is fairly well understood, and so is the spontaneous imbibition of a wetting liquid through dry porous structures, such as the rise of a coffee drop in a sugar cube [2–6]. In stark contrast, much less attention has been paid to the situation where imbibition is used to mobilize a more viscous liquid [3,7,8]. For more than twenty years, and despite its relevance to a number of industrial processes, our knowledge about forced imbibition has been mostly limited to a seminal phase diagram constructed by Lenormand from heuristic arguments [3]. However, recent microfluidic experiments [9–12], and simplified 2D simulations [13] have revisited this framework, and established the dramatic impact of wetting properties on liquid displacement. Nonetheless, we still lack a comprehensive picture of forced-imbibition patterns, and of the underlying interfacial dynamics at the pore scale.

In this Letter, we contribute to resolving this situation. Building on model microfluidic experiments, we first demonstrate four classes of macroscopic imbibition patterns yielding nonmonotonic variations of the recovery rate with the driving strength. We then show that they stem from four types of microscopic interfacial dynamics separated by two film-entrainment transitions and one interfacial. Finally, we evidence and explain the long-time coarsening of the resulting macroscopic patterns.

Our experiment consists of injecting an aqueous liquid in a hydrophilic porous medium filled with viscous oil; see the Supplemental Material, movie 1 [14]. Details about the materials, the channel geometry, the microfluidic and imaging methods are provided in the Supplemental Material, document [14]. In brief, we use a simplified 2D rectilinear geometry consisting of a rectangular hydrophilic

microfluidic sticker including a square lattice of posts forming interconnected channels of dimensions  $200\ \mu\text{m} \times 80\ \mu\text{m} \times 70\ \mu\text{m}$ , see Figs. 1(a) and Refs. [15,16]. We first fill the channels with a mixture of silicon oils. Oil is then displaced in this rectilinear displacement geometry by injecting an aqueous solution of dye and SDS (1 wt%) at a constant flow rate  $Q$ . Both the surface tension between the two liquids and the advancing contact angles of water on the solid substrates do not depend on the oil molecular weight. We find  $\gamma = 13 \pm 2\ \text{mN/m}$ , and  $\theta_A = 30 \pm 2^\circ$  ( $\theta_A = 20 \pm 2^\circ$ ) on the treated quartz (sticker) surface. The imbibition patterns are observed with a spatial resolution of  $11\ \mu\text{m}/\text{pixel}$ . The local thickness of the water films is measured from the transmitted-light intensity with an absolute precision of  $4\ \mu\text{m}$ , and with a precision of  $1\ \mu\text{m}$  on its temporal variations [9,14]. In addition, 3D reconstructions of the liquid interfaces at the pore scale are achieved in separate experiments using confocal microscopy.

Let us first discuss the impact of flow rate on the macroscopic pattern morphologies, while keeping constant both the wetting contact angles and the viscosity ratio, here  $M \equiv \eta_{\text{oil}}/\eta_{\text{water}} = 560$ . A natural dimensionless control parameter is given by the capillary number  $\text{Ca} = \eta_{\text{water}}Q/(\gamma S)$ , where  $S$  is the cross-section area of the microchannels separating the posts. Varying  $\text{Ca}$ , we observe four types of patterns exemplified in Figs. 1(a), and Supplemental Material, movie 1 [14]:

*Regime A.*—When  $\text{Ca} < 2.3 \times 10^{-5}$ , the patterns are typical of cooperative pore filling [17] yielding compact capillary domains [3]. A single macroscopic finger proceeds at constant speed, and its faceted edges reflect the square geometry of the underlying periodic lattice [18,19].

*Regime B.*—Increasing the flow rate,  $2.3 \times 10^{-5} < \text{Ca} < 9.1 \times 10^{-5}$ , we still observe the growth of a single yet narrower finger. However, the dynamics of the water-oil interface does not reduce to the motion of a stable meniscus. Instead, the spatial fluctuations of the transmitted

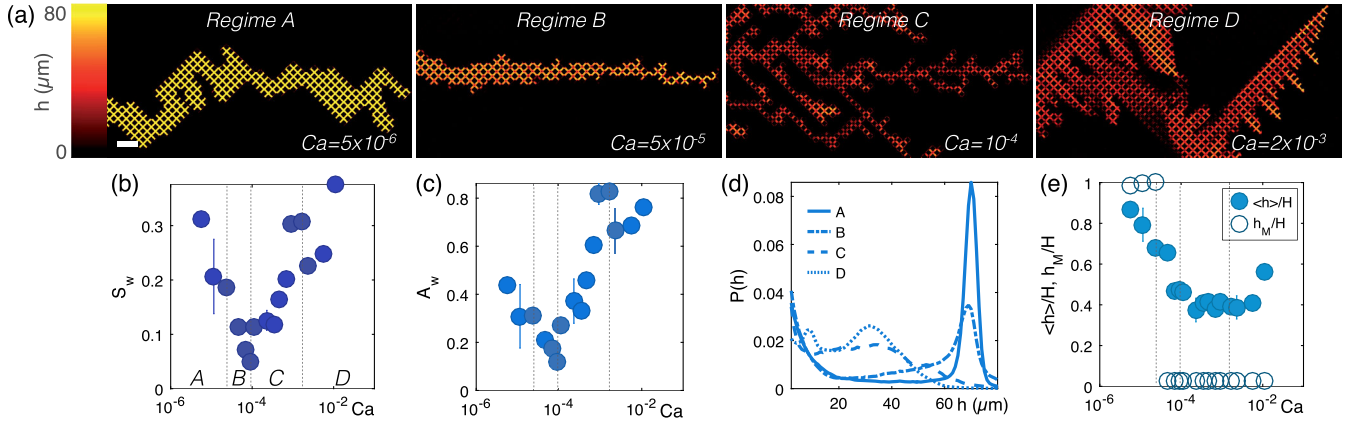


FIG. 1. Imbibition patterns. (a) Four imbibition patterns corresponding to the four regimes discussed in the main text. An aqueous solution is driven through a periodic lattice of channels filled with silicon oil ( $M = 560$ ). The color indicates the local thickness of the water films. Scale bar: 1 mm. (b) Variations of the water saturation with  $Ca$ . (c) Variations of the wetted area fraction with  $Ca$ . (d) Probability distribution of the local water-film thickness for the four capillary numbers corresponding to the experiments shown in (a). The distribution is computed from local thicknesses larger than  $2 \mu\text{m}$ . (e) Light blue circles: thickness of the water films averaged over the wetted region  $\langle h \rangle$  normalized by the average height of the microchannels  $H$ . Dark blue: most probable film thickness,  $h_M$  normalized by  $H$ . Error bars: maximum deviation from the mean (correspond to experiments repeated at least four times). The dashed vertical lines separate the four imbibition regimes.

light indicate that thin water films form and propagate throughout the lattice.

*Regime C.*—Further increasing the flow rate,  $9.1 \times 10^{-5} < Ca < 1.6 \times 10^{-3}$ , the patterns evolve into even thinner films forming patterns with multiple branches and reconnections. We emphasize that this geometry including branch reconnections qualitatively differs from typical viscous fingering motifs, and from all instances of Laplacian growth patterns [5].

*Regime D.*—Finally when  $Ca > 1.6 \times 10^{-3}$ , water films self-organize into nonintersecting branched patterns. They are reminiscent of dendritic growth and drainage dynamics [20–22]. Pushing the flow rate to even higher values yields the fragmentation of the oil-water interfaces, and to the formation of both direct and inverse emulsions.

These four dynamical regimes do not display any sign of metastability upon sudden changes in  $Q$  [14], and have a clear signature on four global observables. In Fig. 1(b) we show the variations of the water saturation  $S_w$  defined as the volume fraction of water, or, equivalently, as the fraction of oil extracted from the porous medium when the water front reaches the end of the device.  $S_w$  undergoes nonmonotonic variations with  $Ca$ , it reaches a minimum exactly at the transition between regimes  $B$  and  $C$ . Surprisingly, at small flow rates pushing faster hinders oil extraction.  $S_w$  also display a local maximum followed by a sharp drop at the transition between regimes  $C$  and  $D$ .

Ignoring the heterogeneities of the water-film thickness, the area fraction of the porous medium in contact with water,  $A_w$ , also varies nonmonotonically with  $Ca$ .  $A_w$  reaches a minimum when a connected branched pattern forms (regime  $C$ ), and a maximum when the dendritic patterns form (regime  $D$ ).

The three transitions are clearly visible when inspecting the distribution of the water-film thickness  $P(h)$  and the non-monotonic variations of  $\langle h \rangle$  in Figs. 1(d) and 1(e). At low  $Ca$  (regime  $A$ ), the distribution is bimodal: the global maximum is located at  $h = H$ , the mean height of the channels. A smaller peak also exists at  $h = 0$  and trivially corresponds to the boundaries of the imbibition pattern. The transition from regime  $A$  to regime  $B$  occurs when the most probable film thickness  $h_M$  [defined as the location of the maximum of  $P(h)$ ] jumps from  $h = H$  to  $h = 0$ , Figs. 1(d) and 1(e). The second transition from regimes  $B$  to  $C$  is also visible on  $P(h)$ . When the connected branched pattern forms, the thickness distribution is still peaked at  $h = 0$  but plateaus at intermediate  $h$  values. Finally, the increase of the mean thickness  $\langle h \rangle$  in Fig. 1(e) signals the onset of regime  $D$ . In this regime, the two low- $h$  peaks seen on  $P(h)$  reflect the difference between the thickness of the finger tips and the water films left upstream as observed in Hele-Shaw geometries [23].

Three comments are in order. First, the abrupt variations of these macroscopic observables confirm that the four imbibition regimes correspond to four distinct physical processes. Second, as demonstrated in the Supplemental Material, document [14], increasing the viscosity ratio  $M$  keeping  $Ca = 2.2 \times 10^{-4}$ , we observed the same transitions from regimes  $A$  to  $B$ , and  $B$  to  $C$ , with the same signature on the film-thickness distribution. This classification in four regimes extends that proposed in Ref. [11], where disorder and the radial variations of the local flow rate are likely to blur the transitions between regimes  $A$ ,  $B$ , and  $C$ .

We now single out the microscopic origin of these four regimes by investigating the imbibition dynamics at the pore scale as illustrated in Fig. 2(a) and the Supplemental Material, movie 2 [14].

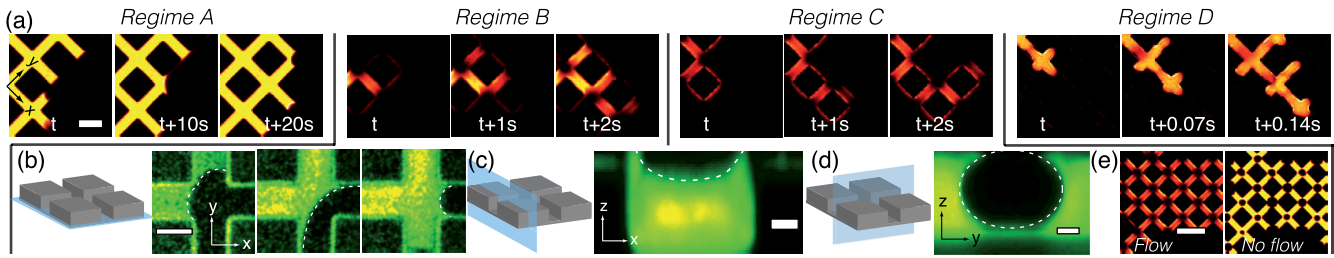


FIG. 2. (a) Consecutive snapshots of the interface dynamics at the pore scale in the four regimes. In regime *B*, the thin films are unstable, oil droplets form and are trapped at the vertices. In regime *C* the thin films are stable. Note the reversal of the apparent contact angle in regime *D*. Same capillary numbers as in Fig. 1(a). Scale bar:  $200\ \mu\text{m}$ . (b) Subsequent confocal images in the  $xy$  plane close to the sticker surface as indicated in the left panel. The contact line progresses everywhere past the sticker surface. Scale bar:  $100\ \mu\text{m}$ . (c) Confocal image of the cross section of a channel in regime *B*. Note that the water film is localized on the bottom surface, leaving an oil hemicylinder on the upper wall. Scale bar:  $20\ \mu\text{m}$ . (d) Same experiment imaged in the  $yz$  plane at the intersection between two channels: an oil droplet is trapped. Scale bar:  $20\ \mu\text{m}$ . (e) Destabilization of the thin films (regime *C*). Left picture: water flows and the films are stable ( $\text{Ca} = 2.2 \times 10^{-4}$ ). Right picture: the flow is stopped and the films are destabilized leaving oil droplets at the channel intersections. Scale bar:  $400\ \mu\text{m}$ .

*Regime A.*—Provides a prototypical illustration of cooperative pore filling [17]. The menisci proceed uniformly through the channels, merge at the vertices and grow until touching the next post. Then, they split into two interfaces invading the adjacent channels.

*Regimes B and C.*—Are associated with a marked change in the microscopic dynamics. As the contact line reaches a corner formed by a square post and a confining wall, the perimeter of the post is coated, leaving a significant fraction of oil immobile in the channels. The coating layer then grows, contacts adjacent posts, and discretely progresses through the lattice. This behavior is consistent with the strong imbibition scenario described by Zhao *et al.* in the high  $\text{Ca}$  limit; see Ref. [11]. Confocal imaging is, however, necessary to complete this scenario. The confocal pictures in Fig. 2(b) are taken  $5\ \mu\text{m}$  above the bottom surface of the channel (sticker surface). The progression of the water-oil interface in this plane is surprisingly similar to the sequences illustrating regime *A* in Fig. 2(a). Even though the contact line accelerates when reaching a corner, it also freely advances away from the posts along the direction of the microchannels. The advancing of the water film does not require any additional Laplace-pressure pumping from the negatively curved gutters at the base of the wetted posts [24]. A possible explanation could be the existence of a rough structure further driving the imbibition process at the suboptical scales [3]. This hypothesis is ruled out by atomic force microscopy imaging. Both the quartz and sticker surfaces are smooth down to the  $10\ \text{nm}$  scale [14]. Therefore, the only possible reason for the formation of a thin film in regimes *B* and *C* is a dynamical wetting transition akin to that discussed in Refs. [9,25]. The confocal image in the  $xz$  plane indeed shows that water films are entrained only on the bottom surface and fully cover it as they grow, Fig. 2(c) and the Supplemental Material, movie 3 [14]. Increasing  $\text{Ca}$ , the contact line on the sticker surface entrains the aqueous liquid at higher speed than the

average liquid front, thereby preventing the steady motion of a stable meniscus. This observation agrees with experiments in simpler Hele-Shaw geometries [9]. Note that the lower advancing contact angles on the sticker is very likely to trigger liquid entrainment on this surface first.

The dynamics of the water front are identical in regimes *B* and *C*. However, an interfacial instability distinguishes these two regimes, corresponding to different film thickness distributions in Fig. 1(d). In both cases, the incomplete displacement of the nonwetting fluid results in the formation of hemicylindrical interfaces as shown in Fig. 2(c). In regime *B*, these interfaces are unstable to the Rayleigh-Plateau instability: the oil threads break into droplets receding to the vertices of the lattice, Figs. 2(a) and 2(d). We stress that this instability does not rely on the contact-angle difference between the two surfaces, as in a homogeneous device the interfaces would still have a cylindrical shape. Increasing the flow rate to regime *C*, the Rayleigh-Plateau instability is suppressed. In principle, the stabilization of the oil hemicylinders could be either due to local pinning of the contact line [26,27], or by the convection of the interface fluctuations as in quickly stretched liquid filaments [28], and in coflowing liquid streams [29]. We single out the origin of this stabilization thanks to additional experiments started deep in regime *C* ( $\text{Ca} = 2.2 \times 10^{-4}$ ) and followed by an abrupt stop of the water flow illustrated in Fig. 2(e) and the Supplemental Material, movie 4 [14]. As the flow stops, the interfaces become unstable: the snap-off events and the resulting droplet pattern typical of regime *B* are recovered. This observation unambiguously confirms that the oil interfaces are dynamically stabilized by the flows in the water films.

*Regime D.*—The discontinuous variations of  $S_w$  and  $A_w$  at the onset of regime *D*, translate a marked qualitative change in the local meniscus dynamics. Given the speed of the water front, confocal imaging is no longer possible. However, it is already clear from the high-resolution

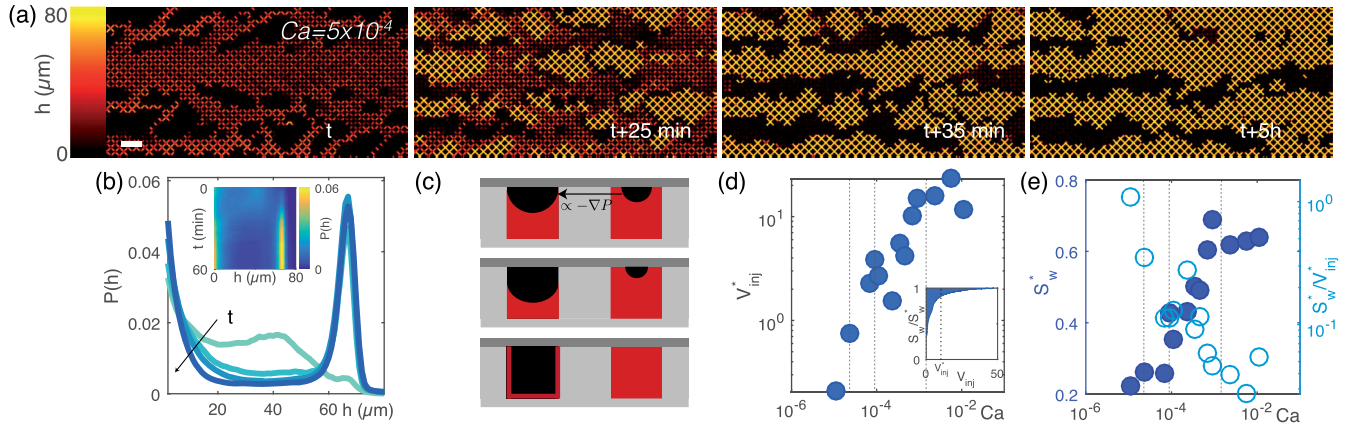


FIG. 3. Coarsening dynamics. (a) Snapshot of the imbibition films in regime  $C$ , where the color indicates the local height of the water films. The first snapshot is taken when water percolates through the lattice,  $t \sim 150$  s after injection. The thin films coarsen.  $Ca = 5 \times 10^{-4}$ ,  $M = 560$ , scale bar: 1 mm. (b) Distribution of the water-film thickness at times corresponding to the snapshots shown in (a). Inset: full temporal evolution of the film-thickness distribution. (c) Sketch of the coarsening mechanism. Oil flows from the regions of highest Laplace pressure. Equivalently, mass conservation implies that the thinner water films empty in the thicker. (d) Variation of  $V_{inj}^*$  with the capillary number. Inset: Measure of  $V_{inj}^*$ . The typical injection volume to reach a steady state corresponds to the area above the curve  $S_w(V_{inj})/S_w^*$ . (e) Opposite variations of  $S_w^*$  and  $S_w^*/V_{inj}^*$  with the capillary number.

snapshots in Fig. 2(a) that the apparent contact angle between the aqueous liquid and the solid walls is reversed: the porous medium becomes effectively hydrophobic. This apparent reversal is explained by another wetting transition first reported for immiscible colloidal liquids with ultralow surface tension [23]. In this high- $Ca$  regime, interface destabilization occurs at the center of the channels where a finger of the aqueous liquid grows and leaves an immobile oil layer on the solid surfaces. In turn, the lubricated motion of the water fingers becomes effectively analogous to a draingange dynamics at the pore scale. Hence, the imbibition patterns become analogous to dendritic growth as observed in conventional anisotropic drainage experiments [20–22].

In line with earlier studies, until now we have limited our discussion to pattern formation prior to the percolation of the driving fluid. This limitation is unimportant when liquid mobilization is achieved by the motion of a stable meniscus at the pore scale. Both in drainage experiments and in regime  $A$ , the driving fluid merely flows through a static percolating pattern [3]. In contrast, the thin-film patterns seen in regimes  $C$  and  $D$  undergo significant structural changes over long time scales. Figure 3(a) and the Supplemental Material, movie 5 [14] show the evolution of the film-thickness distribution over hours of continuous injection in regime  $C$  ( $Ca = 5 \times 10^{-4}$ ). From now on time is measured in terms of the volume of injected water normalized by the overall volume of the porous medium:  $V_{inj} = Qt/V_{Total}$ , in Fig. 3(a), the pattern percolates when  $V_{inj} = 0.27$ . Further increasing the injected volume, the oil-water interfaces are not destabilized by the Rayleigh-Plateau instability. Instead, the wetting pattern slowly evolves into compact islands of pores fully filled with water and connected by a sea of thin

films, Fig. 3(a). The islands grow at the expense of the thin films and eventually coalesce into a percolating cluster of pores where oil has been fully displaced. More quantitatively, we show in Figs. 3(b) [and 3(b) inset] that the water-thickness distribution evolves from a decreasing function to a bimodal distribution peaked both at  $h = 0$  (pattern edges and residual thin films) and  $h = H = 70 \mu\text{m}$  (filled channels). This slow dynamics has a clear microscopic origin. As sketched in Fig. 3(c), the curvature of the oil-water interface, and the resulting Laplace pressure, is smaller in the channels where the water films are thin. Therefore Laplace pressure gradients cause the oil to flow out of regions where the water films are thicker until total water saturation. This coarsening process relies on the capillary drive of the more viscous liquids which *de facto* results in a slower dynamics than the forced propagation of the water films. The collective relaxation of the  $h$  field further increases the volume of injected water needed to reach a stationary pattern. The typical water volume,  $V_{inj}^*$  required to reach the asymptotic steady state monotonically increases with  $Ca$  [see Fig. 3(d) and inset]: the higher the flow rate, the higher the water volume required to achieve maximal saturation and form stationary patterns. Unlike its value at percolation, the asymptotic value of  $S_w^*$  monotonically increases with  $Ca$ : pushing harder mobilizes more oil; see Fig. 3(e).

Altogether the variations of  $V_{inj}^*$  and  $S_w^*$  are useful guidelines to design optimal oil-recovery strategies. Decontamination processes requiring the mobilization of the maximal amount of oil, at any cost, would be optimized at the highest possible injection rate. Conversely, commercial oil extraction would require a trade-off, e.g., maximizing the  $S_w^*/V_{inj}^*$  ratio, which would correspond to minimizing the water flow rate, Fig. 3(e) (light circles).

From a more fundamental perspective, we hope our findings will stimulate experimental and theoretical investigation to quantitatively elucidate the interfacial instabilities underlying the fourfold dynamical scenarios established in this Letter.

We acknowledge support from Institut Universitaire de France (D. B.). We thank M. Faivre, C. Moscalenko, and M. Levant for help with the lithography, AFM, and SEM experiments. We also thank R. Juanes, G. McKinley, and especially A. Pahlavan for insightful comments and valuable suggestions.

---

\*Corresponding author.  
denis.bartolo@ens-lyon.fr

- [1] S. E. Buckley and M. C. Leverett, Mechanism of fluid displacement in sands, *Trans. Am. Inst. Mining and Metall. Engin.* **146**, 107 (1942).
- [2] R. Lenormand, E. Touboul, and C. Zarcone, Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media, *J. Fluid Mech.* **189**, 165 (1988).
- [3] R. Lenormand, Liquids in porous media, *J. Phys. Condens. Matter* **2**, SA79 (1990).
- [4] B. Sandnes, E. G. Flekkøy, H. A. Knudsen, K. J. Måløy, and H. See, Patterns and flow in frictional fluid dynamics, *Nat. Commun.* **2**, 288 (2011).
- [5] M. Sahimi, Flow phenomena in rocks: from continuum models to fractals, percolation, cellular automata, and simulated annealing, *Rev. Mod. Phys.* **65**, 1393 (1993).
- [6] M. Alava, M. Dube, and M. Rost, Imbibition in disordered media, *Adv. Phys.* **53**, 83 (2004).
- [7] J. P. Stokes, D. A. Weitz, J. P. Gollub, A. Dougherty, M. O. Robbins, P. M. Chaikin, and H. M. Lindsay, Interfacial Stability of Immiscible Displacement in a Porous Medium, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1718 (1986).
- [8] D. A. Weitz, J. P. Stokes, R. C. Ball, and A. P. Kushnick, Dynamic Capillary Pressure in Porous Media: Origin of the Viscous-Fingering Length Scale, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2967 (1987).
- [9] B. Levaché and D. Bartolo, Revisiting the Saffman-Taylor Experiment: Imbibition Patterns and Liquid-Entrainment Transitions, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 044501 (2014).
- [10] J. S. Wexler, I. Jacobi, and H. A. Stone, Shear-Driven Failure of Liquid-Infused Surfaces, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 168301 (2015).
- [11] B. Zhao, C. W. MacMinn, and R. Juanes, Wettability control on multiphase flow in patterned microfluidics, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **113**, 10251 (2016).
- [12] M. Trojer, M. L. Szulcowski, and R. Juanes, Stabilizing Fluid-Fluid Displacements in Porous Media through Wettability Alteration, *Phys. Rev. Applied* **3**, 054008 (2015).
- [13] R. Holtzman and E. Segre, Wettability Stabilizes Fluid Invasion into Porous Media via Nonlocal, Cooperative Pore Filling, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 164501 (2015).
- [14] See Supplemental Material at <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.119.208005> where we report (i) a detailed description of the materials and methods, (ii) an AFM characterization of the surface roughness, and (iii) experiments performed at constant flow rate and increasing viscosity ratio.
- [15] D. Bartolo, G. Degre, P. Nghe, and V. Studer, Microfluidic stickers, *Lab Chip* **8**, 274 (2008).
- [16] B. Levache, A. Azioune, M. Bourrel, V. Studer, and D. Bartolo, Engineering the surface properties of microfluidic stickers, *Lab Chip* **12**, 3028 (2012).
- [17] M. Cieplak and M. O. Robbins, Mark, Influence of contact angle on quasistatic fluid invasion of porous media, *Phys. Rev. B* **41**, 11508 (1990).
- [18] L. Courbin, E. Denieul, E. Dressaire, M. Roper, A. Ajdari, and H. A. Stone, Imbibition by polygonal spreading on microdecorated surfaces, *Nat. Mater.* **6**, 661 (2007).
- [19] T. Cubaud and M. Fermigier, Faceted drops on heterogeneous surfaces, *Europhys. Lett.* **55**, 239 (2001).
- [20] J.-D. Chen and D. Wilkinson, Pore-Scale Viscous Fingering in Porous Media, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 1892 (1985).
- [21] E. Ben-Jacob, R. Godbey, N. D. Goldenfeld, J. Koplik, H. Levine, T. Mueller, and L. M. Sander, Experimental Demonstration of the Role of Anisotropy in Interfacial Pattern Formation, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 1315 (1985).
- [22] A. Budek, P. Garstecki, A. Samborski, and P. Szymczak, Thin-finger growth and droplet pinch-off in miscible and immiscible displacements in a periodic network of microfluidic channels, *Phys. Fluids* **27**, 112109 (2015).
- [23] S. A. Setu, I. Zacharoudiou, G. J. Davies, D. Bartolo, S. Moulinet, A. A. Louis, J. M. Yeomans, and D. G. A. L. Aarts, Viscous fingering at ultralow interfacial tension, *Soft Matter* **9**, 10599 (2013).
- [24] P. Concus and R. Finn, On the behavior of a capillary surface in a wedge, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **63**, 292 (1969).
- [25] J. H. Snoeijer and B. Andreotti, Moving contact lines: Scales, regimes, and dynamical transitions, *Annu. Rev. Fluid Mech.* **45**, 269 (2013).
- [26] H. Gau, S. Herminghaus, P. Lenz, and R. Lipowsky, Liquid morphologies on structured surfaces: From microchannels to microchips, *Science* **283**, 46 (1999).
- [27] R. L. Speth and E. Lauga, Capillary instability on a hydrophilic stripe, *New J. Phys.* **11**, 075024 (2009).
- [28] S. Tomotika, Breaking up of a drop of viscous liquid immersed in another viscous fluid which is extending at a uniform rate, *Proc. R. Soc. A* **153**, 302 (1936).
- [29] J. Eggers and E. Villermaux, Physics of liquid jets, *Rep. Prog. Phys.* **71**, 036601 (2008).

- [1] BP, “Statistical Review of World Energy,” Tech. Rep. June, 2016. [13](#)
- [2] M. B. Dusseault, “Comparing Venezuelan and Canadian Heavy Oil and Tar Sands,” in *Canadian International Petroleum Conference*, no. June, pp. 1–20, 2001. [14](#)
- [3] C. J. Schenk, T. A. Cook, R. R. Charpentier, R. M. Pollastro, T. R. Klett, M. E. Tennyson, M. A. Kirschbaum, M. E. Brownfield, and J. K. Pitman, “An Estimate of Recoverable Heavy Oil Resources of the Orinoco Oil Belt, Venezuela,” Tech. Rep. October, USGS, 2009. [14](#)
- [4] V. A. Lifton, “Microfluidics : an enabling screening technology for enhanced oil recovery (EOR),” *Lab on a Chip*, vol. 16, no. 10, pp. 1777–1796, 2016. [15](#)
- [5] N. K. Karadimitriou and S. M. Hassanizadeh, “A Review of Micromodels and Their Use in Two-Phase Flow Studies,” *Vadose Zone Journal*, vol. 11, no. 3, p. 0, 2012. [15](#)
- [6] H. Darcy, “Les fontaines publiques de la ville de Dijon,” *V. Dalmont*, 1856. [15](#)
- [7] D. Bonn, J. Eggers, J. Indekeu, and J. Meunier, “Wetting and spreading,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 81, no. 2, pp. 739–805, 2009. [16](#), [17](#), [83](#)
- [8] C. Huh and L. Scriven, “Hydrodynamic model of steady movement of a solid/liquid/fluid contact line,” *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 35, pp. 85–101, Jan. 1971. [16](#)
- [9] L. M. Hocking, “A moving fluid interface. part 2. the removal of the force singularity by a slip flow,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 79, no. 2, p. 209–229, 1977. [16](#)



- [10] C. Cottin-Bizonne, B. Cross, A. Steinberger, and E. Charlaix, “Boundary slip on smooth hydrophobic surfaces : Intrinsic effects and possible artifacts,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 94, p. 056102, Feb 2005. [16](#)
- [11] P. G. Hervet, H. et De Gennes, “The dynamics of wetting : Precursor films in the wetting of dry solids,” *Comptes rendus de l’Académie des sciences*, vol. 299, p. 489, 1984. [17](#)
- [12] P. Seppecher, “Moving contact lines in the Cahn-Hilliard theory,” *International Journal of Engineering Science*, vol. 34, no. 9, pp. 977–992, 1996. [17](#)
- [13] P. Tabeling, G. Zocchi, and A. Libchaber, “An experimental study of the saffman-taylor instability,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 177, p. 67–82, 1987. [19](#), [20](#)
- [14] P. G. Saffman and G. Taylor, “The penetration of a fluid into a porous medium or hele-shaw cell containing a more viscous liquid,” *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 245, no. 1242, pp. 312–329, 1958. [19](#)
- [15] C. W. Park and G. M. Homsy, “The instability of long fingers in hele-shaw flows,” *The Physics of Fluids*, vol. 28, no. 6, pp. 1583–1585, 1985. [19](#)
- [16] A. Tabeling, P. and Libchaber, “Film draining and the Saffman-Taylor problem,” *Physical Review A*, vol. 33, pp. 794—796, 1986. [19](#)
- [17] F. P. Bretherton, “The motion of long bubbles in tubes,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 10, no. 2, p. 166–188, 1961. [19](#)
- [18] C.-W. Park and G. M. Homsy, “Two-phase displacement in Hele Shaw cells : theory,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 139, no. -1, p. 291, 1984. [20](#)
- [19] I. Bischofberger, R. Ramachandran, and S. R. Nagel, “An island of stability in a sea of fingers : emergent global features of the viscous-flow instability,” *Soft Matter*, vol. 11, no. 37, pp. 7428–7432, 2015. [20](#)
- [20] R. Lenormand, “Liquids in porous media,” *J. Phys. : Condens. Matter*, vol. 2, p. SA79, 1990. [21](#), [22](#), [27](#), [28](#), [33](#), [64](#), [79](#), [89](#)
- [21] C. Cottin, H. Bodiguel, and A. Colin, “Drainage in two-dimensional porous media : From capillary fingering to viscous flow,” *Phys. Rev. E*, vol. 82, p. 046315, Oct 2010. [23](#), [89](#)
- [22] C. Cottin, H. Bodiguel, and A. Colin, “Influence of wetting conditions on drainage in porous media : A microfluidic study,” *Phys. Rev. E*, vol. 84, p. 026311, Aug 2011. [23](#)
- [23] A. Budek, P. Garstecki, A. Samborski, and P. Szymczak, “Thin-finger growth and droplet pinch-off in miscible and immiscible displacements in a periodic network of microfluidic channels,” *Physics of Fluids*, vol. 27, no. 11, 2015. [23](#), [66](#), [81](#), [82](#)

- [24] S. A. Setu, I. Zacharoudiou, G. J. Davies, D. Bartolo, S. Moulinet, A. A. Louis, J. M. Yeomans, and D. G. A. L. Aarts, “Viscous fingering at ultralow interfacial tension,” *Soft Matter*, vol. 9, pp. 10599–10605, 2013. [23](#), [24](#), [81](#), [82](#), [85](#)
- [25] B. Levaché, A. Azioune, M. Bourel, V. Studer, and D. Bartolo, “Engineering the surface properties of microfluidic stickers,” *Lab on a Chip*, pp. 1–4, 2012. [24](#), [25](#), [47](#), [48](#), [49](#), [60](#)
- [26] E. W. Washburn, “The dynamics of capillary flow,” *Phys. Rev.*, vol. 17, pp. 273–283, Mar 1921. [24](#)
- [27] R. Lenormand, C. Zarcone, and A. Sarr, “Mechanisms of the displacement of one fluid by another in a network of capillary ducts,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 135, p. 337, 1983. [25](#), [26](#), [79](#), [84](#)
- [28] R. Lenormand and C. Zarcone, “Role of Roughness and Edges During Imbibition in Square Capillaries,” *Proceedings of SPE Annual Technical Conference and Exhibition*, no. September 1984, p. 17, 1984. [25](#), [83](#)
- [29] J. G. Roof, “Snap-Off of Oil Froplets in Water-Wet Pores,” *Society of Petroleum Engineers Journal*, no. March, pp. 85–90, 1970. [25](#), [84](#)
- [30] J. H. Snoeijer and B. Andreotti, “Moving Contact Lines : Scales, Regimes, and Dynamical Transitions,” *Annual Review of Fluid Mechanics*, vol. 45, no. 1, pp. 269–292, 2013. [29](#)
- [31] R. G. Cox, “The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. part 1. viscous flow,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 168, p. 169–194, 1986. [29](#)
- [32] E. Rio, A. Daerr, B. Andreotti, and L. Limat, “Boundary conditions in the vicinity of a dynamic contact line : Experimental investigation of viscous drops sliding down an inclined plane.,” *Physical Review Letters*, vol. 94, no. 2, 2005. [30](#)
- [33] G. Delon, M. Fermigier, J. H. Snoeijer, and B. Andreotti, “Relaxation of a dewetting contact line. part 2. experiments,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 604, p. 55–75, 2008. [30](#)
- [34] B. Levaché, *Dynamiques d’imbibition en milieu confiné*. PhD thesis, UPMC, 2014. [31](#)
- [35] F. Goucher and H. Ward, “A problem in viscosity - the thickness of liquid films formed on solid surfaces under dynamic conditions.,” *Philosophical Magazine*, vol. 44, no. 44, pp. 1002–1014, 1922. [30](#)
- [36] F. Morey, “Thickness of a liquid film adhering to a surface slowly withdrawn from the liquid.,” *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, vol. 25, no. 3, 1940. [30](#)

- [37] B. Landau, L. Levich, "Dragging of a liquid by a moving plate," *Acta Physicochimica USSR*, vol. 17, pp. 42–54, 1942. 30, 83, 85
- [38] J. Eggers, "Contact line motion for partially wetting fluids," *Phys. Rev. E*, vol. 72, p. 061605, Dec 2005. 30
- [39] J. H. Snoeijer, G. Delon, M. Fermigier, and B. Andreotti, "Avoided critical behavior in dynamically forced wetting," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 96, p. 174504, May 2006. 30
- [40] A. Marchand, T. S. Chan, J. H. Snoeijer, and B. Andreotti, "Air entrainment by contact lines of a solid plate plunged into a viscous fluid," *Physical Review Letters*, vol. 108, no. 20, pp. 3–7, 2012. 31, 32, 83
- [41] C. Duez, C. Ybert, C. Clanet, and L. Bocquet, "Making a splash with water repellency," *Nature Physics*, vol. 3, pp. 180–183, Feb. 2007. 31
- [42] B. Zhao, C. W. MacMinn, and R. Juanes, "Wettability control on multiphase flow in patterned microfluidics," *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 113, no. 37, pp. 10251–10256, 2016. 32, 75, 76, 80, 89
- [43] D. Bartolo, P. Nghe, and V. Studer, "Microfluidic Stickers," *Lab on a chip*, vol. 8, pp. 1–6, 2008. 39
- [44] K. Christ, B. Smith, F. Pfefferkorn, and K. Turner, "Micro End Milling Polystyrene for Microfluidic Applications," in *Core.Kmi.Open.Ac.Uk*, pp. 423–430, 2010. 41
- [45] D. J. Guckenberger, T. de Groot, A. M.-D. Wan, D. Beebe, and E. Young, "Micromilling : A method for ultra-rapid prototyping of plastic microfluidic devices," *Lab on a chip*, vol. 15, no. 11, pp. 2364–2378, 2015. 41
- [46] P. C. Chen, C. W. Pan, W. C. Lee, and K. M. Li, "An experimental study of micromilling parameters to manufacture microchannels on a PMMA substrate," *International Journal of Precision Engineering and Manufacturing*, vol. 15, no. 1, pp. 1623–1630, 2014. 41, 45
- [47] L. Courbin, E. Denieul, E. Dressaire, M. Roper, A. Ajdari, and H. A. Stone, "Imbibition by polygonal spreading on microdecorated surfaces," *Nature Material*, vol. 6, no. 9, pp. 661–664, 2007. 64, 79
- [48] T. Cubaud and M. Fermigier, "Faceted drops on heterogeneous surfaces," *Europhysics Letters (EPL)*, vol. 55, no. 2, pp. 239–245, 2001. 64
- [49] M. Sahimi, "Flow phenomena in rocks : from continuum models to fractals, percolation, cellular automata, and simulated annealing," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 65, pp. 1393–1534, Oct 1993. 65
- [50] J. D. Chen and D. Wilkinson, "Pore-scale viscous fingering in porous media," *Physical Review Letters*, vol. 55, no. 18, pp. 1892–1895, 1985. 66, 81

- [51] E. Ben-Jacob, R. Godbey, N. D. Goldenfeld, J. Koplik, H. Levine, T. Mueller, and L. M. Sander, “Experimental demonstration of the role of anisotropy in interfacial pattern formation,” *Physical Review Letters*, vol. 55, no. 12, pp. 1315–1318, 1985. [66](#), [81](#)
- [52] B. S. France, “Bluestar silicones’ oils 47 technical information,” tech. rep. [74](#), [75](#)
- [53] J. Bico and D. Quéré, “Rise of Liquids and Bubbles in Angular Capillary Tubes,” *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 247, no. 1, pp. 162–166, 2002. [83](#)
- [54] A. Ponomarenko, D. Quéré, and C. Clanet, “A universal law for capillary rise in corners,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 666, no. 2011, pp. 146–154, 2011. [83](#)
- [55] P. Concus and R. Finn, “On the behaviour of a capillary surface in a wedge,” *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, vol. 63, no. 2, pp. 292–299, 1969. [83](#)
- [56] J. H. Snoeijer, J. Ziegler, B. Andreotti, M. Fermigier, and J. Eggers, “Thick films of viscous fluid coating a plate withdrawn from a liquid reservoir,” *Physical Review Letters*, vol. 100, no. 24, pp. 8–11, 2008. [83](#)
- [57] B. Levaché and D. Bartolo, “Revisiting the saffman-taylor experiment : Imbibition patterns and liquid-entrainment transitions,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 113, p. 044501, Jul 2014. [83](#)
- [58] H. Gau, S. Herminghaus, P. Lenz, and R. Lipowsky, “Liquid morphologies on structured surfaces : From microchannels to microchips,” *Science*, vol. 283, no. 5398, pp. 46–49, 1999. [84](#)
- [59] R. L. Speth and E. Lauga, “Capillary instability on a hydrophilic stripe,” *New Journal of Physics*, vol. 11, 2009. [84](#)
- [60] J. Eggers and E. Villermaux, “Physics of liquid jets,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 71, no. 3, p. 036601, 2008. [84](#)
- [61] S. Tomotika, “Breaking up of a Drop of Viscous Liquid Immersed in Another Viscous Fluid which is Extending at a Uniform Rate,” *Proceedings of the royal society A*, vol. 153, pp. 302—318, 1936. [84](#)
- [62] J. P. Stokes, D. A. Weitz, J. P. Gollub, A. Dougherty, M. O. Robbins, P. M. Chaikin, and H. M. Lindsay, “Interfacial stability of immiscible displacement in a porous medium,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 57, pp. 1718–1721, Oct 1986. [89](#)