



**HAL**  
open science

# Rôle de la chimie des surfactants dans la dynamique de gouttes confinées dans une cavité microfluidique

Jacques-Teïva Baué

► **To cite this version:**

Jacques-Teïva Baué. Rôle de la chimie des surfactants dans la dynamique de gouttes confinées dans une cavité microfluidique. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université de Rennes, 2022. Français. NNT : 2022REN1S092 . tel-04067646

**HAL Id: tel-04067646**

**<https://theses.hal.science/tel-04067646>**

Submitted on 13 Apr 2023

**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.

# THESE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITÉ DE RENNES 1

ECOLE DOCTORALE N° 596

*Matière, Molécules, Matériaux*

Spécialité : *Physique*

Par

**Jacques-Teïva BAUÉ**

## **Rôle de la chimie des surfactants dans la dynamique de gouttes confinées dans une cavité micro-fluidique**

Thèse présentée et soutenue à Rennes, le 3 novembre 2022

Unité de recherche : Institut de Physique de Rennes – UMR 6251

### **Rapporteurs avant soutenance :**

José Bico                      Maître de Conférence, ESPCI  
Benjamin Dollet            Chargé de recherche, CNRS, LIPhy

### **Composition du Jury :**

Président :	Tanguy Le Borgne	Professeur, Université de Rennes 1
Examineurs :	Axel Huerre	Chargé de recherche CNRS, Université de Paris
	Olivier Théodoly	Directeur de recherche CNRS, Université d'Aix-Marseille
	José Bico	Maître de Conférence, ESPCI
	Benjamin Dollet	Chargé de recherche CNRS, Université de Grenoble Alpes
Dir. de thèse :	Marie-Caroline Jullien	Directrice de recherche CNRS, Université de Rennes 1
Co-dir. de thèse :	Isabelle Cantat	Professeure, Université de Rennes 1



"Wenn man nicht jeden tag besser wird, ist man auf ein mal nicht mehr gut."

– Marcel, Eugène BAUÉ –

24 Février 1925 - 10 Avril 2022



## REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à remercier Marie-Caroline Jullien et Isabelle Cantat, mes directrices de thèse, pour leur accompagnement durant ces 3 années de recherche, malgré la période difficile que nous avons traversée. Votre soutien, votre patience et votre expertise ont été essentiels pour mener à bien ce travail. Ici, une pensée pour Emmanuel, pour son soutien, ses compétences techniques et scientifiques qui m'ont guidé tout au long de ces années.

Je souhaite également exprimer ma gratitude envers les membres du jury Axel Huerre, Olivier Théodoly, Tanguy Le Borgne, José Bico et Benjamin Dollet pour leur temps, leurs commentaires constructifs et leurs encouragements.

Je voudrais remercier l'ensemble du laboratoire pour m'avoir accueilli avec bienveillance, en particulier les non-permanents Ambroise, Jeanne, Maxime, Noémie et Charlène, ainsi que tous les autres. Votre collaboration, votre enthousiasme et votre bonne humeur ont rendu ces années de recherche agréables et stimulantes. Je ne saurais dire combien de litres de café ont été bus en salle 007, mais ils resteront de bons souvenirs.

Une pensée pour les membres de l'Institut de Physique de Rennes qui nous accompagnent tout au long de ce voyage qu'est le doctorat et qui nous rendent la vie plus facile : Bénédicte, Nathalie(s), Patrick, Jean-Charles et d'autres.

Je tiens à remercier tout particulièrement les membres de la "Team Caro" : avec en premier Donatien qui m'a accompagné et a essayé de faire de moi un chimiste, avec un succès somme toute limité, Alexis pour le soutien moral et les bières partagées, Adrien notre geek favori sans qui je ne serais allé au bout, Lucas "le stagiaire" qui, j'en suis sûr, reprendra avec brio et en mieux ce que je laisse ici et Thomas à qui je souhaite bon vent et bon courage pour ses dernières années. Votre soutien, votre humour et votre énergie ont été précieux tout au long de cette aventure. Je ne pouvais pas rêver d'une meilleure équipe pour affronter les défis scientifiques, mais aussi les moments de doute et de fatigue.

Enfin, Théo, avec qui j'ai fait les 400 coups autour du globe et grâce à qui ces années de thèse ont un goût de charbon à l'oignon, du sauvage ouest américain, de flamenco andalou et de "hi-haan". Mon ami et complice de voyage, pour avoir partagé avec moi des moments inoubliables, qui ont coloré ces années de thèse d'une saveur particulière, pour tes blagues, ta bonne humeur et ton goût de l'aventure qui ont été un véritable moteur pour moi, merci.

Je suis reconnaissant envers toutes les personnes qui ont contribué à cette thèse, directement ou

indirectement. Je pense à Rémy et à Alexandre, mon bras droit, mes témoins indéfectibles, avec qui je me suis défoulé parcourant des kilomètres à pied ou à vélo (pas en nageant pour ces deux-là...). Merci à Anabelle, Simon, Benjamin, Romane, Jade, Lucas et tous les autres de la Team ENS pour ces sorties "souples" où nous finissions cramés. Merci pour cet exutoire indispensable.

Pour finir, je tenais à remercier celle sans qui rien ne serait possible. Merci à ma compagne, ma meilleure amie devenue mon épouse entre deux pages de ce manuscrit. Cette thèse, c'est aussi la tienne, car derrière chacun de ces mots se cache ton soutien sans faille. Je t'aime.

# TABLE DES MATIÈRES

<b>Table des matières</b>	<b>i</b>
<b>1 Dynamique de gouttes</b>	<b>5</b>
1.1 Mécanique des fluides . . . . .	5
1.1.1 Équation de Navier-Stokes . . . . .	5
1.2 Effets de surface . . . . .	6
1.2.1 Tension de surface et capillarité . . . . .	6
1.2.2 Mouillage . . . . .	7
1.2.3 Loi de Young-Laplace . . . . .	7
1.2.4 Surfactants . . . . .	8
1.2.5 Effet Marangoni . . . . .	12
1.2.6 Microfluidique . . . . .	12
1.3 Dynamique d'objets confinés dans un capillaire . . . . .	14
1.3.1 Nombre capillaire . . . . .	14
1.3.2 Bulle dans un capillaire : notion de ménisques . . . . .	14
1.3.3 Pression de disjonction . . . . .	16
1.3.4 Bulle dans un capillaire : influence des surfactants . . . . .	17
1.3.5 Cas d'une goutte : Influence de la viscosité interne . . . . .	18
1.4 Dynamique d'objets confinés dans une cellule de Hele-Shaw . . . . .	19
1.4.1 Définitions des objets en cellule de Hele-Shaw . . . . .	19
1.4.2 Importance du confinement : notion de goutte pancake . . . . .	20
1.4.3 Signature de vitesses interfaciales et internes : expérimentation et simulations	23
1.5 Approches théoriques . . . . .	23
1.5.1 Champs de vitesse et de pression . . . . .	23
1.5.2 Établissement de la loi de mobilité . . . . .	25
1.6 Bilan sur la dépendance en rayon . . . . .	27
1.7 Mesure de la topographie de film sous des gouttes confinées . . . . .	29
1.7.1 Frottements aux parois . . . . .	29
1.7.2 Lien entre vitesse interfaciale et frottements aux parois . . . . .	29
1.8 Résultats de la thèse . . . . .	32
<b>2 Mesure de la mobilité // Dispositif expérimental</b>	<b>33</b>
2.1 Dispositif microfluidique . . . . .	33
2.1.1 Présentation du dispositif . . . . .	33
2.1.2 Fabrication des gouttes dans la jonction T . . . . .	35



2.1.3	Cahier des charges expérimental . . . . .	37
2.1.4	Fabrication . . . . .	37
2.1.5	Montage expérimental . . . . .	41
2.1.6	Comparaison pousse-seringue / contrôleur en pression . . . . .	42
2.1.7	Déformation de la cavité . . . . .	44
2.1.8	Dispositif optique et microscope . . . . .	45
	Pour résumer . . . . .	53
<b>3</b>	<b>Mesure de la mobilité</b>	<b>55</b>
3.1	Paramètres de contrôle. . . . .	56
3.1.1	Chimies utilisées . . . . .	56
3.1.2	Limitations . . . . .	56
3.1.3	Sel et mouillage . . . . .	58
3.2	Résultats expérimentaux. . . . .	59
3.2.1	$U_d = f(U_f)$ . . . . .	59
3.2.2	$U_d = f(U_f)$ pour des gouttes de différents rayons au sein d'une même cavité . . . . .	60
3.2.3	$U_d = f(U_f)$ pour différentes concentrations en sel . . . . .	62
3.2.4	Mobilité d'une goutte . . . . .	62
3.2.5	Comparaison C10-C12 à même rayon . . . . .	65
3.2.6	Comparaison C10-C12 pour différents rayons . . . . .	65
3.2.7	Bilan pour différentes chimies de phase porteuse . . . . .	67
3.3	Conclusion et ouverture . . . . .	68
	Pour résumer . . . . .	70
<b>4</b>	<b>Dispositif Interférométrique</b>	<b>71</b>
4.1	Introduction . . . . .	71
4.1.1	Mesure d'épaisseur par interférence . . . . .	71
4.1.2	Schéma de principe du dispositif . . . . .	75
4.1.3	Modèle plus complet sous épi-illumination . . . . .	76
4.1.4	Prise en compte de réflexions au plafond . . . . .	78
4.2	Dispositif expérimental . . . . .	79
	Cahier des charges . . . . .	80
4.2.1	Montage de l'expérience . . . . .	80
4.2.2	Performances . . . . .	87
4.3	Validation du dispositif . . . . .	88
4.3.1	Sur un objet calibré : le cas d'une bille optique, pour une mesure relative. . . . .	88
4.3.2	Sur notre objet d'étude : le cas d'une goutte statique pour une mesure absolue. . . . .	96
4.4	Perspectives : vers un montage multi-LED . . . . .	101
	Pour résumer . . . . .	102
<b>5</b>	<b>Gouttes dynamiques</b>	<b>103</b>
5.1	Introduction . . . . .	103
5.2	Reconstruction du film. . . . .	103
5.2.1	Exemple de reconstruction de film . . . . .	104

5.2.2	Problématique au changement de branche et choix de références . . . . .	106
5.3	Mesure de l'épaisseur du film plat . . . . .	108
5.3.1	Profil de ménisque dynamique . . . . .	108
5.3.2	Épaisseur en fonction de $U_f$ . . . . .	109
5.3.3	Épaisseur en fonction du nombre capillaire pour différents éclairages . . . . .	109
5.3.4	Mesure d'épaisseur de film au niveau du plafond . . . . .	111
5.3.5	Commentaires. . . . .	111
5.4	Comparaison des profils . . . . .	112
5.4.1	Modèle théorique de la forme des ménisques . . . . .	112
5.4.2	Comparaison modèle/expérience . . . . .	114
5.4.3	Comparaison C10-Sulfate & C12-Sulfate . . . . .	117
5.5	Conclusion . . . . .	119
	Pour résumer . . . . .	121
<b>6</b>	<b>Discussion</b>	<b>123</b>
6.0.1	Différence de pression . . . . .	124
6.0.2	Bilan de surfactant . . . . .	124
6.0.3	Marangoni sur les côtés de la goutte . . . . .	125
6.0.4	Cas où $\tau \rightarrow 0$ . . . . .	126
6.0.5	Cas où $\tau \rightarrow \infty$ . . . . .	126
6.0.6	Comparaison modèle - expérimentations . . . . .	127
<b>7</b>	<b>Conclusion</b>	<b>131</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>133</b>



# INTRODUCTION

Le sujet de ce doctorat tel que présenté dans ce manuscrit est intitulé :

*Rôle de la chimie des surfactants dans la dynamique de gouttes confinées dans une cavité microfluidique*

Ce chapitre a pour but d'éclaircir et d'introduire chacun de ces termes afin de préparer le lecteur à la suite. L'idée est, au travers d'un historique succinct, de comprendre comment au-delà de considérations purement hydrodynamiques, l'étude des écoulements aux petites échelles est allée de pair avec la mise en évidence de l'influence des phénomènes de transport d'espèces chimiques. Dans un premier temps, nous allons donner une définition de chacun des termes de l'intitulé, puis nous allons introduire des notions nécessaires à la compréhension des choix expérimentaux qui ont été faits, enfin nous donnerons la ligne directrice et les objectifs qui ont été les nôtres au cours de ce doctorat.

Prenons chaque terme de l'intitulé, et commençons par la fin : *gouttes confinées dans une cavité microfluidique*. L'objet de notre étude est une goutte confinée. Précisément nous nous intéressons à une goutte, c'est à dire un objet issu d'un écoulement biphasique (*i.e* comportant deux phases distinctes, par exemple une goutte d'huile dans de l'eau), qui évolue dans un environnement confiné. Ledit environnement est une cellule de Hele-Shaw, c'est à dire un canal à section rectangulaire dont l'épaisseur est très faible devant les deux autres dimensions. Nous devons son nom à son créateur : Henry Selby Hele-Shaw, qui l'a utilisé pour visualiser expérimentalement des écoulements potentiels en deux dimensions autour d'obstacles solides [HS98]. Est montrée figure 0.1 une impression dudit article, qui date tout de même de 1898. L'avantage d'un tel confinement est de proposer des écoulements toujours laminaires.

La seconde partie de cet intitulé est la *dynamique*. Ces travaux s'intéressent à la dynamique de gouttes. Communément utilisées en microfluidique, la compréhension de leur dynamique est incomplète. La question que l'on se pose est a priori extrêmement simple : si l'on suppose qu'une goutte fluide non mouillante (la phase interne) est poussée dans une cellule de Hele-Shaw par un autre fluide (la phase porteuse), **Quelle est la vitesse de la goutte pour un débit de phase porteuse donné?** C'est un problème à deux vitesses, la première est celle que l'on impose, l'entrée de notre système, la vitesse la phase porteuse qui sera notée  $U_f$  dans ce manuscrit. Cette vitesse correspond à la vitesse moyenne dans la cavité, moyennée sur la hauteur. La seconde est la vitesse de la goutte que l'on mesure en observant le déplacement de son centre de masse :  $U_d$ . Le rapport entre ces deux vitesses est la *mobilité* noté  $\beta$ .

$$\beta = \frac{U_d}{U_f} = \frac{\text{vitesse de la goutte}}{\text{vitesse du fluide porteur}} \quad (1)$$

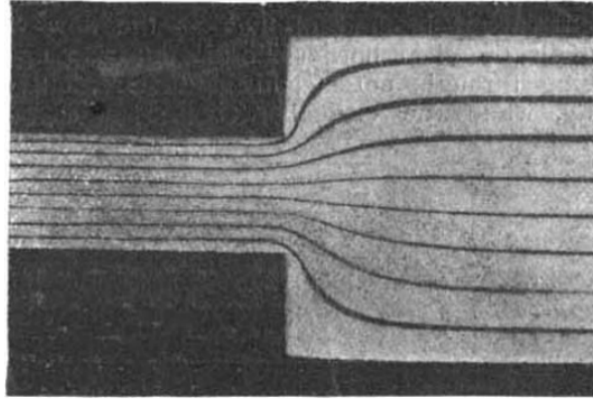


FIG. 14.—Sudden enlargement (thin sheet).

It may be well to remark that all the figures in this article are actual reproductions of photographs of flowing water, which have all been projected on a screen by means of a lantern at the two recent meetings of the Institution of Naval Architects. H. S. HELE-SHAW.

FIGURE 0.1 – Figure tirée de l'article *Flow of water* [HS98]. Élargissement soudain dans une cellule de Hele-Shaw.

Enfin, le troisième axe de cet intitulé est la *chimie des surfactants*. Nous allons voir, notamment au cours du premier chapitre l'impact du fait que ces surfactants s'absorbent à une interface, modifiant ainsi localement la tension de surface. Dès lors, ils s'opposent plus ou moins fortement aux extensions de celle-ci. Ainsi, la condition aux limite hydrodynamique peut varier de celle sans surfactants à une interface incompressible. D'autre part, la nature *non-mouillante* de la goutte implique l'existence de films de lubrification de part et d'autre de la goutte. Les efforts visqueux dans ce film sont renforcés par son épaisseur très faible, de l'ordre de la dizaine de nanomètre. On comprend alors que la détermination de la vitesse d'une goutte en environnement confiné est complexe, puisqu'elle suppose de sonder et de modéliser la topographie de ces films pour en extraire les propriétés de son interface afin de rendre compte de la friction visqueuse localisée de part et d'autre de la goutte.

De manière globale cette étude s'inscrit dans la lignée des travaux consacrés à la compréhension de la dynamique des films de lubrification/mouillage au sein d'un écoulement biphasique (cf. dépôt de film mince de Landau-Levich [LL88]).

Ce manuscrit se décompose en 6 chapitres. Le premier introduit les concepts principaux d'hydrodynamique et de physico-chimie utilisés au cours de ces travaux afin d'éclairer les différentes problématiques abordées dans ce travail.

Le chapitre 2 est consacré aux caractéristiques techniques de notre expérience microfluidique. L'idée est d'expliquer comment les gouttes sont fabriquées, et comment nous sommes sûrs que les vitesses du problème  $U_f$  et  $U_d$  sont correctement mesurées.

Le chapitre 3 s'intéresse aux résultats expérimentaux sur la dynamique de gouttes. Y sont présentés la mobilité d'une goutte pour différents régimes de vitesses et pour différentes physico-chimies. Nous montrons que pour une goutte d'huile poussée par une phase aqueuse dans laquelle se trouvent des tensioactifs, la vitesse de la goutte peut croître ou décroître avec le rayon suivant la longueur de la chaîne carbonée du tensioactif utilisé. C'est le résultat central de ce manuscrit.

Le chapitre 4 quant à lui, présente une méthode interférométrique pour mesurer l'épaisseur des films de lubrification des gouttes. Le montage et la validation du dispositif sont présentés, d'abord sur un objet calibré (une bille de verre optique), puis sur un objet non calibré : une de nos gouttes statiques qui a drainé une nuit entière.

Le chapitre 5 montre l'utilisation de ce dispositif pour mesurer des épaisseurs de films de lubrification des gouttes en dynamique. La topographie des films est reconstruite. Nous comparons alors nos épaisseurs de film plats à des lois d'échelles connues. Nous comparons également les profils d'épaisseurs à des modèles de reconstructions existants.

Pour finir, le chapitre 6 présente une discussion autour d'un modèle que nous proposons pour expliquer les résultats obtenus au chapitre 3.



## CONCEPTS GÉNÉRAUX ET ÉTAT DE L'ART

### 1.1 Mécanique des fluides

#### 1.1.1 Équation de Navier-Stokes

La mécanique des fluides est la science des écoulements de fluides. L'idée est de venir, par des considérations physiques, décrire les écoulements et propriétés d'un ou plusieurs fluides évoluant dans leur environnement. Ce domaine extrêmement large revient à décrire une partie importante du monde qui nous entoure et ce à plusieurs échelles. De la nage de bactéries aux globules rouges dans notre réseau sanguin, de l'écoulement de sève dans les arbres, aux rivières qui façonnent la montagne la mécanique des fluides s'intéresse à toutes sortes d'échelles. Le point commun entre toutes ces observations (et bien d'autres) est qu'elles peuvent être décrites par les équations de Navier-Stokes (de l'ingénieur français Henri Navier et le mathématicien et physicien britannique George Gabriel Stokes) [Nav26, S<sup>+</sup>51] :

$$\rho \left( \frac{\partial v}{\partial t} + (v \cdot \mathbf{grad} v) \right) = -\mathbf{grad} p + \eta \Delta v + \rho \vec{f} \quad (1.1)$$

où  $\rho$  est la masse volumique du fluide,  $v$  le champ vectoriel de vitesse,  $p$  le champ scalaire de pression,  $t$  le temps,  $\eta$  la viscosité dynamique du fluide considéré et  $f$  l'ensemble des efforts extérieurs par unité de masse s'appliquant à une particule de fluide. Ce travail porte sur **des écoulements incompressibles et biphases de fluides newtoniens**. Ce qui implique deux choses : la première est que l'on considère la viscosité dynamique du fluide comme constante au cours de notre expérience, la seconde est que l'incompressibilité des fluides implique que :

$$\mathbf{div}(v) = 0$$

Deux termes de l'équation 1.1 nous intéressent. Le terme  $\rho (v \cdot \mathbf{grad} v)$  représente les effets inertiels de l'écoulement du fluide, le terme  $\eta \Delta v$  quant à lui représente les efforts dus à la viscosité de fluide. Le rapport entre ces deux termes est appelé le nombre de Reynolds, noté  $R_e$ .

$$R_e = \frac{\rho L v}{\eta} \quad (1.2)$$



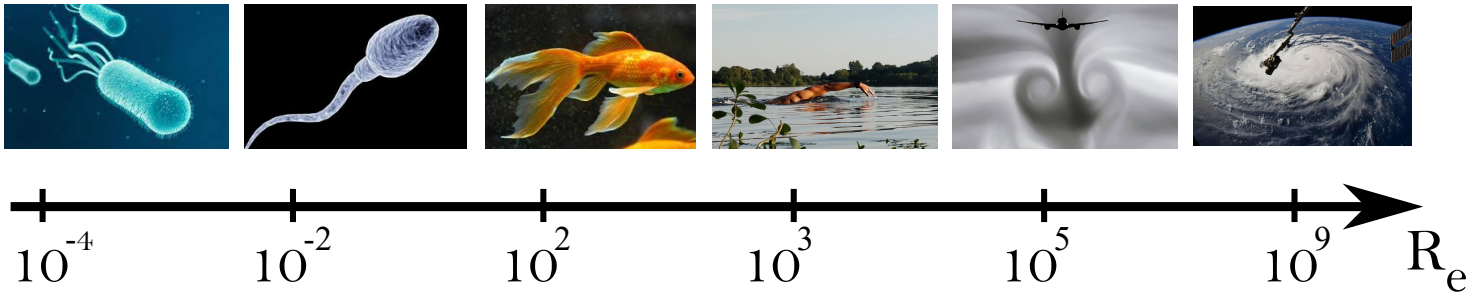


FIGURE 1.1 – Schéma des différents ordre de grandeur de nombre de Reynolds.

où  $L$  est une longueur caractéristique de l'écoulement.  $Re \ll 1$  implique que les effets visqueux sont dominants devant les effets inertiels. On appelle cela un régime de Stokes. Figure 1.1 donne des exemples d'écoulement à différents nombres de Reynolds. Elle montre bien l'ubiquité des relations de Navier-Stokes qui permettent de décrire des phénomènes allant du *très petit* au *très grand*.

Deuxièmement, la composante biphasique de notre étude signifie que nous allons prendre en compte le couplage entre deux fluides non-miscibles et leurs interactions. La présence de ces deux phases implique la notion d'interface déformable qui oblige l'étude de conditions aux limites à son abord et donc la prise en compte de différents effets de surface.

## 1.2 Effets de surface

### 1.2.1 Tension de surface et capillarité

La capillarité est le phénomène d'interaction qui se produit aux interfaces entre deux liquides non miscibles. La tension superficielle (ou tension de surface), que l'on note  $\gamma$  est une propriété physico-chimique de l'interface : elle dépend des deux phases mises en jeu. Elle quantifie le coût énergétique de création d'une interface. Homogène à une énergie par unité de surface elle s'exprime en mN/m. Le liquide qui remonte dans le morceau de sucre, la bulle de savon qui demeure sphérique, le ménisque qui se forme dans le tube à essai ou encore l'insecte qui peut marcher sur l'eau, sont des manifestations de la présence de cette force.

Lorsque l'on cherche à produire de l'interface entre deux fluides, il faut fournir de l'énergie au système. C'est le principe d'une émulsion (mayonnaise, moutarde ou n'importe quelle sauce montée à l'huile) ou d'une mousse (en battant des œufs en neige par exemple).

Prenons un cas élémentaire. Pour augmenter une surface d'aire  $A$  d'une quantité élémentaire  $dA$  il faut fournir un travail  $dW$ . Le rapport entre ces deux grandeurs, c'est-à-dire la quantité élémentaire d'énergie à fournir à une interface pour l'augmenter d'une unité de surface est la définition de la tension de surface.

$$dW = \gamma dA \quad (1.3)$$

Cette relation implique que chaque augmentation d'interface implique un coût en énergie. Réciproquement, une interface à l'équilibre va vouloir minimiser son énergie et donc adopter la forme qui minimise son aire. Cela explique par exemple pourquoi les bulles de savon sont sphériques.

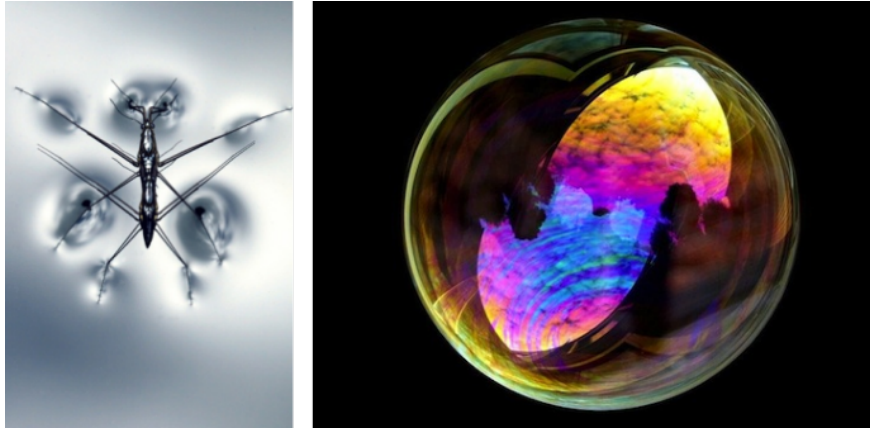


FIGURE 1.2 – *Gauche* : Le gerris est un petit insecte aquatique capable de marcher sur l'eau. Ses pattes hydrophobes induisent une déformation de l'interface sans la percer. Cette déformation, par la tension de surface, implique une force en retour sur l'insecte lui permettant de compenser son poids et de ne pas couler. *Droite* : Une bulle de savon. La tension de surface tend à minimiser la surface de l'interface, résultant en une bulle parfaitement sphérique.

### 1.2.2 Mouillage

Le mouillage est l'étude de l'étalement d'un liquide déposé sur un substrat (solide ou liquide). Il permet de comprendre et d'exprimer, voire de quantifier, l'étalement d'une goutte sur une surface de verre. Lorsque la goutte a une affinité particulière avec un substrat on dit qu'elle mouille le substrat : elle va s'étaler. À l'inverse, s'il y a très peu d'affinité entre les deux elle ne le mouille pas : elle ne s'étalera pas et tendra à garder la forme la plus sphérique possible. Pour différencier ces cas, on définit le paramètre d'étalement  $S$  comme la différence entre l'énergie de surface du substrat sec et celle du substrat mouillé :

$$S = \gamma_{SG} - \gamma_{SL} - \gamma_{LG} \quad (1.4)$$

où  $\gamma_{SG}$ ,  $\gamma_{SL}$ ,  $\gamma_{LG}$  sont respectivement les tensions superficielles pour les couples solide-gaz, solide-liquide et liquide-gaz. Gaz qui très souvent est l'air ambiant. Si  $S > 0$ , le mouillage est total, sinon il est partiel. La tension de surface est définie pour tout type d'interface, de manière générique. Lorsque l'on note  $\gamma$  on parle de la tension de surface de l'espèce considérée dans l'air mais cela vaut pour toute interface : entre deux liquides, entre un liquide et un gaz, un solide etc...

### 1.2.3 Loi de Young-Laplace

La tension de surface tend à minimiser l'interface et à assurer une courbure moyenne uniforme. Pour contrebalancer cette force, il existe à l'équilibre un saut de pression de part et d'autre de l'interface. Pour une interface composée de deux fluides 1 et 2, gaz ou liquides, la différence de pression est donnée par l'équation de *Young-Laplace* :

$$P_1 - P_2 = 2\gamma C = \gamma \left( \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (1.5)$$

où  $C$  est la courbure moyenne que l'on exprime en fonction de rayons de courbures principaux de l'interface  $R_1$  et  $R_2$ . Ces rayons de courbures sont des grandeurs algébriques dont le signe dépend d'où se trouve le centre de courbure : si c'est du côté 1 c'est positif, sinon c'est négatif.

On peut retrouver très simplement cette loi théoriquement en considérant une bulle d'air dans un bain d'eau. Un schéma est présenté Figure 1.3.

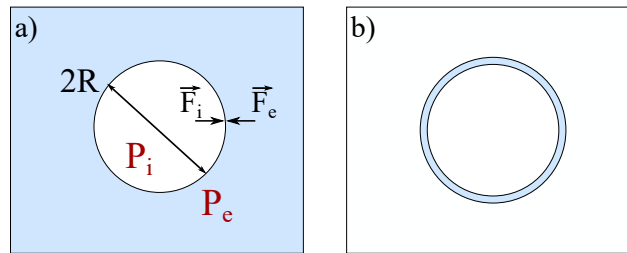


FIGURE 1.3 – a) Schéma d'une bulle d'air dans un bain d'eau.  $P_i$  et  $P_e$  sont les pressions à l'intérieur et à l'extérieur de la bulle.  $\vec{F}_i$  et  $\vec{F}_e$  sont respectivement les forces de pressions internes et externes induites par la surpression.  $R$  est le rayon de la bulle. b) Schéma dans le cas d'une bulle de savon avec donc deux interfaces eau/air.

Si le rayon  $R$  de la bulle augmente de  $dR$ , son volume augmente de la quantité  $4\pi R^2 dR$ .

Le travail total des forces de pression extérieure et intérieure compense celui des forces de tension superficielle  $\gamma dA$  où  $dA$  est la variation d'aire engendrée. On peut écrire alors :

$$\delta W = -P_e(4\pi R^2)dR + P_i(4\pi R^2)dR = (P_i - P_e)(4\pi R^2)dR \quad (1.6)$$

En remplaçant par l'expression de la variation  $dA$  de la surface de la bulle on retrouve la loi de Laplace :

$$\Delta P = P_i - P_e = \frac{2\gamma}{R} \quad (1.7)$$

Cette surpression vaut par exemple 1 bar dans le cas d'une bulle d'air typique de rayon  $R = 1 \mu\text{m}$ . Celle dans une bulle de savon, voir Figure 1.3 b), est deux fois plus importante du fait de la présence de deux interfaces eau/air.

$$\Delta P = P_i - P_e = \frac{4\gamma}{R} \quad (1.8)$$

Cette surpression explique par exemple que dans une émulsion d'huile dans l'eau, les petites gouttes disparaissent au profit des grandes.

La tension de surface peut ainsi être vue comme l'affinité d'une espèce pour une autre. Une grande tension de surface implique peu d'affinité et donc un mélange plus difficile voire impossible puisqu'il faut créer une grande quantité d'interface et cela a de fait, un grand coût énergétique.

#### 1.2.4 Surfactants

Un moyen donc pour stabiliser mousses ou émulsions est d'abaisser la tension de surface. Pour ce faire on passe par des agents intermédiaires, qui viennent se mettre aux interfaces pour abaisser  $\gamma$ . Agents que l'on appelle surfactants ou tensioactifs. De tels agents doivent présenter une affinité particulière pour les interfaces pour venir s'y adsorber : ce sont donc des espèces *amphiphiles* possédant deux parties d'affinités chimiques distinctes. Dans le cas des interfaces eau/air ou eau/huile les agents stabilisants couramment utilisés sont des molécules comportant une tête polaire, et donc hydrophile, et une queue, une chaîne carbonée qui elle est hydrophobe. La présence de telles molécules

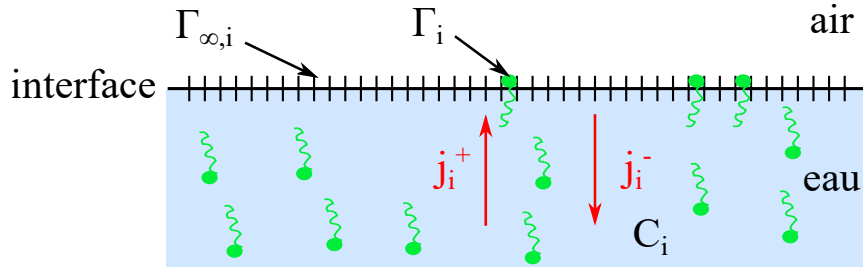


FIGURE 1.4 – Schéma d'une interface entre deux phases, ici l'eau et l'air. On schématise ici les sites disponibles ainsi que les sites occupés à l'interface par les tensioactifs.

à une interface fait chuter la valeur de la tension de surface, de là elles tirent leur nom *tensioactifs*. Notons que d'autres objets, comme des nanoparticules, des polymères ou encore des protéines peuvent également présenter des propriétés tensioactives.

### Tensioactifs : cinétique de sorption et modèle de Langmuir

Le peuplement de l'interface par les tensioactifs n'est pas instantané et peut même être très long en fonction de l'affinité du tensioactif avec les milieux considérés. Ainsi la concentration en tensioactifs à l'interface dépend à la fois de la dynamique de diffusion du tensioactif en volume dans la phase dans laquelle il évolue, mais également de sa propension à aller à l'interface. Le modèle basé sur le schéma présenté Figure 1.4 est un modèle cinétique de la sorption de tensioactif : le modèle de Langmuir.

On veut caractériser la cinétique d'adsorption et désorption d'un tensioactif  $i$  à une interface. On note  $\Gamma_{\infty,i}$  le nombre maximal de sites disponibles à l'interface. On note  $\Gamma_i$  le nombre de sites occupés par l'espèce  $i$  à l'interface. Enfin, on note  $C_i$  la concentration volumique de l'espèce en solution.

On considère les flux d'adsorption et de désorption des tensioactifs notés respectivement  $j_i^+$  et  $j_i^-$ .

$$\begin{cases} j_i^+ = k_i^+ C_i \left( \Gamma_{\infty,i} - \sum_j \frac{\Gamma_{\infty,i}}{\Gamma_{\infty,j}} \Gamma_j \right) \\ j_i^- = k_i^- \Gamma_i \end{cases}$$

Le terme en  $\sum_j$  correspond à la compensation à ajouter au flux d'adsorption puisque les sites peuvent être occupés par d'autres espèces à l'interface  $j$ , réduisant ainsi la quantité de tensioactif  $i$  à y aller. On note alors que la désorption dudit tensioactif ne dépend dans ce modèle que de ce qui se passe à l'interface alors que la dynamique de sorption dépend également de la concentration en volume du tensioactif.

Avec  $k_i^-$  et  $k_i^+$  qui sont les constantes de vitesses de la réaction. Elles caractérisent le temps que met une molécule tensioactive à s'adsorber et/ou se désorber d'une interface.

À l'équilibre on a égalité entre les flux d'adsorption et de désorption. Ce qui donne :

$$\Gamma_i = \Gamma_{\infty,i} \frac{\frac{C_i k_i^-}{k_i^+}}{1 + \sum_j \frac{C_j k_j^-}{k_j^+}} \quad (1.9)$$

Cela nous donne une relation entre l'excès de surface d'une espèce et les concentrations en volume ainsi que les excès de surface des autres espèces présentes, mais également avec les caractéristiques cinétiques de chacune.

En faisant l'hypothèse que la tension de surface des deux fluides ne dépende que de la solution, et non pas de l'historique de la solution c'est-à-dire en écrivant :

$$\partial_i \partial_j \gamma = \partial_j \partial_i \gamma \quad (1.10)$$

Cela impose que le nombre de sites disponibles est le même pour toutes les espèces et dépend de l'interface.

$$\Gamma_{\infty,i} = \Gamma_{\infty,j} = \Gamma_{\infty} \quad (1.11)$$

On peut alors écrire la relation décrivant la tension de surface en fonction des constantes de vitesses, de la concentration en volume et du nombre de sites disponibles : le modèle de Langmuir.

$$\gamma = \gamma_0 - RT\Gamma_{\infty} \ln \left( 1 + \sum_k \frac{C_k k_k^-}{k_k^+} \right) \quad (1.12)$$

où  $T$  est la température,  $\gamma_0$  la tension superficielle à l'état initial et  $R$  la constante des gaz parfaits. On discrimine alors les tensioactifs en fonction de leur cinétique. Ils adoptent un comportement soluble ou insoluble suivant le rapport entre leur capacité à s'adsorber et se désorber de l'interface.

Si le temps d'adsorption est très long, on considère que la molécule n'a pas d'affinité particulière à l'interface; elle n'a pas d'effet tensioactif.

Si le temps d'adsorption est du même ordre que le temps de désorption et que ces deux temps sont courts alors le tensioactif est considéré comme soluble : il y a échange permanent entre volume et interface.

Enfin si la désorption est lente devant l'adsorption du tensioactif, c'est que celui-ci préfère rester à l'interface; c'est un comportement insoluble.

Dans ces travaux nous nous sommes intéressés à la dynamique de gouttes poussées par des solutions dans lesquelles se trouvaient des tensioactifs solubles. Nous détaillerons leur nature exacte au fur et à mesure du récit.

### **Concentration micellaire critique**

L'ajout de tensioactifs en volume fait diminuer la tension superficielle. Cependant lorsque la concentration en tensioactifs dans la solution a atteint une concentration critique (appelée concentration micellaire critique, ou CMC), la tension de surface sature. L'interface est complètement couverte de tensioactifs : la tension superficielle est minimale. Un exemple de tracé de la tension superficielle de l'eau et de l'air en fonction de la concentration en tensioactifs dilués dans la phase aqueuse est donné Figure 1.5. L'ajout de tensioactifs au-delà de la CMC amène à la formation de structures énergétiquement favorables appelées micelles dans le cas de tensioactifs solubles [LAR95].

Cette concentration micellaire critique dépend des caractéristiques du surfactant et de l'affinité qu'il a avec le milieu dans lequel il évolue, de la température ou encore de la présence d'autres espèces (co-surfactants, ions).

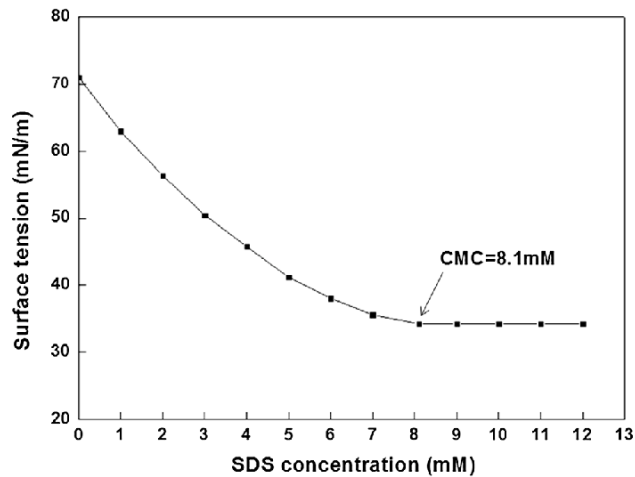


FIGURE 1.5 – Courbe de la tension superficielle entre l’air et une solution aqueuse de sodium dodecyl sulfate ou SDS. À mesure que la concentration en tensioactif  $c$  augmente, la tension superficielle  $\gamma$  diminue jusqu’à obtenir une tension superficielle constante à la CMC et au-delà. Extrait de [ZM14].

Au-delà de cette concentration, les surfactants s’ordonnent pour limiter leur contact avec la phase non désirée et forment des structures stables : des micelles.

Les tensioactifs utilisés dans ces travaux ont des cinétiques de sorption rapides. À l’équilibre thermodynamique, on peut le trouver soit dans la phase liquide, soit à l’interface. Cependant, suivant la dynamique de l’interface (dans des cas de compression d’interface par exemple) il est possible, si cette sollicitation est rapide devant la dynamique de sorption du tensioactif de générer un gradient de concentration surfacique et donc une contrainte interfaciale. C’est le point détaillé juste après.

### Dynamique d’adsorption et de désorption des tensioactifs solubles

Pour nos tensioactifs solubles dans l’eau, leur affinité pour les interfaces est régie par leur cinétique d’adsorption et désorption (caractérisée par les temps d’adsorption et désorption des tensioactifs). À l’équilibre thermodynamique, c’est-à-dire  $C$  et  $\Gamma$  sont constantes, les tensioactifs sont en perpétuel mouvement (il y a des échanges en permanence entre la surface et le volume en dessous). Maintenant, si la surface est en mouvement (avec un temps caractéristique de déplacement de l’interface  $\tau_{interface}$ ) on peut distinguer deux cas. Celui où la dynamique d’interface est plus rapide que la dynamique de sorption, et celui où la dynamique de sorption est plus rapide.

- $\tau_{sorption} \ll \tau_{interface}$  : on ne génère pas de gradient de concentration local.
- $\tau_{sorption} \gg \tau_{interface}$  : on génère un gradient de concentration local.

Ainsi, le comportement du tensioactif va dépendre de la dynamique de l’objet et de l’interface que l’on observe. Deux cas sont présentés Figure 1.6.

On peut différencier ainsi les tensioactifs en fonction de leur rapidité à procéder aux échanges avec l’interface et à équilibrer leurs concentrations sous la contrainte. On dit d’un tensioactif qu’il est **soluble**, lorsqu’il va s’adsorber et se désorber de l’interface avec un temps caractéristique plus faible que le temps caractéristique de déplacement de l’interface. La tension superficielle peut être considérée comme uniforme et constante le long de l’interface.

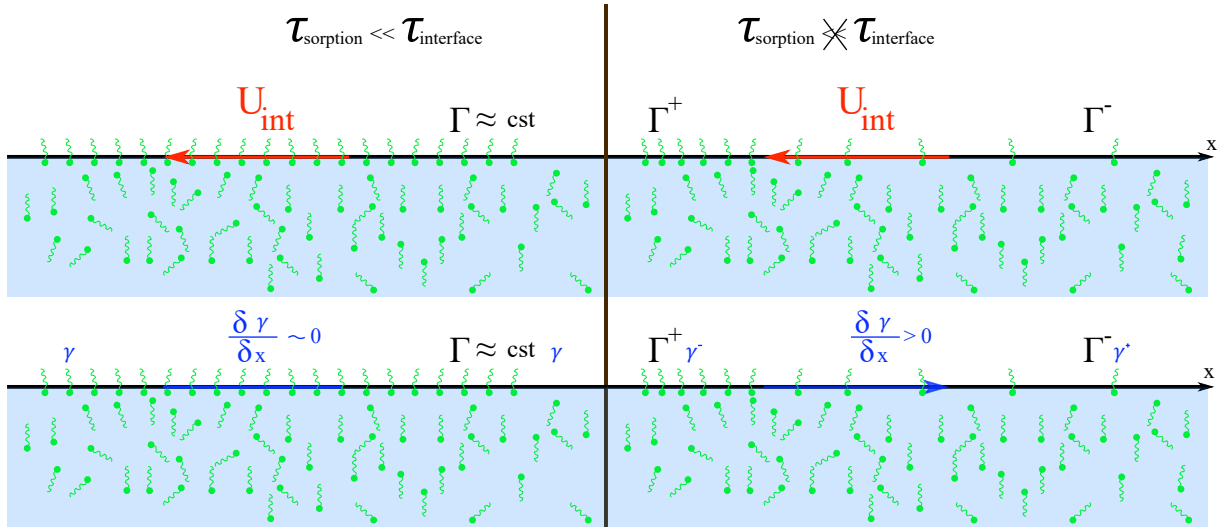


FIGURE 1.6 – Schéma de deux interfaces soumises à une vitesse interfaciale. Dans un cas où les tensioactifs sont très solubles (gauche), c'est-à-dire que leur cinétique de sorption est plus rapide que la dynamique de l'interface. Dans le second (droite) ce n'est plus le cas. On observe alors une inhomogénéité de la concentration surfactante en surfactant, impliquant un gradient de tension superficielle.

Dans le cas où le tensioactif est **peu soluble** c'est-à-dire que sa cinétique de sorption est plus lente que les temps de sollicitations de l'interface on obtient un gradient de tension de surface à l'interface qui génère des contraintes interfaciales qu'on appelle également les **contraintes de Marangoni**.

### 1.2.5 Effet Marangoni

L'effet Marangoni est une contrainte interfaciale résultant d'un gradient de tension de surface. Les contraintes de Marangoni s'opposent à ces inhomogénéités et génèrent donc un écoulement de surface qui, par transfert de quantité de mouvement induit un écoulement en volume.

$$\underline{\underline{\sigma_{Ma}}} = \mathbf{grad}(\gamma) \quad (1.13)$$

Dans le cas unidirectionnel comme sur Figure 1.7, la contrainte de Marangoni s'écrit :

$$\sigma_{Ma} = \frac{\partial \gamma}{\partial x} \quad (1.14)$$

Ces gradients de tension de surface peuvent survenir dans différentes configurations : par effet thermique [SN01, Dav87] ou simplement par advection des surfactants à une interface [CMS97, CD12].

Les tensioactifs que nous avons choisis pour mener l'étude narrée dans ce manuscrit sont des tensioactifs ioniques composés d'une tête polaire et d'une chaîne carbonée. Leur temps classique de sorption est de l'ordre de 1 ms [FJ92a, FJ92b]. Le temps caractéristique de nos gouttes, nous le verrons, est de l'ordre de la vingtaine de ms. Nos tensioactifs peuvent être considérés comme relativement peu solubles d'un point de vue cinétique : ils peuvent générer ces contraintes interfaciales de Marangoni.

### 1.2.6 Microfluidique

Le travail de recherche exploré dans ce manuscrit concerne la mécanique des fluides à l'échelle micrométrique. Lorsque l'on descend à ces échelles, les propriétés physiques des écoulements sont

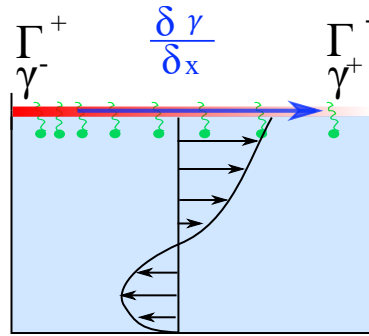


FIGURE 1.7 – Schéma représentant une contrainte Marangoni générée par un gradient de concentration surfacique de tensioactifs. Adapté de [Man19].

modifiées. Ce domaine de recherche est appelé la microfluidique. Dès lors, les forces de surfaces deviennent prépondérantes devant les forces volumiques. Le rapport surface sur volume descend à mesure que l'on décroît l'échelle caractéristique.

$$\frac{\text{Surface}}{\text{Volume}} = \frac{4\pi R^2}{\frac{4}{3}\pi R^3} = \frac{3}{R} \quad (1.15)$$

Dans le cas de la microfluidique, l'échelle caractéristique est micrométrique ce qui assure  $Re \ll 1$ .

On obtient alors pour un fluide newtonien incompressible en régime permanent et à faible nombre de Reynolds, l'équation de Stokes :

$$-\mathbf{grad}p + \eta\Delta v + \rho f = 0 \quad (1.16)$$

Cette équation, contrairement à l'équation 1.1, est linéaire. Cela implique que les solutions ont des propriétés intéressantes comme l'unicité de la solution pour des conditions aux limites données, mais également l'additivité et la réversibilité cinématique des solutions.

Cette équation est valide pour les écoulements à petite échelle comme la nage de bactérie, les écoulements en milieux poreux ou la microfluidique mais aussi pour des fluides très visqueux ou à de faibles vitesses comme l'écoulement du miel ou des glaciers. La géométrie particulière de certains écoulements permet de simplifier encore cette équation et d'en donner des solutions analytiques simples.

Pour un écoulement biphasique, ce qui est notre cas avec l'étude d'une goutte poussée par une phase externe, l'équation de Stokes est valable dans chacune des deux phases. Ainsi, pour déterminer le champ des vitesses au sein de chaque phase, il faut connaître les conditions aux limites cinématique et dynamique au niveau des parois solides mais **aussi et surtout au niveau l'interface séparant les deux fluides**.

La condition cinématique aux parois solides et à l'interface se traduisent respectivement par l'égalité entre la vitesse du fluide et celle de la paroi, et par l'égalité des vitesses au sein de chaque phase au niveau de l'interface. La condition limite dynamique à l'interface se traduit par la continuité des contraintes normales et tangentielles. Cette dernière condition peut être modifiée à la fois par les caractéristiques intrinsèques aux fluides utilisés comme la viscosité, mais également la présence de molécules tensioactives qui, venant à l'interface, modifient les propriétés locales de celle-ci.



Travailler avec des systèmes microfluidiques implique de prendre en compte tous les effets de surfaces que nous avons vus jusqu'ici.

### 1.3 Dynamique d'objets confinés dans un capillaire

Comprendre la dynamique d'une bulle ou d'une goutte non mouillante lorsqu'elle est poussée dans un environnement confiné est un problème étudié depuis les années 1950. Comme évoqué plus haut, les premiers travaux sur le sujet sont dus à Taylor & Saffman [TS59]. Pour modéliser une bulle d'air poussée par de l'eau dans une cellule de Hele-Shaw, ils assimilent cette dernière à un cylindre mouillant dépourvu de ménisque et de film de lubrification et déduisent qu'en régime stationnaire une bulle adopte une forme circulaire et se déplace à une vitesse  $U_d = 2U_f$  où  $U_f$  est la vitesse du liquide environnant poussant la bulle. Cette étude négligeait la présence d'un film de lubrification de part et d'autre de la bulle.

#### 1.3.1 Nombre capillaire

L'étude de dépôt de film lubrification a été faite dans des configurations similaires comme le tirage de plaque par Derjaguin [Der43] ou Landau & Levich [LL88]. Ces travaux lient l'épaisseur du film déposé avec un nombre adimensionné caractérisant leur expérience : le nombre capillaire  $C_a$ . Ce nombre est défini comme le ratio des forces visqueuses sur les efforts de tension superficielle :

$$C_a = \frac{\text{efforts visqueux}}{\text{efforts de tension superficielle}} = \frac{\eta U}{\gamma} \quad (1.17)$$

où  $\eta$  est la viscosité du fluide considérée,  $\gamma$  la tension superficielle et  $U$  la vitesse caractéristique du système comme par exemple la vitesse de la plaque dans le cas de Landau & Levich. Dans notre cas d'une goutte/bulle se déplaçant poussée par une phase externe on prendra par convention la vitesse de l'objet comme vitesse de référence.

La présence de films de lubrification et leur influence sur la vitesse de la bulle ont d'abord été étudiés dans le cas d'une bulle se déplaçant dans un tube capillaire c'est à dire une géométrie axisymétrique. Ce sont les travaux de Bretherton [Bre61] que nous détaillons ci-dessous.

#### 1.3.2 Bulle dans un capillaire : notion de ménisques

Dans [Bre61], une bulle d'air est confinée dans une géométrie axisymétrique, un capillaire de rayon  $r$  et transportée par un fluide visqueux. La Figure 1.18 montre un schéma du dispositif.

L'idée de Bretherton est de diviser le profil de l'interface en trois grandes régions : deux zones où la courbure de l'interface est constante, à savoir le *ménisque statique* (zone III), et le *film plat* (zone I). La zone II, appelée *ménisque dynamique* en référence aux travaux de Landau-Levich [LL88] est la zone de raccordement d'une courbure à l'autre.

Passer d'une courbure à une autre a un coût énergétique. En venant équilibrer l'entraînement visqueux et la succion capillaire dans la zone de raccordement on détermine à la fois que le ménisque dynamique est le siège d'une dissipation visqueuse, mais également une relation directe entre l'épaisseur du film de lubrification déposé et les paramètres physiques de l'expérience. Pour ce faire, il faut résoudre les équations de Stokes (i.e. en régime permanent, visqueux et sans forces extérieures) dans

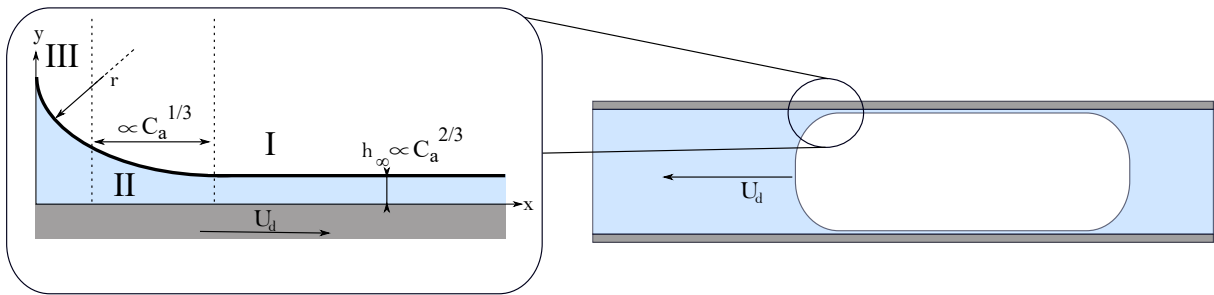


FIGURE 1.8 – (Droite) Schéma de l'expérience de Bretherton vue de côté. Le gaz est coloré en blanc, la phase aqueuse en bleu. (Gauche) Schéma du profil de la bulle dans le ménisque avant. On retrouve la zone *I*, le film plat, la zone *II*, le ménisque dynamique et la zone *III*, le ménisque statique. Les lois d'échelles sont celles déterminées par Bretherton [Bre61].

l'approximation de lubrification qui consiste à négliger les variations des paramètres avec la pente (pentes faibles, et dérivées seulement selon  $y$ ).

Les conditions aux limites ici pour résoudre le problème sont une condition de contrainte tangentielle nulle à l'interface entre les deux fluides et de non-glissement à l'interface fluide-solide. Par la conservation de la masse, Bretherton détermine :

$$h_{\infty}^{Breth} = P \cdot r (3C_a)^{2/3} \quad (1.18)$$

avec  $P = 0.643$  dans le cadre d'une bulle dans la géométrie axisymétrique du capillaire. Cette modélisation n'est valide que dans le cadre de certaines hypothèses comme l'approximation de lubrification et n'est valide que pour des nombres capillaires relativement faibles  $C_a < 5 \cdot 10^{-3}$  [KGM14]. Dans notre étude nous n'irons pas à des nombres capillaires aussi élevés car nous nous sommes imposés certains critères notamment au niveau de la déformation des gouttes.

Ce profil d'épaisseur est obtenu numériquement en résolvant le modèle détaillé dans le Chapitre 5.

Ce calcul théorique de Bretherton montre plusieurs choses :

- La connaissance de l'épaisseur locale du film nous renseigne sur les forces capillaires à l'œuvre dans le film et donc sur la dissipation du système.
- Le profil n'est pas symétrique entre les ménisques avant et arrière. Par une conservation de la masse, à l'arrière il y a une inversion de la courbure pour respecter l'équilibre des forces ce qu'on appellera dans la suite un *bump* ou une oscillation, voir Figure 1.9.
- L'auteur montre également la présence d'au moins deux points de stagnation situés sur l'interface : un divergent à l'avant, où l'interface est créée, un convergent à l'arrière où elle est détruite.

Cette équation 1.18 est valable pour de petits nombre capillaires et si on prend la limite basse on trouve théoriquement une épaisseur qui tend vers 0 et donc vers le mouillage de la bulle avec la paroi. Cette limite basse ne tient pas compte d'un effet stabilisant ou déstabilisant des films de lubrification : la pression de disjonction.

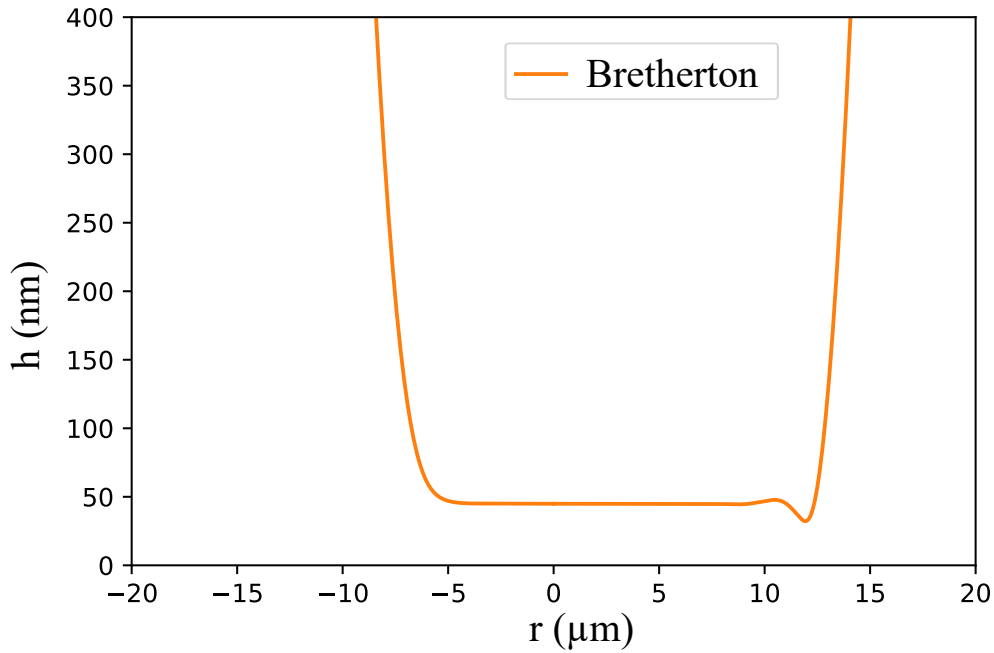


FIGURE 1.9 – Profil d'épaisseur théorique de Bretherton pour un nombre capillaire  $C_a = 5 \cdot 10^{-4}$ . L'avant de la bulle est à gauche, l'arrière à droite. On observe le ménisque avant, le film plat et l'oscillation à l'arrière au niveau du ménisque dynamique arrière. Profil obtenu par résolution numérique du modèle par Adrien Gans, post-doctorant dans l'équipe.

### 1.3.3 Pression de disjonction

Pression de disjonction est un terme utilisé pour la première fois par Derjaguin [Der43] pour décrire la pression qui apparaît dans un film de liquide plat confiné entre deux plans. Cette surpression vient des interactions moléculaires entre les deux interfaces au travers du film. Elle traduit le fait que les interfaces se voient et devient donc d'autant plus importante que l'épaisseur du film est faible. Typiquement, pour un film d'eau présent sous des gouttes d'huiles elle devient importante sous une épaisseur de 100 nm.

La pression de disjonction peut être vue comme l'énergie nécessaire pour augmenter l'épaisseur du film à aire, température et pression constantes. Notons qu'ainsi définie la pression de disjonction peut être positive et être ainsi stabilisante pour le film, ou négative et donc déstabilisante.

La théorie DLVO (Derjaguin, Landau, Verwey et Overbeek) [DL41, VO55] propose de tenir compte de trois termes additifs dans cette pression de disjonction : les interactions stériques, les interactions de type van der Waals, et les interactions électrostatiques. Les premières sont des interactions de type cœur dur par exemple entre les têtes de surfactants, elles sont répulsives. Les secondes, celles de van der Waals, sont de type interactions entre dipôles électriques induits. Suivant leur signe, elles peuvent déstabiliser ou stabiliser les films. Enfin, il y a les interactions électrostatiques. Elles sont attractives ou répulsives suivant les charges mises en jeu. Elles ont une portée de quelques longueurs de Debye  $\lambda_D$  avec :

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_m k_B T}{8\pi n^0 e^2}} \sim C^{-1/2} \quad (1.19)$$

où  $n^0$  est la densité ionique,  $e$  la charge élémentaire,  $\epsilon_m$  la constante diélectrique du milieu,  $T$  la température,  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $C$  est la concentration en électrolytes (mol/L). Dans notre cas de gouttes d'huile poussées par une solution aqueuse dans une cellule de Hele-Shaw, les parois du système microfluidique sont chargées négativement dans l'eau. Ainsi, le caractère stabilisant ou non de la pression de disjonction dépend de la charge des tensioactifs que nous utilisons. Il est à noter que l'on peut réduire l'amplitude et la portée de ces interactions en réduisant ou en augmentant la concentration en électrolytes qui apparaît bien au dénominateur de la longueur de Debye, par exemple en rajoutant du sel.

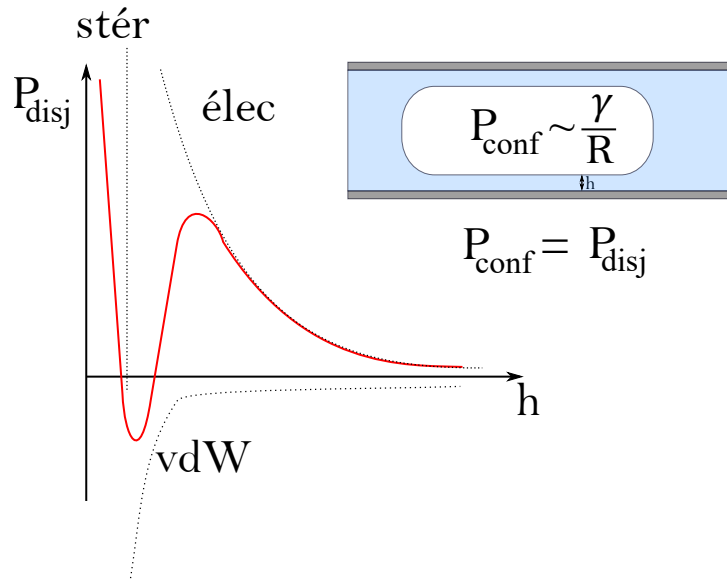


FIGURE 1.10 – Schéma d'une isotherme de pression de disjonction. On note ici ses différentes composantes : stériques *ster*, électrostatiques *élec* et de van der Waals *vdW*. L'encart montre qu'une pression de confinement imposée (par la hauteur d'un canal microfluidique par exemple) mène à l'existence de plusieurs épaisseurs stables ou instables suivant que l'on se trouve dans un régime dominé par l'une ou l'autre des interactions. Adapté de [HVM<sup>+</sup>17].

### 1.3.4 Bulle dans un capillaire : influence des surfactants

La théorie de Bretherton est difficile à valider expérimentalement en présence de surfactants. Que ce soit pour de faibles concentrations [RC90] ou pour des concentrations plus importantes [SBB95] les films de lubrification sont plus épais que la théorie de Bretherton. Les surfactants, en effet, peuvent changer les conditions aux limites à l'interface (comme montré plus en amont avec la solutocapillarité entre autres) en changeant la rhéologie à l'interface [SGMS02][Can13].

Les épaisseurs sont comprises entre deux cas limites : celui de Bretherton comme limite inférieure, et celui où la condition à l'interface est celle où la vitesse de l'interface dans le référentiel du laboratoire est nulle. Ce cas est appelé *Rolling* car il peut être vu comme du roulement sans glissement c'est-à-dire une chenille de blindé ou le tirage de la peau de lait (et donc pas d'écoulement dans le film). Un autre cas limite de condition à l'interface est celui du *Sliding* qui correspond à une vitesse interfaciale égale à celle de la goutte dans le référentiel du laboratoire. L'interface est totalement rigide et se déplace à la vitesse de la goutte, la dissipation a lieu aussi bien dans le film plat que

dans le ménisque dynamique. On peut voir le *Sliding* comme si la goutte était tellement rigide qu'elle adoptait un mouvement de corps solide.

### 1.3.5 Cas d'une goutte : Influence de la viscosité interne

Dans le cas des gouttes, des simulations numériques prenant en compte la viscosité de la phase interne ainsi que les forces intermoléculaires dans le film plat permettent de retrouver les résultats de Bretherton pour des capillaires circulaires [TDS88, HJR04, Der43].

**Modèle de Teletzke *et al.*** Le modèle de Teletzke *et al.* [TDS88] a pour paramètres le nombre capillaire  $C_a$ , le rayon du capillaire  $r$  et le rapport de viscosité  $\lambda = \eta_i/\eta_o$  entre les viscosités de la phase interne (la goutte) et la phase externe. On définit également le *facteur d'épaississement*  $f$  comme le rapport entre l'épaisseur du film plat obtenue par simulation  $h_\infty$  et l'épaisseur déterminée par le modèle d'épaississement du film pour une bulle celui de Bretherton  $h^{breth} = 1.337rC_a^{2/3}$ .

Ce modèle, met en évidence que le paramètre pertinent est le nombre sans dimension  $\lambda C_a^{2/3}$  qui caractérise le degré de mobilité de l'interface. Lorsque  $\lambda \ll C_a^{-2/3}$ , le cisaillement s'établit dans la goutte et le film reste au repos par rapport à la paroi. On retrouve une épaisseur *stress-free* puisque celle-ci est alors uniquement déterminée par le gradient de pression dans le ménisque dynamique. Lorsque  $\lambda \gg C_a^{-2/3}$ , le cisaillement s'établit dans le film et le champ des vitesses au sein de la goutte est uniforme. Dans ce cas, l'interface est immobile dans le référentiel de la goutte. On retrouve alors une épaisseur de type *sliding*, épaissie d'un facteur d'épaississement  $2^{2/3}$  par rapport au cas *stress-free*. Dans le cas intermédiaire les écoulements dans les deux phases sont couplés et il devient nécessaire de déterminer les champs de vitesses dans chacune des deux phases pour obtenir l'épaisseur du film déposé.

**Modèle de Hodges *et al.*** Le modèle de Hodges *et al.* fait apparaître un nouveau paramètre :  $\lambda C_a^{1/3}$  qui caractérise le couplage visqueux entre les zones de part et d'autre de l'interface au niveau du ménisque dynamique, c'est-à-dire, le couplage entre les zones  $III_i$  et  $III_o$  montrées sur Figure 1.11.

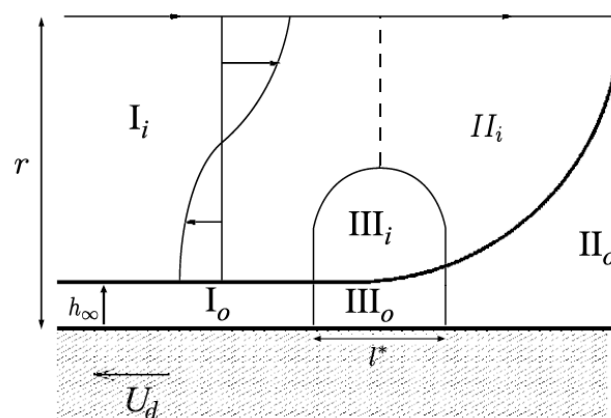


FIGURE 1.11 – Schéma du ménisque avant d'une goutte se déplaçant dans un capillaire cylindrique de rayon  $r$ . On retrouve les mêmes zones que définies pour Bretherton, avec leur pendant phase interne : dans la goutte.  $i$  et  $o$  se réfèrent respectivement aux régions à l'intérieur de la goutte et dans la phase externe. Extraite de [HJR04].

Le paramètre  $\lambda C_a^{1/3}$  indique le degré de mobilité dans la région *III*. Dans ce modèle plus complet on obtient une dépendance différente de l'épaississement du film de lubrification pour les variations du rapport de viscosité.

L'idée est que ce couplage visqueux entre ces deux zones du ménisque dynamique peut entraîner un épaississement supplémentaire avec un facteur d'épaississement  $f^{hodges} = 4^{2/3} = f^{roll}$  dans certaines conditions de nombre capillaire et de rapport de viscosité.

En géométrie axisymétrique, les modèles de Teletzke *et al.* et Hodges *et al.* proposent la prise en compte de la viscosité de la phase interne d'une goutte pour modéliser cette dissipation supplémentaire au modèle de Bretherton pour une bulle non visqueuse. Les auteurs déterminent que l'épaississement, dans certaines conditions peuvent donner des facteurs d'épaississement semblables au modèle d'interface de types *rolling* ou *sliding*.

Dans notre étude, nous utiliserons des huiles peu visqueuses comme phase interne de nos gouttes, ainsi  $\lambda$  sera de l'ordre de 0.5. Considérons le nombre capillaire le plus élevé que nous rencontrerons dans nos expériences, à savoir  $C_a \approx 3 \cdot 10^{-3}$ . Alors, notre rapport de viscosité est très faible devant  $C_a^{-2/3}$  et faible devant  $C_a^{-1/3} = 30$ . En principe, nous nous plaçons donc dans un régime où le cisaillement s'établit dans la goutte et non dans le film : le cas *stress-free*.

## 1.4 Dynamique d'objets confinés dans une cellule de Hele-Shaw

Bretherton s'est concentré sur la forme des ménisques avant/arrière, la perte de charge et l'épaisseur du film de lubrification. Il a établi la loi bien connue (1.18) liant épaisseur du film de lubrification, dimension de confinement et le nombre capillaire. Le pré-facteur  $P$  peut varier en fonction de la rigidité interfaciale de la goutte/de la bulle [Bre61, Can13], ou du rapport de viscosité entre la phase dispersée et la phase porteuse [TDS88, HJR04]. La situation est plus compliquée dans une cellule de Hele-Shaw où la goutte est confinée de telle sorte qu'elle adopte une forme de pancake, déposant sur son passage un film de lubrification. De telles gouttes sont très fréquentes en microfluidique [BGD10] où elles sont utilisées et manipulées pour toutes sortes d'applications.

À partir d'ici nous allons parler de cellule de Hele-Shaw dont les deux dimensions planes sont à l'horizontale, perpendiculaires à la gravité. L'épaisseur de telles cellules étant extrêmement faible ( $< 100 \mu\text{m}$ ) nous négligeons les effets de la gravité dans la suite de manuscrit.

### 1.4.1 Définitions des objets en cellule de Hele-Shaw

Une cellule de Hele-Shaw est un canal rectangulaire où l'épaisseur est négligeable devant les autres dimensions. Deux schémas sont donnés Figure 1.12. Une cellule de Hele-Shaw présente une épaisseur  $2H$  très faible devant  $l$  et  $L$ . Ainsi, si le rayon de la goutte est important devant la hauteur de la cavité, la goutte se trouve être confinée et adopte une forme de pancake.

La vitesse de la goutte est définie comme la vitesse moyenne de son centre de masse noté  $O$  sur le schéma.

Au sein de cette cavité l'écoulement du fluide porteur est un écoulement classique dit de Poiseuille. On l'obtient en résolvant les équations de Stokes avec comme conditions aux parois, une condition de type vitesse nulle à l'interface solide. La vitesse  $U_f$  du fluide porteur est défini comme la vitesse moyenne de l'écoulement dans la cavité. On l'obtient en connaissant la section  $S$  de la cavité

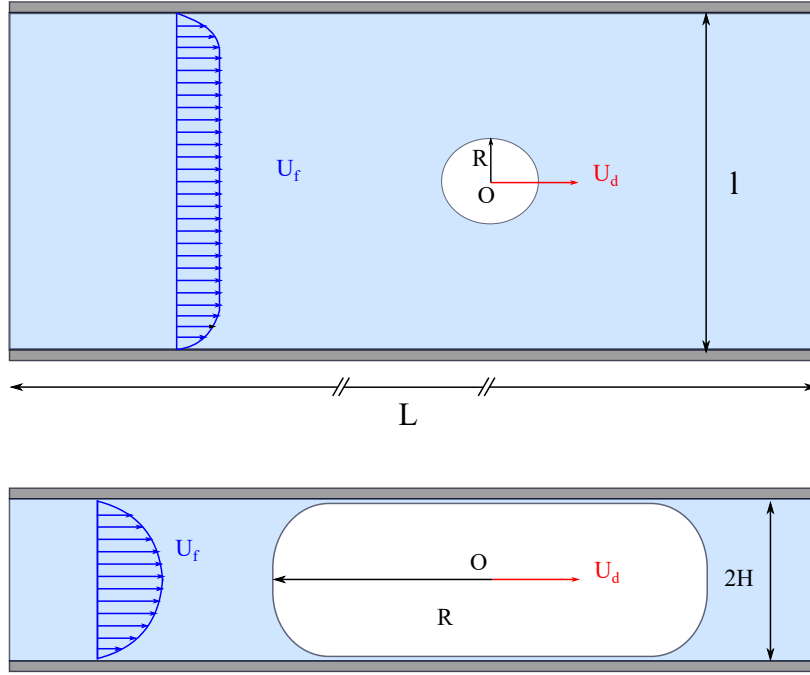


FIGURE 1.12 – Schémas représentant une goutte naviguant dans une cellule de Hele-Shaw vu de dessus et de côté. On définit ainsi les grandeurs géométriques :  $l, L, H, R$  et cinétiques :  $U_d, U_f$ . Soit respectivement, la largeur de la cellule, sa longueur, sa demi-hauteur, le rayon de la goutte, la vitesse de la goutte, et la vitesse du fluide porteur.

ainsi que le débit de fluide porteur injecté dans la cellule  $Q$ . On obtient simplement :

$$U_f = \frac{Q}{S} \quad (1.20)$$

Dans une cellule de Hele-Shaw, le champs de vitesse est solution des équations de Stokes.

$$\eta \Delta \vec{u} = \vec{\text{grad}} P \quad \text{div}(\vec{u}) = 0 \quad (1.21)$$

On peut ainsi résoudre ces équations dans le cas de la cellule de Hele-Shaw, de hauteur  $2H$  et des hypothèses associées, notamment l'invariance du champs de pression dans la hauteur de la cavité (suivant  $z$ ) ainsi que des dérivées de vitesses négligeables dans le plan de la cellule. On obtient :

$$\vec{u} = \frac{3}{2} \vec{U}(x, y) \frac{z(2H - z)}{H^2} \quad (1.22)$$

où  $\vec{U}$  est la vitesse moyennée sur la hauteur et qui vaut :

$$\vec{U} = -\frac{2}{3\eta} \vec{\text{grad}} P H^2 \quad (1.23)$$

#### 1.4.2 Importance du confinement : notion de goutte pancake

Dans la littérature les mouvements de gouttes confinées dans des cellules de Hele-Shaw ont été étudiés. On peut différencier les études numériques des études expérimentales sur ce point.

## Études numériques

Les études numériques sur la question d'écoulement de gouttes dans une cellule de Hele-Shaw sont abordées notamment dans les papiers de Zhu *et al.* [ZG16] ou de Ling *et al.* [LFPJ16]. Dans ces deux articles la dépendance de la vitesse de la goutte avec le confinement noté  $R/H$  avec  $R$  le rayon de la goutte/bulle et  $H$  la demi-hauteur de la cavité est abordée.

La principale limitation de telles études est le nombre capillaire. En effet, un nombre capillaire trop faible entraîne une épaisseur de film de lubrification trop faible et fait exploser la demande en calculs de telles simulations. C'est une limitation numérique. De la même façon, et pour les mêmes raisons, les confinements explorés ne sont pas si importants que cela. La gamme de confinement explorée va de  $R/H = 0.5$ , qui correspond à une goutte quasi sphérique, éloignée des parois à une valeur maximale de  $R/H = 3$  où effectivement la goutte a une forme pancake.

Les informations à tirer de ces études dans notre cas sont les suivantes :

- Dans les simulations, le confinement maximum exploré est  $R/H = 3$ . Dans ce manuscrit les gouttes seront confinées avec un  $R/H$  a minima égal à 5.
- Dans le papier de Zhu *et al.* la dépendance de la mobilité, c'est-à-dire le rapport de la vitesse de la goutte sur la vitesse de la phase porteuse **croît avec le rapport  $R/H$** . Les résultats obtenus par cette étude sont présentés en Figure 1.13.
- Les nombres capillaires explorés sont importants, de l'ordre de  $10^{-3}$  à  $10^{-1}$ . Ils sont donc un à deux ordres de grandeur plus grands que ceux que nous allons explorer dans ce manuscrit.

On note également la prédiction numérique d'une forme de *catamaran* avec un amincissement des gouttes sur les côtés; une forme qui a été observée expérimentalement dans des cellules de Hele-Shaw par Axel Huerre [HJTV16] ou plus récemment par Benjamin Reichert [RHT<sup>+</sup>18], et théorisée par les travaux de Burgess & Foster en 1990 [BF90].

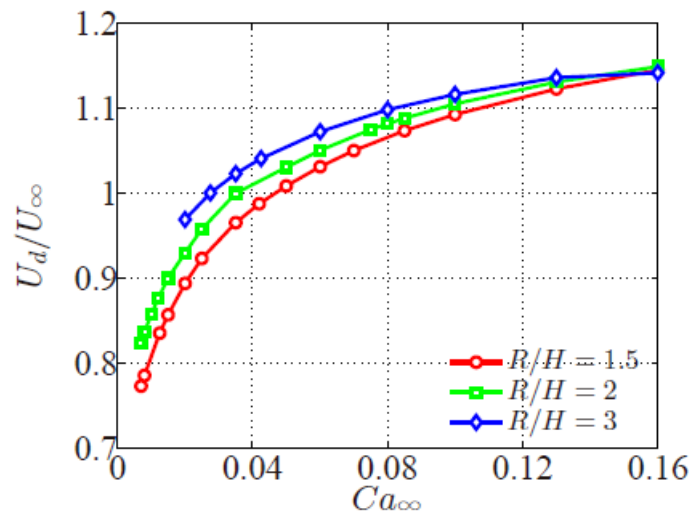


FIGURE 1.13 – Mobilité de la goutte  $U_d/U_\infty$  en fonction du nombre capillaire. Ici, pour reprendre les notations de l'auteur,  $U_f$  correspond à  $U_\infty$  et  $Ca_\infty$  est le nombre capillaire non pas basé sur la vitesse de la goutte mais sur la vitesse du fluide porteur en écoulement. On observe une croissance de la vitesse de la goutte, pour un nombre capillaire et une épaisseur de cellule donnés, avec le rayon de celle-ci. Extrait de [ZG16].



## Études expérimentales

Expérimentalement il est possible de descendre à des nombres capillaires bien plus faibles. Les travaux Shen *et al.* [SLRT14] explorent la dynamique d'un petit nombre de gouttes confinées dans une cellule de Hele-Shaw microfluidique. Expérimentalement ces travaux nous intéressent car ils ont une configuration proche de la nôtre qui sera décrite plus en détail au chapitre suivant. Ici, les auteurs fabriquent des gouttes d'huiles fluorées poussées dans une cellule de Hele-Shaw par une phase porteuse aqueuse dans laquelle est rajouté un tensioactif : du sodium dodecyl sulfate (SDS). La hauteur de la cavité varie de  $18\ \mu\text{m}$  à  $48\ \mu\text{m}$  et le rayon des gouttes varie de  $100\ \mu\text{m}$  à  $200\ \mu\text{m}$ .

Les auteurs tracent (Figure 1.14) la vitesse de la goutte en fonction de la phase porteuse pour différents rapports de confinement.

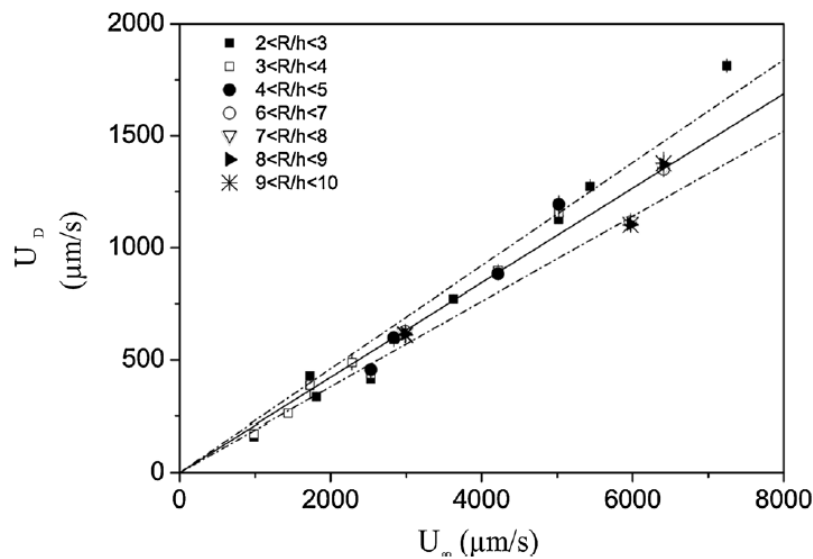


FIGURE 1.14 – Mesures de vitesses d'une goutte confinée  $U_d$  en fonction de la vitesse du fluide porteur  $U_\infty$  regroupées par valeur de  $R/H$ . La ligne continue correspond à une régression linéaire. Les barres d'erreurs sont les valeurs maximales et minimales obtenues, parfois plus petite que le point. Extrait de [SLRT14].

Les vitesses de gouttes mises en jeu ici correspondent à des nombres capillaires très faibles. D'après l'auteur  $Ca$  varie entre  $2.5 \times 10^{-6}$  et  $3.7 \times 10^{-5}$ . D'après les travaux de Axel Huerre [HVM<sup>+</sup>17, Hue15] cela signifie que l'expérimentation se déroule dans un régime où la pression de disjonction joue un rôle, point sur lequel nous reviendrons plus tard dans ce manuscrit.

Les informations que nous tirons de cette étude sont notamment la valeur de la mobilité des gouttes d'huile fluorée poussées par une solution à environ 4 fois la CMC de SDS dans des cavités de Hele-Shaw, mobilité qui vaut  $\beta = 0.21 \pm 0.02$ . Valeur que nous retrouverons plus bas. Également, la conclusion des auteurs est que cette mobilité ne varie pas avec le rapport  $R/H$  ou du moins pas de manière significative. Les expérimentations de Shen *et al.* ne permettent pas de conclure sur l'évolution de la vitesse d'une goutte peu visqueuse en fonction de son rayon. Les expérimentations sont réalisées à de très faibles capillaires et la dépendance en rayon n'est pas le propos de l'article. Une campagne d'expérimentations menée par Benjamin Reichert *et al.* [RCJ19] a mis en avant l'évolution de la mobilité d'une goutte ou une bulle dans une cellule de Hele-Shaw poussée par une phase aqueuse très concentrée en surfactants (C10-TAB+NaCl). Dans les cas de la bulle ou de la goutte peu

visqueuse (huile fluorée  $\eta = 0.64\text{mPa.s}$ ) mènent au même résultat : **plus le rayon de la bulle/goutte est important, plus elle va vite.**

Cette étude se place dans un confinement important  $R/H > 5$  dans une cellule de Hele-Shaw de hauteur  $H_o = 15\mu\text{m}$ , pour des gouttes/bulles dont les rayons sont proches de la centaine de microns donnant des nombres capillaires  $2.4 \cdot 10^{-4} < Ca < 4.8 \cdot 10^{-3}$ . Les mobilités trouvées par l'auteur varient, mais sont inférieures à 1.

### 1.4.3 Signature de vitesses interfaciales et internes : expérimentation et simulations

Le liquide entraînant la goutte peut aller plus ou moins vite que celle-ci en fonction de la chimie ou du rapport de viscosité. Dans tous les cas, il y a des recirculations à l'intérieur de la goutte par entraînement visqueux ou contraintes interfaciales. Les travaux numériques décrits précédemment [LFPJ16, ZG16] montrent bien cette dynamique interne au travers de simulations numériques.

Des travaux expérimentaux ont été également menés pour observer ces vitesses interfaciales et internes dans une goutte. Notamment les travaux de Lee *et al.*[LGB12] qui étudient l'écoulement à l'intérieur d'une goutte stationnaire dans une cellule de Hele-Shaw. Les expériences sont réalisées dans un système microfluidique, une cellule de Hele-Shaw, dont le plafond est pourvu d'un trou servant à ancrer la goutte laissant le fluide extérieur chargé de tensioactifs s'écouler. Les auteurs observent les recirculations au sein de la goutte grâce à des particules utilisées comme traceurs. Ils montrent en particulier une recirculation tridimensionnelle à la surface de la goutte, le fluide se déplaçant dans la direction de l'écoulement extérieur sur le plan central et dans la direction opposée plus près des plaques. Également, la vitesse à l'interface liquide/gaz latérale est inférieure à la vitesse d'entraînement, même dans le cas d'une bulle de gaz, ce qui indique l'effet des contraintes de surface comme mécanisme de retardement et de recirculation. Les auteurs présentent également un modèle de Marangoni pour tenir compte de l'accumulation de tensioactifs autour du point de stagnation en aval.

Cela montre bien que le passage d'une géométrie axisymétrique à une géométrie de Hele-Shaw ne se fait pas sans complexification. Que les écoulements autour/et dans la goutte sont complexes, non unidirectionnels et couplent à la fois les effets visqueux et les effets interfaciaux dus à la présence de molécules tensioactives. Toutes ces recirculations changent les conditions aux limites à l'interface et donc potentiellement change la mobilité des gouttes.

## 1.5 Approches théoriques

La question de la prédiction de la vitesse d'une goutte circulant dans une cellule de Hele-Shaw a mené à plusieurs études numériques ou expérimentales. Certains se sont également attelés à une modélisation de ce problème.

### 1.5.1 Champs de vitesse et de pression

Figure 1.15 montre une goutte vue du dessus, dans une cellule de Hele-Shaw.

Le champs de pression dans la cavité est obtenu en résolvant l'équation 1.23 associée à  $\text{div}(\vec{U})$ . Cela nous conduit à résoudre une équation sur la pression :

$$\Delta P = 0 \tag{1.24}$$

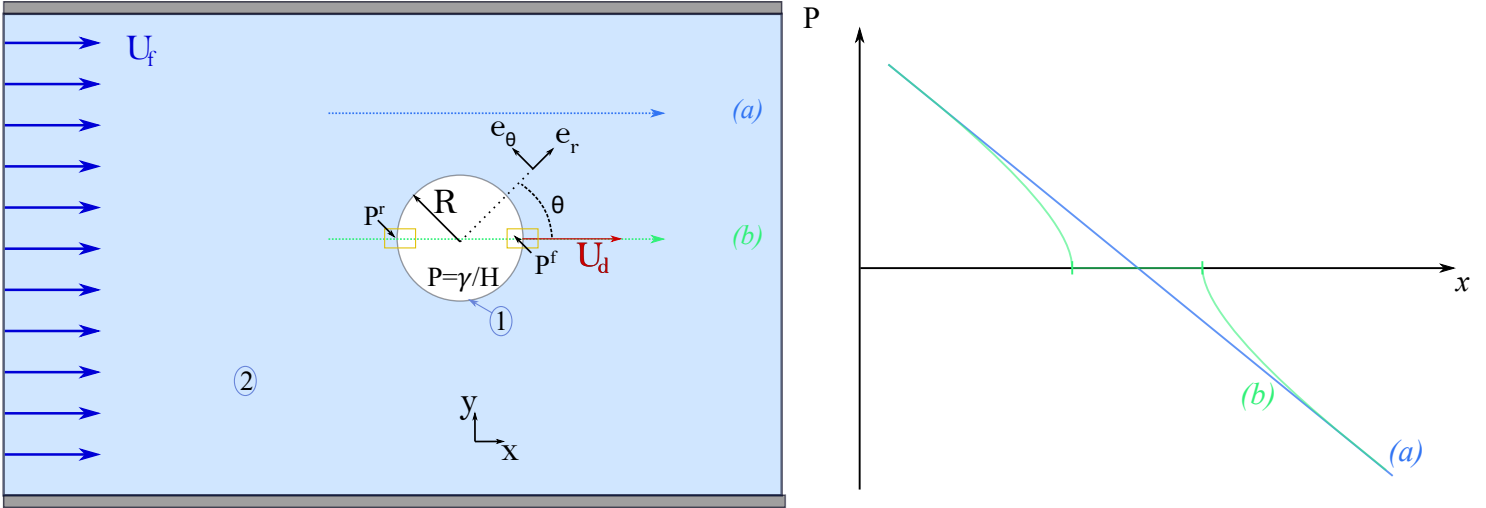


FIGURE 1.15 – (Gauche) Vue du dessus de la goutte naviguant dans une cellule de Hele-Shaw. La goutte est en blanc (la phase 1), le fluide porteur en bleu (la phase 2). (Droite) Tracé schématique de l'évolution de la pression selon  $x$  dans différentes coupes de fluides.

avec comme valeurs limites, la vitesse du fluide  $U_f$  loin de la goutte (à l'infini), et autour de la goutte, où la vitesse normale se raccorde à  $U_d$ , la vitesse de la goutte supposée circulaire (ce qui sera toujours le cas dans nos expériences). On détermine alors le champs de vitesses radiales et le champs de pression dans le fluide  $U_2$  et dans la goutte  $U_1$  ([Dan12a] p. 67) :

$$\begin{cases} U_2(\theta) = U_f \left(1 - \frac{R^2}{r^2}\right) \cos\theta + U_d \frac{R^2}{r^2} \cos\theta \\ U_1(\theta) = U_d \cos\theta \end{cases} \quad (1.25)$$

$$\begin{cases} P_2(r, \theta) = -\frac{\eta_2}{4H^2} \left[ U_f \left(r + \frac{R^2}{r}\right) \cos\theta - U_d \frac{R^2}{r} \cos\theta \right] + K_1 \\ P_1(r, \theta) = -\frac{\eta_1 U_d}{4H^2} r \cos\theta + K_2 \end{cases} \quad (1.26)$$

Les deux pressions sont déterminées à une constante près. Par convention la pression externe est prise nulle loin de la goutte, dans une direction perpendiculairement à l'écoulement.

La pression moyenne dans la goutte est notée  $K = K_2$ . La figure 1.16 illustre les ordres de grandeur des vitesses dans les différents domaines, prédits par les équations 1.25.

A ce stade les vitesses  $U_d$  et  $U_f$  sont deux données du problème. Pour déterminer  $U_d$  en fonction de  $U_f$ , nous devons utiliser une information physique supplémentaire, qui est le saut de pression à la frontière de la goutte.

Le modèle le plus simple est celui de Saffman et Taylor [TS59]. Ils modélisent leur bulle comme un cylindre mouillant sans pression de Laplace et sans viscosité interne. Le saut de pression est donc nul et on peut en déduire, comme il sera établi au paragraphe suivant que :

$$\frac{U_d}{U_f} = 2 \quad (1.27)$$

Si l'on considère maintenant non plus une bulle mais une goutte, avec une viscosité interne  $\eta_1 \neq 0$ , alors en considérant la bulle comme un cylindre mouillant dont la pression est continue à l'interface, nous remarquons qu'il n'y a pas de saut de pression entre les deux fluides induit par la capillarité. On obtient le résultat écrit notamment chez Galaire *et al.* [GMLB14] :

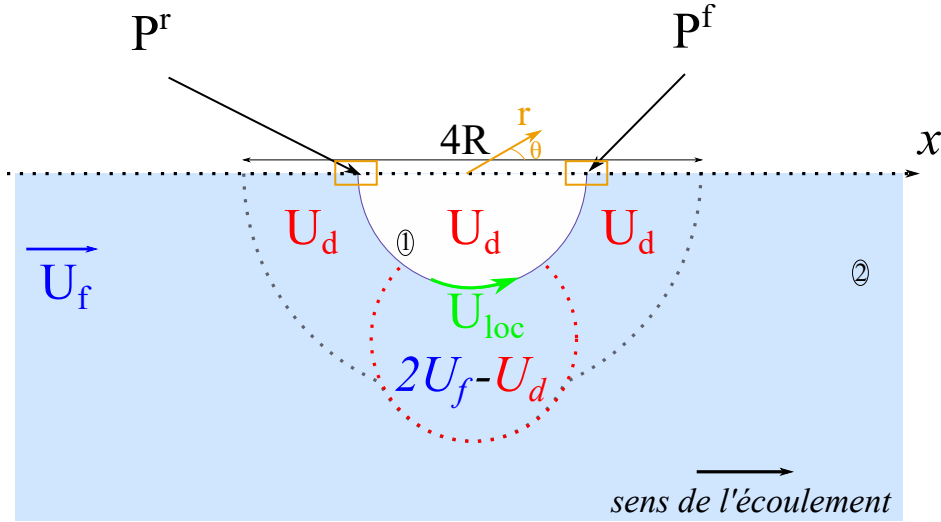


FIGURE 1.16 – Schéma représentant la moitié de la goutte évoluant dans la cellule de Hele-Shaw, représentée du dessus. La goutte est représentée en blanc. Les différentes zones d'influences de la goutte sur l'écoulement de la phase externe sont représentées en pointillés. Enfin, 1 est la phase interne, i.e. la goutte, 2 est le fluide extérieur.

$$\frac{U_d}{U_f} = \frac{2}{1 + \frac{\eta_1}{\eta_2}} \quad (1.28)$$

Ces estimations sont loin de la réalité de par la présence de films de lubrification de part et d'autre de la goutte. Il faut prendre en compte le saut de pression dynamique induit par le mouvement des ménisques. Une partie de la question est de connaître la courbure à prendre en compte mais aussi la variation possible de la tension de surface.

### 1.5.2 Établissement de la loi de mobilité

Dans ce paragraphe, nous étendons les résultats obtenus dans la littérature pour la mobilité des gouttes en cellule de Hele Shaw, en nous restreignant aux cas où les gouttes restent circulaires, mais en élargissant aux cas où la tension de surface peut varier de façon significative. Le long de l'axe  $\bar{x}$  nous avons :

$$P_2^r - P_2^f = P_2^r - P_1^r + P_1^r - P_1^f + P_1^f - P_2^f \quad (1.29)$$

Tout d'abord nous écrivons la différence de pression dans le fluide extérieur entre l'avant ( $f$ ) et l'arrière ( $r$ ) de la goutte :

$$P_2^r - P_2^f = P_2(\pi, R) - P_2(0, R) = \frac{\eta_2 R}{2H^2} [2U_f - U_d] \quad (1.30)$$

On écrit de la même façon la différence de pression dans la goutte :

$$P_1^r - P_1^f = \frac{\eta_1}{2H^2} R U_d \quad (1.31)$$

Nous en déduisons la différence entre le saut de pression à l'avant et le saut de pression à l'arrière, en fonction des deux vitesses du problème  $U_f$  et  $U_d$  :

$$P_2^f - P_1^f - (P_2^r - P_1^r) = \frac{\eta_2 R}{2H^2} \left[ -2U_f + \left( 1 + \frac{\eta_1}{\eta_2} \right) U_d \right] \quad (1.32)$$

Écrivons maintenant le saut de pression aux interfaces avant et arrière, en prenant en compte les variations potentielles de courbures et de tension de surface :

$$P_2^f - P_1^f = -\frac{\gamma_o + \partial\gamma^f}{H + \partial H^f} \sim -\left(\frac{\gamma_o}{H^f} + \frac{\partial\gamma}{H^f} - \gamma_o \frac{\partial H^f}{(H^f)^2}\right) \quad (1.33)$$

avec  $H + \partial H^{f/r}$  le rayon de courbure du ménisque avant/arrière.

$$P_2^r - P_1^r = -\frac{\gamma_o + \partial\gamma^r}{H + \partial H^r} \sim -\left(\frac{\gamma_o}{H^r} + \frac{\partial\gamma}{H^r} - \gamma_o \frac{\partial H^r}{(H^r)^2}\right) \quad (1.34)$$

En réinjectant dans l'équation 1.32, il vient de suite, à l'ordre dominant :

$$\frac{\eta_2 R}{2H^2} \left[ -2U_f + \left(1 + \frac{\eta_1}{\eta_2}\right) U_d \right] = -\frac{1}{H} (\partial\gamma^f - \partial\gamma^r) - \frac{\gamma_o}{H^2} (\partial H^r - \partial H^f) \quad (1.35)$$

On obtient ainsi une relation générale entre les deux vitesses du problème et les variations de tensions de surfaces et de courbures de l'interface. Nous nous appuyerons sur cette équation originale pour discuter nos résultats au Chapitre 6.

Le cas d'une tension de surface  $\gamma$  constante tout le long de l'interface est traité en particulier dans la thèse de Dangla [Dan12a]. Dans ce cas, il ne reste plus que les termes de variations de courbures, qui sont une correction du saut de pression localisé à l'interface, liées aux frottements dans le ménisque. Il vient :

$$\frac{\eta_2 R}{2H^2} \left[ -2U_f + \left(1 + \frac{\eta_1}{\eta_2}\right) U_d \right] = \frac{\gamma_o}{H^2} (\partial H^r - \partial H^f) \quad (1.36)$$

La valeur de cette variation de courbure est connue et documentée dans des cas typiques tels que le *Stress-Free* ou le *Rolling* [Bre61, PH84, Can13]. Dans ce dernier cas, la correction à apporter au saut de pression  $\delta P$  vaut :

$$\delta H^{r,f} \sim 2HC_a^{2/3} \quad \text{avec} \quad C_a = \frac{\eta_2 U_d}{\gamma_o} \quad (1.37)$$

On écrit alors la différence de ces deux corrections :

$$\partial H^r - \partial H^f = -\beta_1 2HC_a^{2/3} \quad (1.38)$$

avec  $\beta_1$  un paramètre ajustable qui dépend notamment des conditions aux limites à l'interface.

Nous pouvons alors obtenir une expression de la vitesse de la goutte en fonction de la vitesse de la phase porteuse en injectant 1.38 dans 1.36 :

$$\frac{\eta_2 R}{2H^2} \left[ -2U_f + \left(1 + \frac{\eta_1}{\eta_2}\right) U_d \right] = \frac{\gamma_o}{H^2} (-\beta_1 2HC_a^{2/3}) \quad (1.39)$$

Finalement, en mettant en forme l'équation pour faire apparaître la mobilité on obtient :

$$U_d = \frac{2U_f}{1 + \frac{\eta_1}{\eta_2} + \beta_1 \frac{2H_o}{R} C_a^{-1/3}} \quad (1.40)$$

Nous retrouvons alors l'expression obtenue par Dangla [Dan12a], par un autre chemin. En effet ses travaux portaient sur un bilan de puissance et permettent de déterminer la dissipation dans chaque zone du système. Ici l'expression est obtenue par l'étude du saut de pression. Cette expression montre une dépendance croissante de la mobilité avec le rayon : **si le rayon de la goutte augmente, alors la goutte va plus vite** ce qui est en accord avec les simulations et les expérimentations présentées dans ce chapitre et plus généralement dans la littérature.

## 1.6 Bilan sur la dépendance en rayon

Si l'on fait un bilan de la littérature présentée jusqu'ici nous obtenons ceci :

1. Les modélisations numériques ne permettent pas de résoudre un confinement important, et ne prennent pas en compte les surfactants. Toutefois dans les résultats disponibles sur une gamme de nombres capillaires  $10^{-3} < Ca < 10^{-1}$ , la vitesse de la goutte croît avec le rayon.
2. Les modèles prédictifs prenant en compte les effets des ménisques dynamiques et différentes conditions aux limites à l'interface tantôt libre ou rigide obtiennent toujours une prédiction croissante de la vitesse avec le rayon de la goutte.
3. Expérimentalement, soit les nombres capillaires mis en jeu sont trop faibles [SLRT14] et ainsi la dépendance en rayon est nulle d'après les auteurs, soit la dépendance de la vitesse avec le rayon est également croissante [RCJ19].

Néanmoins, dans sa thèse Benjamin Reichert [Rei17] montre une expérimentation réalisée dans le même cadre que dans [RCJ19] c'est-à-dire des gouttes d'huile fluorée dans une phase aqueuse dans laquelle des tensioactifs sont dissous, mais pour des nombres capillaires plus grand que dans le cas de Shen *et al.*. La Figure 1.17 montre les résultats obtenus pour une solution aqueuse moins concentrée en tensioactifs, ici du sodium dodecyl sulfate :

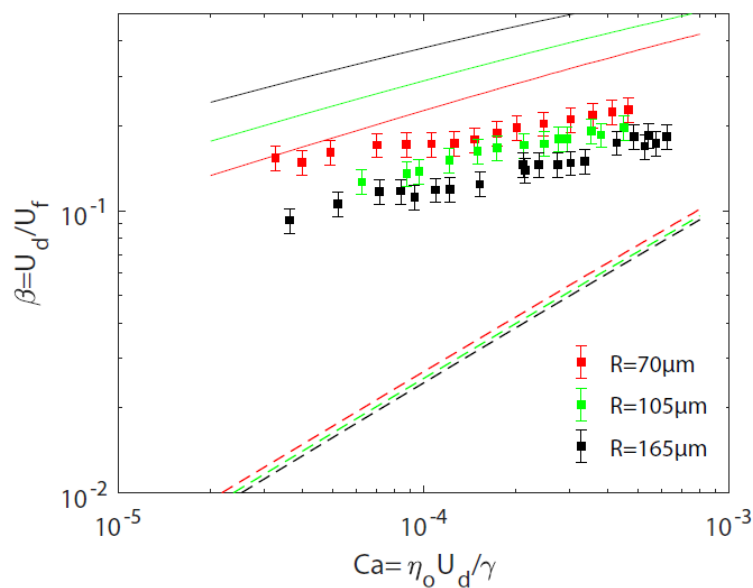


FIGURE 1.17 – Mesures expérimentales de la mobilité de gouttes d'huile fluorée FC72 poussées par une solution aqueuse de sodium dodecyl sulfate et de chlorure de sodium. Les points sont pour 3 rayons de gouttes différents. Les lignes en tirets sont les mobilités théoriques pour une interface dite libre (condition à l'interface de type *stress-free*), les traits pleins pour une condition de type *Sliding* au niveau du ménisque dynamique (une interface rigide). Extraite de [Rei17].

On note ici une dépendance en rayon **décroissante** avec la vitesse de la goutte. L'auteur émet l'hypothèse d'un gradient de tension de surface dû à une solution peu concentrée car il s'agit d'une expérience réalisée juste au dessous de la CMC. L'hypothèse avancée est celle d'un manque de tensioactifs à l'avant dû à la faible concentration en tensioactifs, et à une accumulation à l'arrière de la goutte au niveau du point de stagnation. Cette inhomogénéité de concentration de surface implique-

rait cette inversion de la dépendance en rayon.

Les travaux présentés dans ce manuscrit ont pour but d'essayer de comprendre cette inversion de la dépendance, en venant notamment explorer ce système pour différentes solutions tensioactives.

## 1.7 Mesure de la topographie de film sous des gouttes confinées

La littérature montre bien qu'un changement de chimie peut avoir une influence importante sur le comportement du système. Comment observer alors l'influence des tensioactifs sur le mouvement d'une goutte dans une cellule de Hele-Shaw?

Les tensioactifs peuvent changer localement la condition aux limites à l'interface notamment dans le film de lubrification. L'idée est de venir mesurer l'épaisseur de ce film. Nous montrons ci-dessous que la topographie de ce film est une signature des gradients de vitesses interfaciales, que l'on peut elle même lier à la présence de tensioactifs.

### 1.7.1 Frottements aux parois

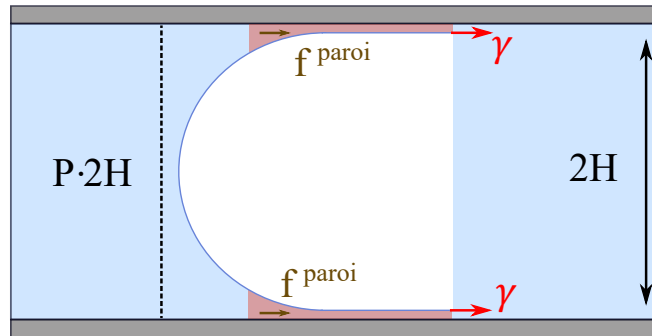


FIGURE 1.18 – Schéma représentant une coupe arrière de la goutte entraînée par le fluide porteur.  $\gamma$  est représenté un bilan des forces vues par ce système : la tension de surface  $\gamma$  au niveau de la coupe à l'interface, la pression du fluide porteur ainsi que le frottement aux parois associé à un changement de courbure.

La Figure 1.42 montre un bilan des forces effectué sur une coupe arrière de la goutte navigant dans sa cellule, poussée par le fluide porteur. Si l'on écrit le bilan des forces on obtient :

$$2(P_2^r - P_1^r)H + 2\gamma + 2f^{paroi} = 0 \quad (1.41)$$

avec  $f^{paroi} < 0$  le frottement visqueux localisé dans le ménisque dynamique. En utilisant l'équation 1.34 il vient :

$$\frac{\partial\gamma}{H^r} - \gamma_o \frac{\partial H^r}{(H^r)^2} = \frac{f^{paroi}}{H} \quad (1.42)$$

Le deuxième terme dans l'équation 1.35 dépend donc des frottements à la paroi dans les ménisques et les films de lubrification.

### 1.7.2 Lien entre vitesse interfaciale et frottements aux parois

On se place dans le référentiel de l'objet et on note  $U_d$  la vitesse de la plaque. Loin des ménisques, on observe un film de mouillage homogène, d'épaisseur  $h_\infty$  (voir Figure 1.19). On suppose que la vitesse dans ce film plat est égale à  $U_d$ . Plus proche du ménisque arrière, mais dans un domaine où la courbure et donc la pression est encore négligeable, on observe parfois un épaissement du film [RHT<sup>+</sup> 18]. Dans cette zone, la vitesse varie de  $U_d$  à la paroi à  $U_{int}(x)$  à l'interface.



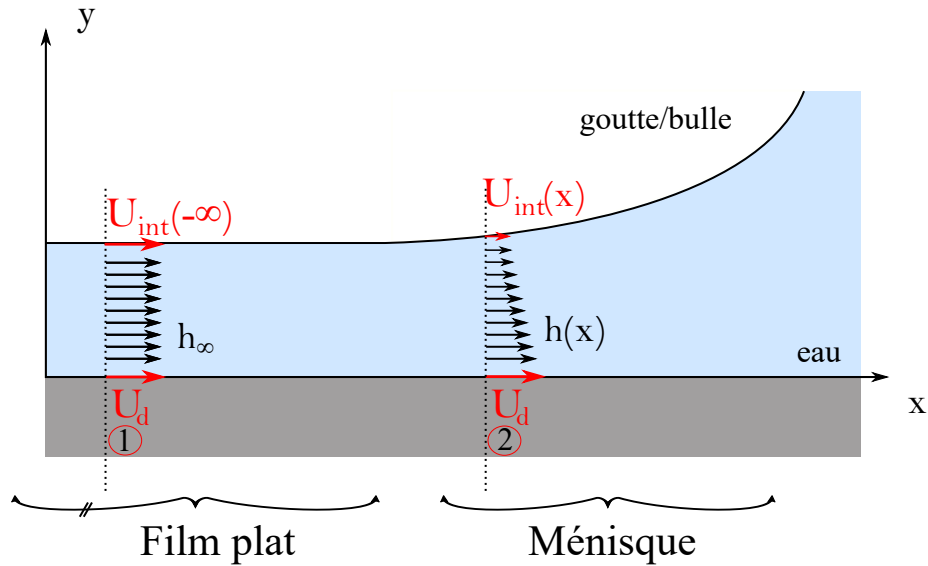


FIGURE 1.19 – Schéma en coupe passant par le centre de la goutte montrant le film de lubrification sous l'objet (goutte ou bulle).

En faisant l'hypothèse que l'écoulement, ici stationnaire, est purement contenu dans le plan  $(O, X, y)$ , c'est-à-dire qu'il n'y a pas d'écoulements latéraux (hypothèse valide au centre de la goutte), on peut écrire la conservation du débit linéique entre  $-\infty$  et  $x$ . On obtient alors :

$$h_{\infty} U_d = h(x) \left( \frac{U_{int}(x) + U_d}{2} \right) \quad (1.43)$$

Ce qui donne après simplification :

$$U_{int} = 2 \frac{h_{\infty}}{h} U_d - U_d \quad (1.44)$$

Ainsi **une variation de vitesse interfaciale entraîne une variation d'épaisseur**. Une épaisseur de film de lubrification constante est signe d'une vitesse à l'interface constante. On peut maintenant calculer les frottements aux parois, connaissant ces variations d'épaisseurs dans le film.

$$f^{paroi} = \int_f^r \eta_2 \frac{U_{int} - U_d}{h} dx \quad (1.45)$$

Ainsi, **l'épaisseur du film devient alors le témoin de la force à la paroi**, et ainsi de la mobilité de la goutte, en utilisant 1.42 et 1.35. Il est alors possible, si l'on parvient à mesurer l'épaisseur locale de ce film, d'en tirer les concentrations surfaciques des surfactants, et donc leurs propriétés de transport. Cette mesure d'épaisseur peut être faite par interférométrie. Le dispositif usité est celui développé par Curtis [Cur64] que l'on connaît aujourd'hui sous le nom de *Reflection Interference Contrast Microscopy* ou RICM. Depuis il a beaucoup été utilisé pour imager et mesurer des distances d'adhésion en physique cellulaire [RS93, FP00, LS09]. Les travaux de Zhu *et al.* [ZG16] ou de Ling *et al.* [LFPJ16] retrouvent numériquement des résultats proches de la topographie sous une bulle avec une forme de catamaran et une oscillation à l'arrière. Les travaux de Benjamin Reichert [RHT<sup>+</sup>18] et d'Axel Huerre [HJTV16] sur la mesure et la reconstruction d'un film de lubrification sous une goutte d'huile poussée par une phase aqueuse ont montré expérimentalement cette forme. Si les mesures d'Axel Huerre

réalisées à l'INSERM de Marseille dans l'équipe d'Olivier Théodoly [HTL<sup>+</sup> 15, HVM<sup>+</sup> 17, HJTV16] portaient sur des gouttes d'huile relativement visqueuses et donc lentes, les mesures de Benjamin Reichert [RHT<sup>+</sup> 18] également faites avec le dispositif RICM de Marseille portaient elles sur des gouttes plus rapides.

Ce dispositif interférométrique n'était pas dimensionné pour la mesure d'objets rapides. Les capacités du dispositif interférométrique expérimental utilisé dans ces travaux ne permettaient pas une mesure fine des variations d'épaisseurs dans le film pour des gouttes d'huile fluorée à hauts nombres capillaires.

Une partie de ce manuscrit montre le cheminement de dimensionnement et de montage d'un tel dispositif adapté à l'observation de gouttes rapides dans une cellule de Hele-Shaw.

## 1.8 Résultats de la thèse

Ces travaux de thèse sont basés sur l'étude de gouttes en environnement microfluidique confiné. Nous avons vu qu'étudier la dynamique de tels objets revient à étudier les conditions à l'interface notamment au niveau des films de lubrification.

Cette thèse, retrace les résultats obtenus à l'aide la double mesure de la mobilité  $Ud/Uf$  et de la topographie des films de lubrification en fonction du nombre capillaire. On dispose alors de plus d'informations pour comprendre la dynamique de tels objets et leurs mécanismes de dissipation.

Dans les résultats phares on retrouve notamment une étude systématique de la mobilité d'une goutte d'huile poussée par une phase aqueuse dans une cellule de Hele-Shaw en fonction de la chimie des surfactants. Cette étude met en évidence une inversion de la dépendance en rayon de la vitesse de la goutte en fonction des surfactants dilués dans la solution. Elle présente également une hypothèse sur ce qu'est le paramètre pertinent pilotant cette inversion : la longueur de chaîne carbonée du tensioactif en solution.

Enfin, à l'aide du dispositif interférométrique RICM, utilisé sur ce système, on montre des variations de comportements du film de lubrification avec le paramètre déterminé auparavant.

Ces résultats peuvent être résumés ainsi :

- Dans le cas où la chaîne carbonée comporte strictement moins de 12 carbones, on observe une vitesse croissante avec le rayon à vitesse de phase porteuse donnée. On observe également un épaissement notable du film de lubrification à l'arrière de la goutte signe d'une contrainte interfaciale.
- Dans le cas où la chaîne carbonée comporte 12 carbones ou plus, alors on observe une vitesse décroissante avec le rayon à vitesse de phase porteuse donnée. Également, l'épaissement n'est plus observable à l'arrière de la goutte et les épaisseurs obtenues sont cohérentes avec une condition aux limites de types *Rolling*.

Dans une dernière partie, nous présentons un modèle d'établissement de la mobilité d'une goutte prenant en compte l'aspect 3 dimensions qu'est la géométrie d'une cellule de Hele-Shaw et le comparons à nos données expérimentales. Nous obtenons un accord notable, qui nous pousse à croire en ces hypothèses : la dynamique de gouttes peu visqueuses en cellule de Hele-Shaw est pilotée par la chimie des surfactants. La solubilité de ces derniers joue un rôle crucial, sur les mécanismes de dissipation. Enfin, il semble nécessaire de prendre en compte les écoulements latéraux, autour de la goutte et non pas seulement ceux présents dans les films de lubrifications.

## MESURE DE LA MOBILITÉ // DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

Nous présentons dans ce chapitre le dispositif expérimental que nous avons utilisé pour produire des gouttes confinées de taille contrôlée. Nous détaillons également les différentes étapes pour obtenir une mesure de leur vitesse.

### 2.1 Dispositif microfluidique

#### 2.1.1 Présentation du dispositif

Dans cette section, nous détaillons l'architecture du microsystème utilisé au cours de cette étude. La Figure 2.1 présente le schéma de principe de ce dispositif. La mise en écoulement et la fabrication des gouttes se font à l'aide d'un contrôleur en pression type *Motion Flow Control System* MFCS de chez Fluigent qui permet d'imposer une pression à différents réservoirs correspondants aux entrées, ici, trois entrées différentes :

- Deux entrées distinctes au niveau de la jonction T : une de phase dispersée, c'est-à-dire celle à partir de laquelle nous produisons les gouttes ; et une de phase dite continue qui joue le rôle de phase porteuse pour les gouttes, ici une solution aqueuse contenant des tensioactifs. On impose en entrée leur pression, ici  $P_{huile}$  et  $P_{eau}$ . Leurs débits correspondants sont notés respectivement  $Q_{huile}$  et  $Q_{eau}$ .
- Une troisième entrée, dite principale, dans laquelle circule également la phase continue et qui a pour rôle d'imposer le débit de la phase continue dans la cavité. Son débit est noté  $Q_{entrée}$  et sa pression  $P_{entrée}$ .

Les débits des phases continues sont mesurés à l'aide de cellules Flow-Unit de chez Fluigent. Les gouttes sont fabriquées au niveau de la jonction T où l'on vient "pincer" le flux d'huile avec la solution aqueuse, afin de le segmenter en portions égales à intervalles réguliers. Sous l'effet de la tension de surface, cela produit des gouttes en forme de langue de chat (*le gâteau sec*, *NDLR*) dans cet environnement très confiné, qui relaxent sous la forme d'un pancake dès lors qu'elles arrivent dans la

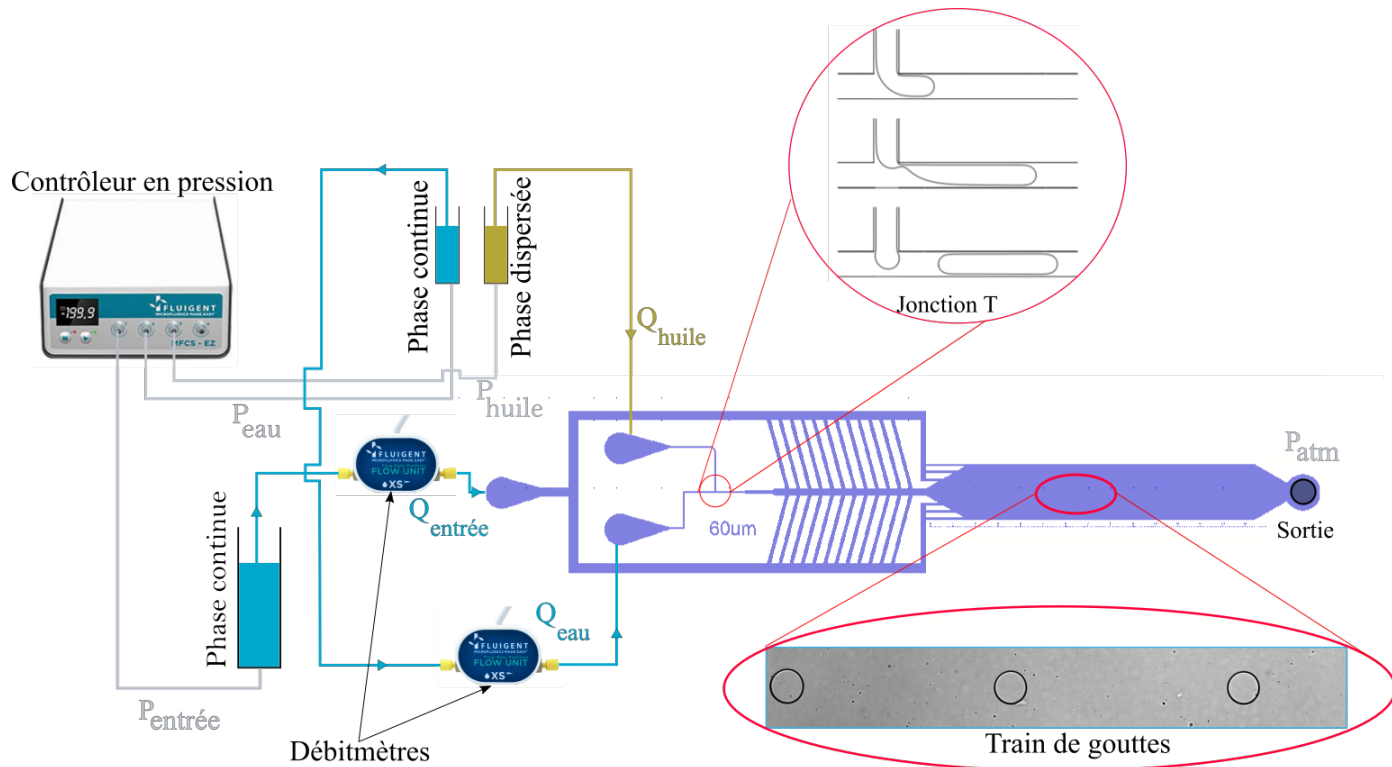


FIGURE 2.1 – Schéma de principe du dispositif expérimental observé sous microscope.

cavité d'observation. Ce dispositif à trois entrées permet de décorrérer la fabrication des gouttes et la vitesse de la phase porteuse dans la cellule d'observation.

Les gouttes sont observées dans une cellule dite de Hele-Shaw, c'est-à-dire que son épaisseur est très faible devant les deux autres dimensions. Pour donner un ordre de grandeur dans la Figure 2.2, les dimensions  $L$  et  $l$  valent respectivement 1.5 cm et 2.5 mm, quand l'épaisseur de la cavité  $2H_0$  vaut  $15\ \mu\text{m}$ . Les gouttes adoptent alors une forme de pancake.

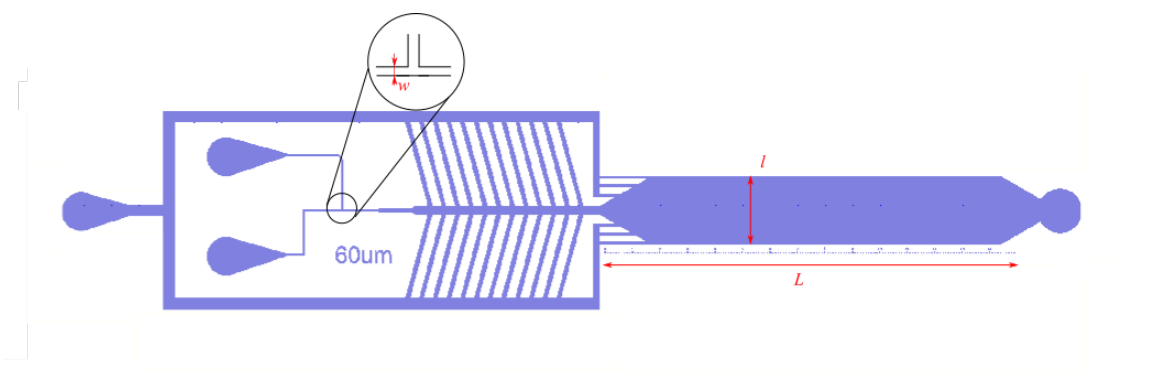


FIGURE 2.2 – Négatif du masque utilisé pour la fabrication du moule du microsystème. Les canaux de l'entrée principale sont larges devant le reste de la géométrie afin de limiter la pression dans ces zones et ainsi éviter que le microsystème ne se décolle.

Les gouttes sont produites en utilisant la jonction T. Leur taille et leur fréquence de production peuvent être ajustées en modifiant les paramètres de contrôle  $P_{eau}$  et  $P_{huile}$  [HMJ14].

Pour obtenir les gouttes les plus monodisperses possibles, il est nécessaire de rester dans un ré-

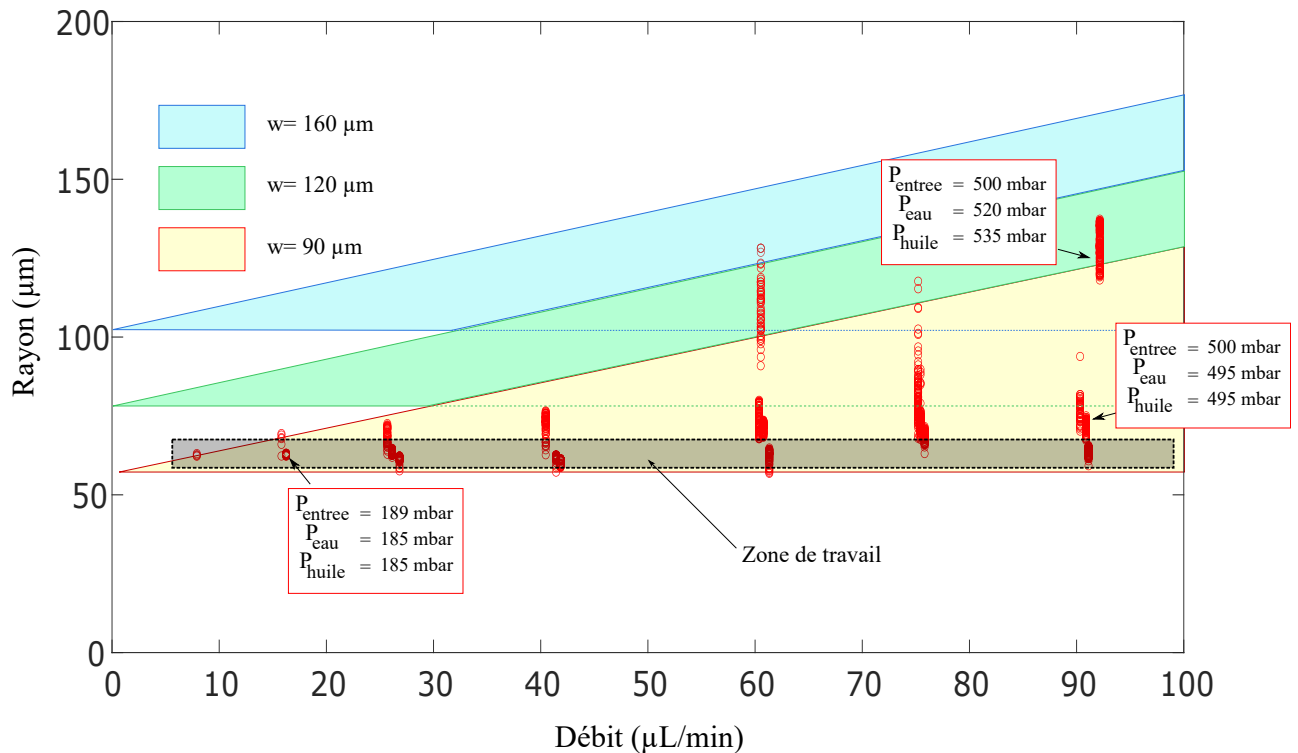


FIGURE 2.3 – Représentation schématique des couples rayons/débits atteignables suivant la taille de canal de jonction T. Les zones en couleurs représentent l'espace atteignable pour un microsystème à taille  $w$  donnée dans le cadre de nos hypothèses (cf Chapitre 2, section 2.1.3). Les points rouges sont des données expérimentales obtenues pour un microsystème de taille de canal  $w = 90 \mu\text{m}$  en faisant varier les pressions  $P_{\text{eau}}$  et  $P_{\text{huile}}$ . Les données sont extrapolées pour les systèmes dont la taille de canal est plus grande.

gime de pincement qui est le régime garantissant stabilité et fréquence de fabrication de goutte adéquate [ABS03, TRAQ01].

### 2.1.2 Fabrication des gouttes dans la jonction T

Les paramètres de contrôle de notre expérimentation sont le **rayon de la goutte** et la **vitesse de la phase porteuse**. Pour explorer différentes gammes de ces paramètres nous pouvons jouer sur les pressions d'entrées de nos systèmes, ainsi que sur la taille de canal de notre jonction T. Figure 2.3 schématise les espaces débit/rayon accessibles pour différentes tailles de canaux, et vérifiant les deux hypothèses nécessaires à notre étude (3 et 4 que l'on verra peu après), i.e. une goutte reste circulaire durant son déplacement et deux gouttes successives sont suffisamment éloignées l'une de l'autre pour négliger toute interaction hydrodynamiques entre elles, permettant de construire ce diagramme.

Les points rouges sur la Figure 2.3, sont des données expérimentales obtenues pour un microsystème de taille  $w = 90 \mu\text{m}$ . Chaque point représente une goutte, son rayon moyen mesuré au cours de son passage dans les champs d'observation reporté au débit total  $Q_{\text{tot}}$  mesuré au cours de l'acquisition de la vidéo. Il est possible de jouer sur  $P_{\text{eau}}$  et  $P_{\text{huile}}$  pour faire varier la taille des gouttes. À hauts débits, cela marche très bien, en témoignent les deux encadrés blancs les plus à droites de la Figure 2.3. À pression  $P_{\text{entree}}$  constante, faire varier  $P_{\text{eau}}$  et  $P_{\text{huile}}$  ne change que très peu le débit total, mais cela

peut faire varier grandement la taille des gouttes. Néanmoins, à bas débits,  $P_{eau}$ , plus précisément,  $Q_{eau}$  n'est plus négligeable devant  $Q_{entrée}$ . Or, faire varier  $P_{eau}$  et  $P_{huile}$  joue à la fois sur la taille des gouttes et sur la fréquence de créations de celles-ci. Le débit  $Q_{entrée}$  a pour rôle d'imposer la vitesse de la phase porteuse mais également de diluer les gouttes i.e. de les espacer les unes des autres à l'aide de la forme en peigne que nous avons dessinée. Cette géométrie a pour but de séparer les gouttes et de les accélérer progressivement. En effet, les débits d'eau et d'huile  $Q_{eau}$  et  $Q_{huile}$  sont faibles (cf Chapitre 2) et sensiblement constants au cours de l'expérimentation. À grandes vitesses de phase externe, c'est-à-dire un débit d'entrée élevé, l'accélération que va subir la goutte est très importante et peut finir par la fractionner. La géométrie en peigne évite cela. La goutte accélère progressivement avant d'arriver et de freiner au niveau du divergent à l'entrée de la cavité. À basses vitesses, les deux débits  $Q_{eau}$  et  $Q_{entrée}$  étant du même ordre de grandeur, l'accélération est très faible. Nous n'arrivons plus à séparer les gouttes les unes des autres. Nous ne respectons plus l'hypothèse d'indépendance hydrodynamique. Nous ne pouvons plus exploiter les données, ce qui explique la forme triangulaire des espaces accessibles.

La solution que nous avons adoptée est de choisir la gamme de rayons, pour une géométrie donnée, accessible pour la plus grande gamme possible de débits. Cela correspond à la zone de travail indiquée en Figure 2.3. Ainsi, au cours d'une expérimentation sur un microsystème à taille de canal de jonction T donnée, nous jouons sur le rapport de pressions  $P_{eau} / P_{huile}$  pour conserver un rayon constant sur toute la plage de débit explorée. Pour faire varier le rayon dans nos expérimentations nous changeons de microsystème avec  $w$  différent.

L'indépendance hydrodynamique, discutée ci dessus permet d'assurer que la vitesse d'une goutte est indépendante de la présence éventuelle d'autres gouttes. Il est connu que les gouttes produisent un écoulement de type dipolaire qui conduit à un effet peloton. Leur vitesse n'est alors plus fonction seulement de la vitesse de la phase porteuse, mais également de la vitesse et de la distance des gouttes voisines. Il a été mis en évidence expérimentalement que si la distance séparant les centres de deux gouttes est suffisante l'interaction disparaît [SLRT14]. En effet d'après le papier de Shen *et al.*, si on note  $r$  la distance centre à centre de deux gouttes successives, et  $R$  le rayon de chaque goutte, on n'observe plus d'interactions hydrodynamiques dès lors que  $r/R > 5$ .

Ainsi, les paramètres de l'expérience pour le contrôle de la taille et fréquence de production des gouttes s'obtiennent en :

- fixant  $P_{huile}/P_{eau}$  sensiblement égal à 1 et en faisant varier la largeur de canal  $w$  (Figure 2.2) de la jonction T. Ainsi le rayon  $R$  des gouttes est fixé au cours d'une expérience. Typiquement pour un canal  $w = 90 \mu\text{m}$  nous obtenons des gouttes de rayon  $R \simeq 65 \mu\text{m}$ .
- imposant la pression d'entrée  $P_{entrée}$  qui fixe ainsi débit de phase porteuse dans le microsystème (i.e.  $Q_{entrée}$  est très grand devant  $Q_{eau}$ ). Cela permet également de séparer les gouttes produites et d'éviter l'effet de type peloton [SLRT14].

### 2.1.3 Cahier des charges expérimental

#### Objectifs

Ce dispositif expérimental a été mis en place afin de répondre aux objectifs ci-dessous pour permettre une mesure fiable de la mobilité,  $\beta$ , des gouttes. Nous discuterons en particulier les précautions expérimentales que nous avons dû prendre pour assurer que les contraintes suivantes soient bien respectées :

1. Le rapport  $\frac{R_{goutte}}{H_o}$  reste grand devant 1 ( $>5$  à minima), afin de garantir l'hypothèse de gouttes confinées,
2. les dimensions planes de la cellule de Hele-Shaw sont suffisamment grandes pour éviter des interactions aux parois autres que celles sol/plafond,
3. deux gouttes successives demeurent éloignées suffisamment l'une de l'autre afin d'éviter des interactions hydrodynamiques (distance  $> 5R$ ),
4. les gouttes doivent demeurer circulaires au cours de l'expérimentation,
5. la déformation de la cavité doit être limitée afin de garantir une variation locale de la section la plus faible possible.

### 2.1.4 Fabrication

Beaucoup de soin a été consacré à la fabrication des moules en silicium. Suivant les solutions utilisées, les films de lubrification de part et d'autre de la goutte (sol/plafond) peuvent être très fins (de l'ordre de la vingtaine de nanomètres). Ainsi, les mesures sont sensibles à la rugosité des systèmes et donc des moules.

#### Protocole de photolithographie

Un procédé de micro-fabrication classique est utilisé : la photolithographie [Mad18]. Cette étape a été réalisée à l'École Normale Supérieure de Rennes, et nous tenons à remercier ici Florence Razan qui nous a permis d'utiliser la salle blanche afin d'y fabriquer les moules nécessaires à cette étude.

Les étapes de fabrication sont listées ci-dessous, réalisées en salle blanche, en atmosphère contrôlée et avec toutes les dispositions prises pour travailler dans un tel milieu.

1. Nettoyage d'un wafer de silicium (2" ou 4" suivant l'usage) : 30 min dans un bain à ultrasons à 80°C dans une solution d'eau distillée et 5% d'Hellmanex™ III.
2. Rinçage à l'eau distillée : le wafer doit être hydrophobe.
3. Séchage : 2 min sur plaque chauffante à  $T \sim 150^\circ C$  sous hotte soufflante à flux laminaire.
4. Refroidissement : laisser en dehors de la plaque chauffante quelques minutes pour que le wafer soit à température ambiante.
5. Dépôt de résine photosensible négative Su8 3025 : sortie au préalable du réfrigérateur pour qu'elle soit à température ambiante. Le dépôt est fait à la tournette. Le programme suivi est celui conseillé par le fabricant et est présenté Figure 2.5.



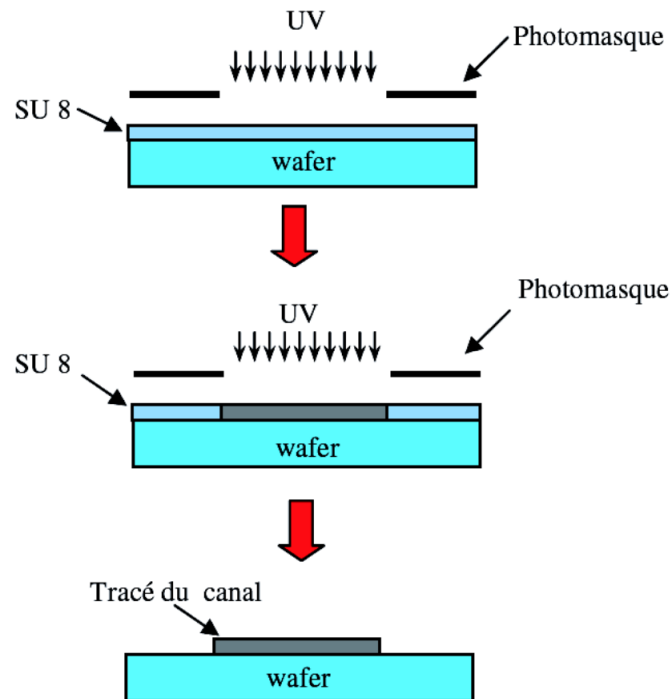


FIGURE 2.4 – Étapes de photolithographie où l'on vient insoler les parties de la résine que l'on veut conserver à l'aide d'un Photomasque positionné sur une plaque en quartz qui contrairement au verre, laisse passer le rayonnement ultra-violet. Extraite de [Rei17].

6. Évaporation des solvants de la résine : cuisson sur plaque chauffante dont la durée dépend de l'épaisseur de la couche voulue, ici  $15\ \mu\text{m}$ . Soit 1 min à  $T \sim 65^\circ\text{C}$  puis 5 min à  $T \sim 95^\circ\text{C}$ . La montée progressive se fait pour éviter l'apparition de contraintes résiduelles dans le matériau.
7. Insolation de la résine : insoler avec un UV-KUB de chez KLOÉ. Les paramètres sont : une épaisseur de substrat (épaisseur de wafer + épaisseur de résine déposée) de  $540\ \mu\text{m}$  et une distance de masquage (épaisseur du masque + distance voulue, ici nulle) de  $180\ \mu\text{m}$ . La puissance de la lampe est de  $40\text{mW}/\text{cm}^2$  environ. Le masque est posé sur une plaque de quartz comme montré en Figure 2.4, qui a une absorbance dans l'ultra-violet bien plus faible que le verre, mais tout de même non négligeable. Nous insolons donc 40 s à 100% de puissance.
8. Cuisson post-exposition : nécessaire pour fournir l'énergie nécessaire à la résine insolée afin de réticuler. À nouveau 1 min à  $T \sim 65^\circ\text{C}$  puis 5 min à  $T \sim 95^\circ\text{C}$  sur plaque chauffante.
9. Développement : un bain d'environ 5 minutes dans du développeur (1-Methoxy-2-Propanol acétate) sous agitation permet de dissoudre la partie de la résine non réticulée.
10. Rinçage : jet de développeur propre dans une pipette. Puis jet abondant d'isopropanol.
11. Séchage à l'air comprimé. Ne pas hésiter à reproduire les 3 dernières étapes en cas de traces résiduelles de résine non réticulée.
12. Recuit à  $T \sim 95^\circ\text{C}$  sur plaque chauffante pour finir de sécher et libérer les potentielles contraintes résiduelles dans le matériau.

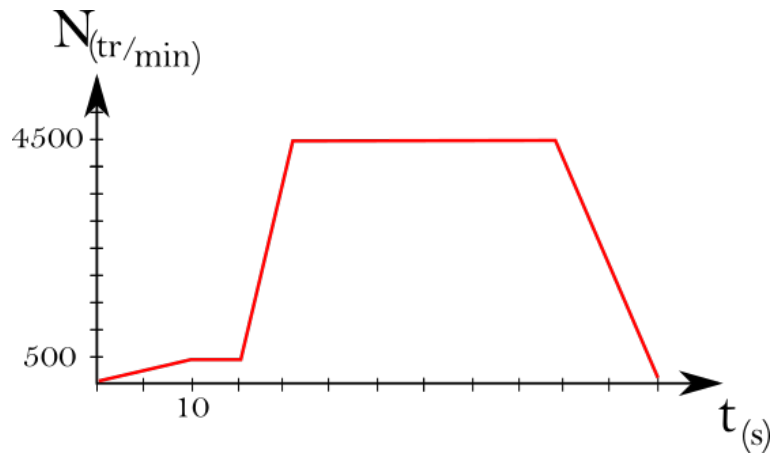


FIGURE 2.5 – Profil de vitesse du programme de la tournette. Montée progressive à 500 rotations par minute (rpm) sur 10 secondes, stationnaire sur 5 seconde pour homogénéiser la couche de résine. Montée à la vitesse de consigne, ici 4500 rpm, avec une accélération de 500 rpm/s. Stationnaire 30 sec à la vitesse de consigne puis descente jusqu'à l'arrêt.

### Mesures au profilomètre

Une fois ces étapes réalisées, nous obtenons un moule utilisable pour la fabrication des micro-systèmes. Dans l'objectif de connaître la vitesse de la phase porteuse dans la cavité nous devons connaître précisément la hauteur du moule. Il est donc passé systématiquement sous un profilomètre mécanique (technique de mesure de profil de surface avec contact par balayage d'un stylet, i.e. une fine pointe en diamant, sur l'échantillon). Les profils mesurés permettent l'analyse de forme et d'état de surface (rugosité, ondulation, texturation). Sur un moule en silicium nous avons placé jusqu'à 6 motifs différents. Chaque motif est passé au profilomètre afin de mesurer et de quantifier 3 choses :

- Sa hauteur absolue : qui peut varier en raison d'une non homogénéité de l'épaisseur de résine après l'étape de la tournette. Il s'agit de la plus importante source d'erreur sur la vitesse de notre fluide porteur, nous le verrons plus bas. Cette variation dans la suite de cette étude est donnée ici : tous les systèmes ont une hauteur moyenne absolue comprise entre  $14.7 \mu\text{m}$  et  $15.1 \mu\text{m}$ .
- Sa pente relative : la différence de hauteur possible entre l'entrée et la sortie de la cavité de Hele-Shaw. Nous avons systématiquement rejeté tout système dont la différence de hauteur entrée/sortie était supérieure à 50 nm.
- Sa rugosité : précisément, le critère qui nous a intéressé est la régularité, c'est-à-dire la moyenne des 5 plus gros écarts entre un pic et un creux. En effet, ce sont ces aspérités qui peuvent, lors de l'expérimentation, piéger ou casser les gouttes. Nous avons systématiquement rejeté tout système dont la régularité dépassait les 20 nm.

### Réalisation des canaux

Une fois le moule effectué, il faut suivre le protocole donné ci-dessous pour fabriquer les micro-systèmes. Il s'agit d'un protocole classique de fabrication de puces en Polydiméthylsiloxane (PDMS) [Fuj02].

1. Mélanger le PDMS à un agent réticulant (1 :10 en masse).

2. Mettre à dégazer sous vide 15 min.
3. Couler sur le moule au préalable emballé dans de l'aluminium.
4. Dégazer à nouveau sous vide 15 min.
5. Enfourner 2h à 70° C.

Une fois que les canaux sont moulés il faut alors permettre l'admission des fluides et sceller le tout sur une lamelle en verre. On suit alors les étapes ci-dessous, le détail de chaque étape est discuté après.

1. Décollage des moulages PDMS du wafer en silicium,
2. Poinçonnage au niveau des admissions et des sorties fluidiques,
3. Nettoyage des lamelles dans une solution Piranha,
4. Scellage à l'aide d'un collage plasma
5. Remplissage du microsystème.

Avant de sceller les canaux sur des lamelles de verres, il est nécessaire de percer au niveau de chaque entrée à l'aide d'un poinçonneur des trous d'admissions pour les fluides. Ici, des trous percés à 750  $\mu\text{m}$  de diamètre pour pouvoir y planter des gauges métalliques (tubes creux métalliques rigides qui permettent de faire la liaison entre les différents organismes du système fluide) de 1 mm de diamètre extérieur. Le poinçonneur doit être changé régulièrement pour éviter des fissures dans le bloc de polymère entraînant des fuites. En effet le poinçonneur se détériore au fur et à mesure de son utilisation, son tranchant s'émousse et le risque de fissure devient important. Le collage sur les lamelles de verre se fait par collage via un traitement plasma des deux surfaces. Cette opération consiste à ioniser une atmosphère basse pression d'oxygène pour créer des radicaux O. Ces derniers vont substituer des groupements silanols aux groupements méthyles. Lorsqu'elles sont activées dans le plasma d'air ou d'oxygène, les liaisons hydrogène non polaires des polymères plastiques sont remplacées par des liaisons oxygène. Ces dernières peuvent fournir des électrons de valence libres pour lier les molécules. Lorsque cette étape est terminée, on scelle les canaux en mettant le PDMS en contact avec la lamelle de verre, la cohésion étant assurée par le traitement plasma des deux surfaces. Les silanols des deux surfaces se condensent ensuite pour aboutir à une liaison covalente Si-O-Si et donc à un collage irréversible. Les lamelles sont lavées et traitées au préalable au Piranha (Acide sulfurique à 95% / Eau oxygénée à 50% - 2/3, 1/3 en masse) pendant 5 minutes avant d'être rincées dans deux bains d'eau différents (trentaine de secondes chacun). Les lames sont ensuite séchées à l'air comprimé et peuvent être stockées dans de l'eau distillée quelques jours. La propreté des surfaces est un élément déterminant pour la bonne exploitation des images en microscopie interférentielle qui est l'étude prépondérante de la deuxième partie de cette thèse de doctorat.

Le procédé de fabrication des canaux est schématisé en Figure 2.6. Les systèmes ainsi obtenus sont hydrophiles à la sortie du plasma, mais le PDMS et le verre étant naturellement hydrophobes, ceux-ci tendent à le redevenir. En conséquence, le canal est systématiquement rempli d'eau après collage et utilisé dans la foulée pour assurer une bonne hydrophilie dans le cas où la phase externe est aqueuse. Le remplissage se fait par capillarité en déposant une goutte d'eau distillée sur un des trous d'admissions remplissant le canal en quelques secondes.

Les canaux sont prêts à être utilisés. Il est temps de se pencher sur la génération des gouttes et sur l'écoulement de ces dernières.

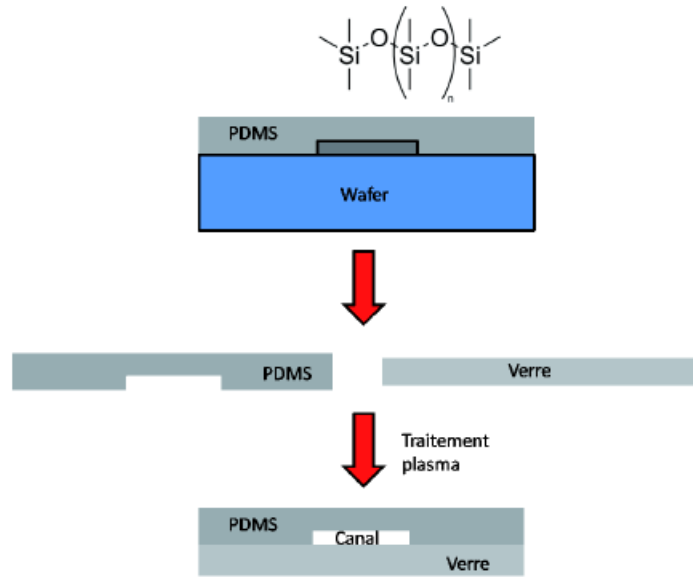


FIGURE 2.6 – Étapes de collage et de scellement des microsystèmes en PDMS. Une fois passées au plasma les surfaces de la lamelle de verre et de celle des canaux devront être mises en contact et l'adhésion sera définitive. Extrait de [Hue15].

### 2.1.5 Montage expérimental

La génération de gouttes, ainsi que l'adjonction de la phase porteuse dans le système sont ajustées par un contrôleur en pression (MFCS, Fluigent). Les avantages de ce dernier, ainsi que les raisons qui ont poussé à son adoption sont discutées peu après. La cellule de Hele-Shaw utilisée fait  $L = 1.5$  cm de longueur et  $l = 2500 \mu\text{m}$  de largeur. Lors de la fabrication du moule, décrite plus haut, nous obtenons une hauteur de cavité  $2H_o = 15 \mu\text{m}$ . La largeur des canaux d'admissions  $w$  varie et nous avons le choix entre ces différentes valeurs : 60, 90, 120, 150, 200  $\mu\text{m}$ . Cette distribution de valeurs nous permet de choisir la taille des gouttes à un rapport de  $P_{huile}/P_{eau}$  donné. Respectivement, ces largeurs donnent des gouttes dont les rayons valent en moyenne : 45  $\mu\text{m}$ , 60  $\mu\text{m}$ , 75  $\mu\text{m}$ , 90  $\mu\text{m}$  et 105  $\mu\text{m}$ , un histogramme de rayons est donné Figure 2.15. Ainsi le rapport  $\frac{R_{goutte}}{H_o}$  reste toujours supérieur à 5. Il est à noter que pour des gouttes trop grandes, on observe une déformation des gouttes à très hautes vitesses : elles ne restent pas circulaires. Enfin, le rayon des gouttes étant bien plus faible que la longueur ou la largeur de la cavité, nous respectons bien le critère sur l'éloignement des parois. C'est pourquoi nous nous sommes contenus à ces tailles de canaux.

Deux systèmes de génération de gouttes sont communément utilisés : la jonction T et le *flow-focusing*. Ces deux méthodes fonctionnent très bien et ont chacune des avantages vis à vis de l'autre. Pour répondre au point 3, i.e. l'éloignement des gouttes, nous avons décidé de générer les gouttes à l'aide d'une jonction T qui des deux méthodes possède la fréquence de fabrication la plus faible. Malgré cela, notamment à bas débits et à basses vitesses, il est difficile de séparer les gouttes suffisamment tout en gardant une taille constante au cours de notre expérimentation.

Enfin, la déformation ou non de notre cavité est une question qui a demandé plus de réflexions que les précédentes et est discutée ci-dessous.

## 2.1.6 Comparaison pousse-seringue / contrôleur en pression

### Choix de mesures de débits

Le choix de l'outil utilisé afin d'imposer le débit de la phase porteuse a nécessité une comparaison entre différents équipements pour garantir la mesure la plus fiable possible. Pour des raisons pratiques, la génération des gouttes se fait à l'aide d'un contrôleur en pression. En effet, la variation de débit se fait alors par une variation continue de la pression. Pour un pousse-seringue, la consigne étant en débit, une variation de la commande induit un saut de pression au sein du système ce qui complique la manœuvre. Enfin, une journée d'expérimentations demande très peu de volume de fluides pour les gouttes : de l'ordre du mL pour une journée d'expérience ce qui est commode au vu de la taille des réservoirs proposés par Fluigent.

Pour imposer la vitesse de fluide de la phase externe, il est nécessaire d'imposer un débit en entrée. Dans les études menées par Benjamin Reichert [Rei17], le débit d'entrée était imposé par un pousse seringue et la mesure du débit total était faite en sortie de microsysteme. Cette mesure est effectuée par un débitmètre Flow-Unit de chez Fluigent. L'inconvénient de ce montage expérimental, est qu'à la sortie, le débitmètre reçoit un mélange de phase externe aqueuse et de phase disperse, les gouttes d'huile. L'outil ne fonctionne correctement que pour une phase unique, sinon la mesure de débit se trouve très bruitée. L'idée a été de déporter la mesure de débit de fluide aux entrées. Si l'on reprend les débits exposés sur la Figure 2.1 soit respectivement  $Q_{eau}$ ,  $Q_{huile}$ ,  $Q_{entree}$  et  $Q_{tot}$ , le débit d'entrée de phase continue, celui d'huile, celui de l'entrée principale et le débit total, nous obtenons la relation suivante par conservation de la masse :

$$Q_{tot} = Q_{entree} + Q_{eau} + Q_{huile} \quad (2.1)$$

Il n'y a pas de moyens ergonomiques et simples à mettre en œuvre pour mesurer le débit d'huile. Le seul moyen serait à l'aide d'une balance de précision, de relier la perte de masse au débit d'huile. Cependant, par un calcul d'ordre de grandeur simple, il est possible de négliger le débit d'huile devant le débit de phase porteuse. En effet si l'on considère des gouttes de rayon  $R = 100 \mu\text{m}$ , fabriquées à une fréquence  $f$  de 5 gouttes par seconde (une fréquence typique "haute" des expérimentations), circulant dans une cellule de Hele-Shaw de hauteur  $15 \mu\text{m}$ , et en faisant l'hypothèse de considérer chaque goutte comme un cylindre de hauteur  $2H_o$  de rayon  $100 \mu\text{m}$  alors on obtient un débit d'huile qui vaut :

$$Q_{huile} = \pi R^2 \cdot 2H_o \cdot f \sim 0.1 \mu\text{L} \cdot \text{min}^{-1} \quad (2.2)$$

Ce débit d'huile correspond à une borne *max*. En effet une telle fréquence de gouttes n'est effectuée qu'à très hauts débits de phase externe, elle n'est jamais utilisée à de bas débits, où elle est diminuée d'un ordre de grandeur (i.e. une goutte toute les deux secondes). De fait, le débit d'huile est négligeable devant le débit de phase externe qui évolue quant à lui de  $[0.7 - 120] \mu\text{L}/\text{min}$ .

Dès lors, l'idée est de mesurer uniquement en entrée le débit de la phase aqueuse de notre système à l'aide des débitmètres Flow-Unit, supprimant ainsi le bruit de passage des gouttes. On considère donc dans la suite de ce manuscrit :

$$Q_{tot} \simeq Q_{entree} + Q_{eau} \quad (2.3)$$

Ainsi, lorsque l'on parlera de débit de phase porteuse, ou plus simplement de débit ci-dessous, cela fera référence à ce débit total  $Q_{tot}$ . En sortie il ne reste plus qu'à diriger l'écoulement bidisperse vers une poubelle.

### Comparaison pousse seringue/ contrôleur en pression.

Pour sélectionner la mise en écoulement de notre phase externe nous avons comparé 3 outils à notre disposition :

- un pousse-seringue *Harvard Apparatus pico plus elite*,
- un pousse-seringue à actionneur linéaire *Nemesys* de *Cetoni*,
- notre contrôleur en pression 4 entrées *MFCS* de chez *Fluigent*.

Nous avons, pour chaque système, branché en sortie de seringue pour les pousse-seringues ou en sortie de tubulure pour le contrôleur en pression, un débit-mètre Flow-Unit, et avons soumis chacun des systèmes à un protocole de mise en écoulement contenant montée en débit, descente et arrêt. Les deux pousse-seringues présentent sensiblement les mêmes réponses. À notre surprise le pousse-seringue Cetoni n'avait pas une réponse fiable, nous observions des variations importantes du débit en sortie (de l'ordre de 10% de la consigne). Dans la Figure suivante 2.7 ne sont montrées que les réponses du pousse-seringue Harvard et du MFCS. Deux types de seringues ont été testés dans le cadre des essais avec pousse seringues : des VWR de 1 et 10 mL, dont les diamètres intérieurs et la course étaient paramétrés dans le pousse-seringue utilisé. Aucune différence notable n'est à remarquer entre les deux seringues. La première chose qui est à noter est que le pousse-seringue n'atteint

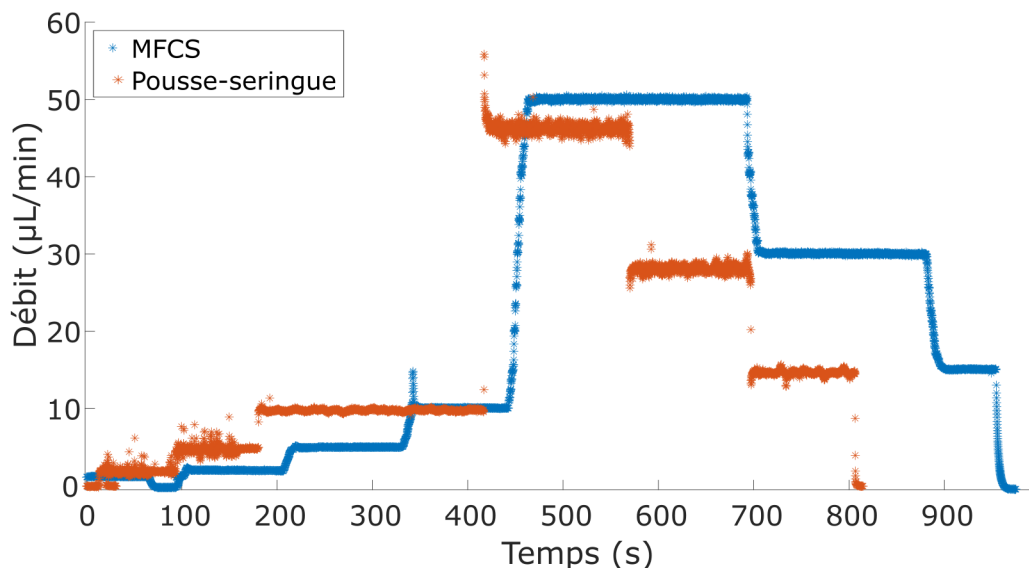


FIGURE 2.7 – Débit mesuré par une unité Flow-Unit de chez Fluigent en sortie de seringue (Pousse-seringue) ou de récipient à fluide (MFCS) en fonction du temps. Variations de consigne de 0 à 50  $\mu\text{L}/\text{min}$ . Précisément, nous changeons manuellement la consigne sur le pousse seringue soit 2.5  $\mu\text{L}/\text{min}$ , 5  $\mu\text{L}/\text{min}$ , 10  $\mu\text{L}/\text{min}$ , 50  $\mu\text{L}/\text{min}$ , 30  $\mu\text{L}/\text{min}$ , 15  $\mu\text{L}/\text{min}$  et 0  $\mu\text{L}/\text{min}$ . Avec le contrôleur en pression, on ajuste la pression jusqu'à obtenir le débit désiré.

pas la consigne. Il y a une erreur statique non négligeable, qui peut s'exprimer en pourcentage de la consigne et que nous avons mesurée de 5 à 10% à la baisse. Ainsi, pour une consigne à 50  $\mu\text{L}/\text{min}$

nous obtenons une moyenne de débit de  $46.2 \mu\text{L}/\text{min}$ . Dès lors, il apparaît obligatoire de mesurer le débit en entrée, et de ne pas se fier aux consignes données par le pousse-seringue. Sur ces courbes, nous pouvons également constater que la stabilité du MFCS joue en sa faveur. Nous avons donc pris la décision de n'utiliser qu'un seul et même contrôleur en pression 4 voies MFCS. Seules 3 voies seront utilisées, deux pour générer les gouttes (une huile, une eau) et la troisième pour imposer un débit de phase externe dans le microsysteme.

Nous avons ainsi assuré la stabilité de notre mesure de débit. Un paramètre reste à prendre en compte pour pouvoir maîtriser la vitesse de phase externe : la section de la cavité. Ainsi, il est nécessaire de s'assurer que notre microsysteme ne se déforme pas sous la pression.

### 2.1.7 Déformation de la cavité

D'après les travaux d'Axel Huerre [Hue15], nous avons utilisé un PDMS de type SYLGARD™ 184, qui est un polymère dont les chaînes sont triées pour être les plus monodisperses possibles. Ainsi, le module d'Young de cet élastomère est plus élevé (d'un facteur 2 à 3) qu'un PDMS de gamme moindre. Le module d'Young du SYLGARD est environ égale à 2 MPa contre 0.8 MPa pour du PDMS standard type RTV 615, réduisant ainsi la déformation du système. Le fait d'avoir déporté la mesure de débit en amont du microsysteme nous permet également de ne pas mettre de sortie au système : nous perçons directement la cavité en sortie à l'aide d'un poinçonneur plus gros (1.5 mm de diamètre) et nous épongeons de temps à autre le liquide qui sort au cours de l'expérimentation.

Ce court-circuit de la sortie nous permet de réduire drastiquement la résistance hydraulique de notre microsysteme et de rendre négligeable sa déformation devant la variation intrinsèque de hauteur d'un moule à l'autre.

Pour mesurer cette déformation nous avons utilisé un protocole classique de mesure par absorbance/fluorescence.

Pour ce faire nous allons, pour différents débits (ceux typiquement utilisés dans les expériences, i.e. de  $0.5$  à  $120 \mu\text{L}/\text{min}$ ), mesurer l'intensité lumineuse d'une solution de fluorescéine obtenue dans la cellule d'observation. La fluorescéine est une molécule utilisée dans l'industrie pharmaceutique, mais également en microfluidique pour ses propriétés, comme son nom l'indique de fluorescence. Exposée aux UV, elle émet un rayonnement dans le vert-jaune ( $\sim 530 \text{ nm}$ ). La concentration de fluorescéine est de  $0.4 \text{ mM}$  dans de l'eau distillée pour éviter l'auto-inhibition. Très visible, même en petites quantités, elle permet par la loi de Beer-Lambert de déterminer la hauteur de notre cavité à différents débits. En effet, à ces concentrations l'intensité de fluorescence est directement proportionnelle à l'épaisseur du canal [Hue15].

Les deux configurations que nous avons confrontées sont les suivantes :

- avec le débitmètre en sortie,
- sortie à pression atmosphérique i.e. à l'air libre.

Figure 2.8 et Figure 2.9, donnent respectivement les profils d'intensité relative (i.e. normalisés par rapport au profil d'intensité à débit nul) à différents débits dans une section transverse à l'écoulement. Cette comparaison nous conforte dans l'idée que les cavités ne se déforment pas lors de l'expérimentation sans gauge et sans tuyau de sortie. Ainsi, la mesure de débits en entrée permet de connaître avec précision la vitesse du fluide porteur dans le microsysteme.

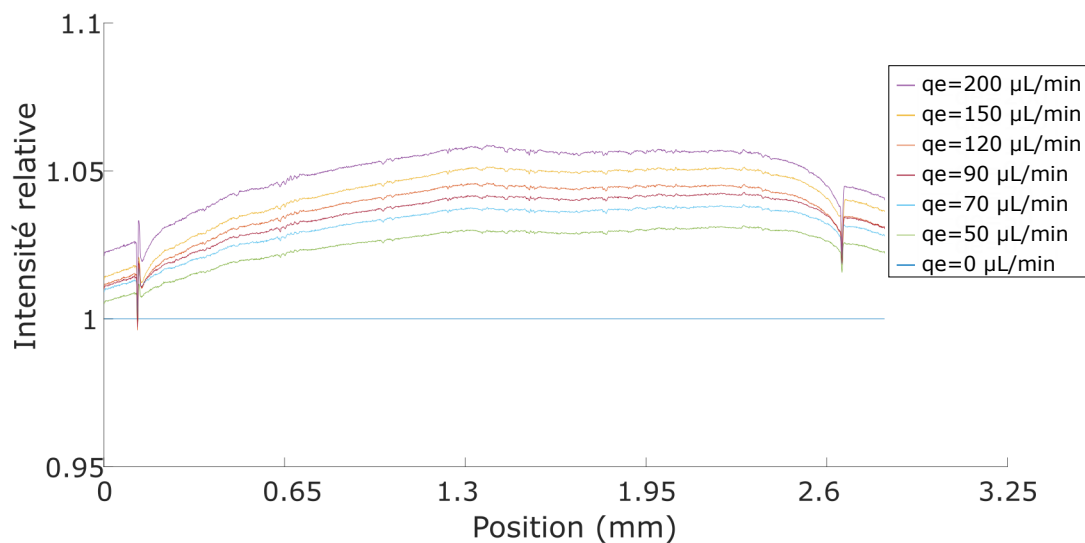


FIGURE 2.8 – Profils d’intensité relative avec ensemble gauge + tuyau en sortie.  $q_e$  représente le débit d’entrée (en  $\mu\text{L}/\text{min}$ ) de la phase externe au niveau de l’entrée principale

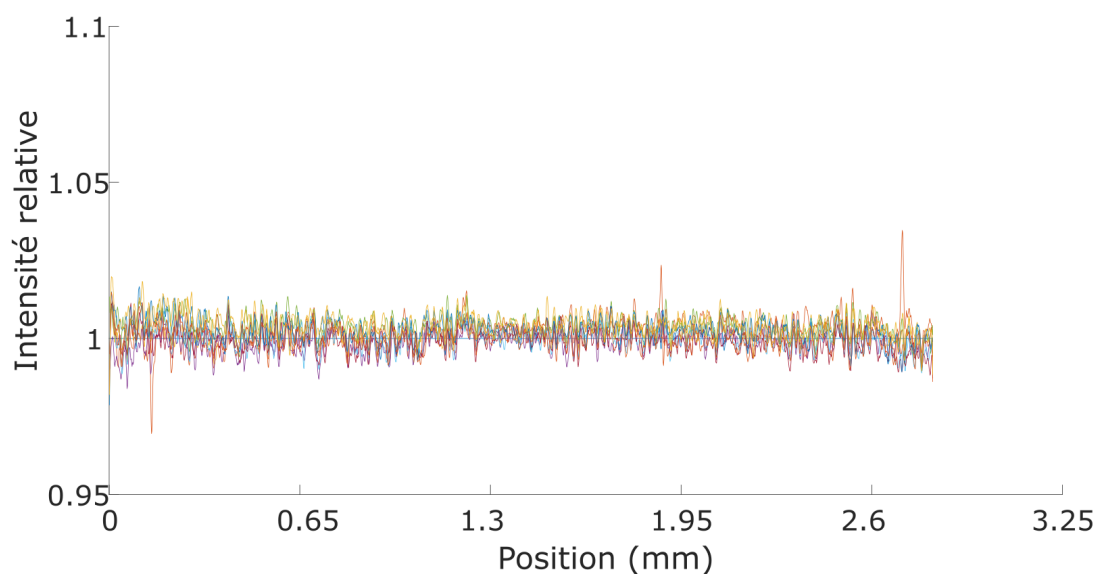


FIGURE 2.9 – Profils d’intensité relative avec sortie à pression atmosphérique pour les mêmes débits, sans gauge, ni tuyau de sortie.

### 2.1.8 Dispositif optique et microscope

Maintenant que nous contrôlons les paramètres expérimentaux, il reste à exploiter les mesures effectuées. Plus tard dans ce manuscrit, seront décrits les choix faits pour tout ce qui concerne l’optique, les filtres ou encore l’acquisition de données (caméra). À ce stade, les seules contraintes prises en compte sont la taille du capteur optique et le grossissement de l’objectif utilisé afin de pouvoir extraire les données.



## Microscope

Pour observer les gouttes dans les cellules microfluidiques, nous utilisons un microscope inversé *DMirb* de chez Leica. Les expérimentations décrites dans cette première partie de thèse se font avec un éclairage par transmission. Cela signifie que l'échantillon est placé au travers du chemin optique, et que, pour des raisons de transparence, nous pouvons observer et discerner ce qu'il se passe dans notre cavité. Nous éclairons en lumière blanche, via une ampoule halogène et observons au travers d'un objectif de grossissement  $\times 5$ . Figure 2.10 montre un train de gouttes qui s'écoule dans la cavité dans cette configuration. Ici l'image est une image recadrée, typique de celles que nous traitons pour des raisons évidentes de gains de stockage et de temps de traitement (l'information étant contenue dans les gouttes et non dans le reste de la fenêtre d'observation).

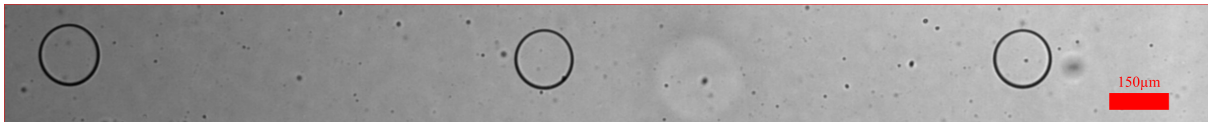


FIGURE 2.10 – Gouttes navigant dans la cellule de Hele-Shaw. Il s'agit de gouttes d'huile fluorée FC72 poussées par une phase aqueuse i.e. solution d'eau distillée de sodium dodecyl sulfate à 2 CMC.

La caméra que nous utilisons est une caméra de technologie SCMOS, modèle *Zyla* de chez Andor. Son capteur est un capteur rectangulaire de  $5.5 Mpix$  soit 2560 par 2160 pour des pixels carrés de coté  $6.5 \mu m$ . Nous avons alors le rapport de taille dans l'espace image de la caméra et l'espace objet de l'échantillon :

$$\begin{array}{c|c} \text{Pixel} & \text{mm} \\ \hline 2560 & \frac{16.64}{5} \\ 1 & 1.3 \cdot 10^{-3} \end{array} \quad (2.4)$$

Nous avons également utilisé une mire optique au cours d'une expérimentation qui valide le ratio pixel/mm obtenu par les données constructeurs. Nous avons donc :

$$1 \text{ pix} \simeq 1.3 \mu m$$

Maintenant que nous avons les positions successives des gouttes dans chaque image, il est possible de déterminer la vitesse de la goutte à chaque pas de temps. Deux questions se posent alors :

- Le pas de temps est-il fiable et constant ?
- Comment détecter les gouttes dans l'image ?
- Comment différencier deux gouttes présentes dans deux images successives ?

La première question est aisée, nous reviendrons plus tard sur les caractéristiques caméra et la démarche de choix qui a précédé, mais nous n'utilisons pas la caméra au maximum de ses capacités en termes de vitesses d'écriture. Dès lors, les pas de temps indiqués ont été vérifiés et sont corrects, et ce sur tout l'intervalle de fréquence d'acquisition utilisé. Précisément nous avons comparé les pas de temps avec et sans signal de déclenchement (*trigger*) extérieur, pour une multitude de fréquences nous n'avons jamais observé le saut d'une image.

## Détection des gouttes

La deuxième question nécessite un traitement d'image. Du fait de la grande quantité de gouttes obtenues, il est impératif d'automatiser le traitement et la détection de celles-ci. Pour pouvoir mesurer la vitesse des gouttes, il faut d'abord les détecter dans une image. Nous avons mis au point un traitement d'image de reconnaissance des gouttes. Il est alors possible d'extraire le centre de masse de chacune d'entre elles à chaque intervalle de temps et de déterminer ainsi leur vitesse axiale et transverse. Ici, seule la démarche globale est décrite.

Figures 2.11, 2.12, 2.13 et 2.14 donnent les 4 étapes de traitement d'images mises en place pour la détection des gouttes. Dans un premier temps, nous soustrayons le fond pour ne faire ressortir que les gouttes. En moyennant la vidéo (~ 300 images) nous obtenons un fond satisfaisant. Dès lors les gouttes ressortent bien sur le fond gris comme en atteste Figure 2.12 ci-dessous. Un seuil est appliqué à l'image pour détecter le contour de chaque goutte de l'image. Enfin un filtre, une fermeture de contour et un remplissage de trou permettent d'obtenir Figure 2.14

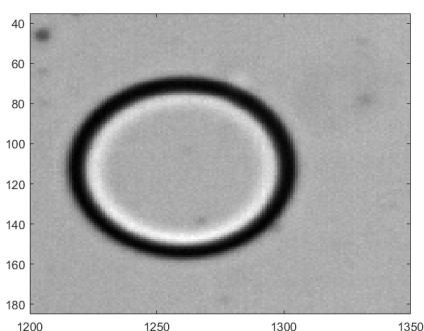


FIGURE 2.11 – Image brute, centrée sur la goutte.

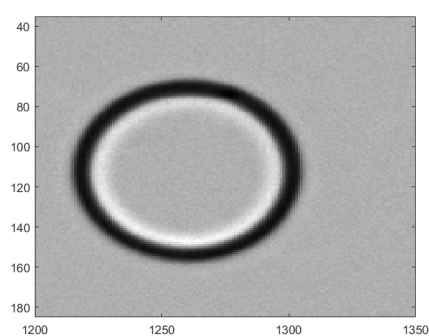


FIGURE 2.12 – Image obtenue après soustraction du fond.

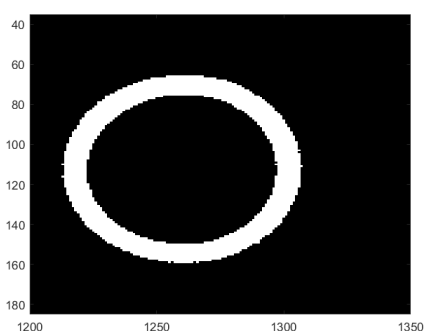


FIGURE 2.13 – Image obtenue après seuillage.

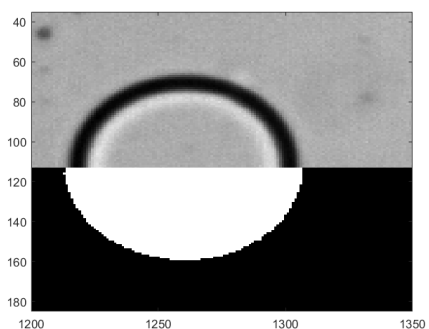


FIGURE 2.14 – La moitié haute est l'image brute, la moitié basse est obtenue après fermeture des contours et remplissage des trous.

Une fois ce traitement effectué, il est aisé de faire appel à une fonction de reconnaissance d'objets dans l'image. Ici, nous avons utilisé la fonction disponible dans Matlab, *Regionprops* qui est une méthode de détection efficace d'objets dans une image binaire. Nous avons, pour notre usage, demandé la position du centre de masse noté G, l'aire de la surface trouvée, ses extensions de Feret et sa circu-

larité. L'extension maximum de Feret  $D_{feret}$ , correspond à la plus grande distance entre deux droites parallèles et tangentes à la forme. Réciproquement, il y a la plus petite distance  $d_{feret}$ . Ces extensions s'appliquent très bien au formes circulaires et permettent d'observer la déformation des gouttes. Si la différence entre le min et le max devient importante c'est que les gouttes se déforment trop.

Un exemple de données que nous stockons dans des fichiers texte après traitement de la vidéo est donné dans Table 2.1

$x_g$ (pix)	$y_g$ (pix)	Aire (pix)	Feret max	Feret min	Circularité	Image
644.8	207.6	12162.0	125.2	123.6	0.97	1
1520.8	201.0	12080.0	124.1	123.1	0.99695	1
2403.0	210.3	12211.0	125.3	124.0	1.0	1

TABLE 2.1 – Exemple de données stockées. On constate par exemple sur l'image 1 de la vidéo la présence de 3 gouttes aux positions (644,207), (1520,201) et (2403,210).

On peut calculer le rayon de deux manières différentes avec ces données : d'une part en prenant l'aire de l'objet et en extrayant le rayon, d'autre part, dans l'hypothèse de très petites déformations et d'objets circulaires, on peut prendre la moyenne des extensions de Feret. Les mesures sont extrêmement reproductibles et stables dans le temps. Ne voyant pas de différence notable entre ces deux façons de déterminer le rayon, nous avons conservé la méthode de l'aire :

$$R_{goutte} = \sqrt{\frac{Aire}{\pi}} \quad (2.5)$$

Figure 2.15 présente l'histogramme des rayons obtenus pour un microsystème à largeur de jonction T donnée au cours d'une expérimentation.

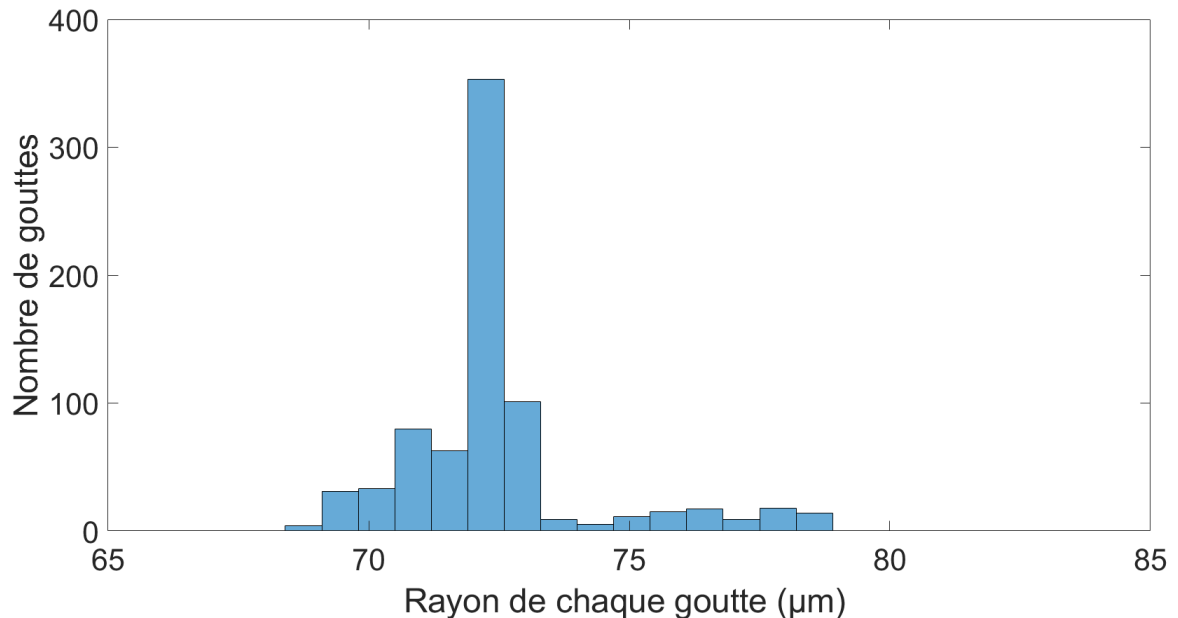


FIGURE 2.15 – Histogramme montrant la répartition des rayons de gouttes pour un microsystème de largeur de canal donnée ( $90 \mu\text{m}$  avec un rapport de pression autour de 1 au niveau de la jonction T (i.e.  $P_{eau} \approx P_{huile}$ )).

Ce type d'histogramme nous conforte dans l'idée d'expérimentations reproductibles et stables dans le temps.

### Critère de déformabilité des gouttes

Une des hypothèses est de garder des gouttes circulaires au cours de l'expérimentation. Un critère de circularité numérique n'est pas toujours pertinent car il n'est pas rare d'obtenir des circularités plus grandes que 1 (par exemple si une poussière se trouve au voisinage de la goutte). Un autre critère que nous avons choisi est le rapport entre les diamètres maximum et minimum de Feret. Nous avons remarqué que ce critère était moins sensible aux potentielles traces et poussières présentes sur l'image que celui de circularité. Nous prenons donc dans un premier temps un critère de circularité large ( $C > 0.9$ ) puis dans un deuxième temps un critère sur le rapport suivant des diamètres de Feret :

$$\frac{D_{feret} - d_{feret}}{D_{feret} + d_{feret}} \leq 0.03 \quad (2.6)$$

Nous considérons de manière arbitraire une déformation de 3% comme la limite acceptable. Elle correspond au bruit de mesure des diamètres de Feret à basses vitesses quand la déformation est de manière certaine négligeable. Ces deux critères systématiques et arbitraires, nous permettent d'enlever des gouttes numériquement. Du fait de notre expérimentation très reproductible, nous collectons une quantité importante de gouttes à chaque vidéo (de plusieurs centaines à plusieurs milliers); il n'est pas grave d'avoir des pertes de données. Néanmoins, si une goutte bien circulaire est rejetée à cause d'une impureté, elle ne le sera plus à l'image suivante si tant est que l'impureté ne se superpose plus à l'image de la goutte.

### Mesure de la vitesse des gouttes

La troisième et dernière question posée est plus problématique. En effet il peut y avoir plusieurs gouttes dans notre champ d'observation. Pour pouvoir mesurer la vitesse de chacune d'entre elles, il faut pouvoir les détecter dans l'image suivante, et dans le cas où elle est sortie du champs de vision, le savoir. Il suffit alors de l'appliquer à un flux vidéo en lui donnant les paramètres de recherches de gouttes dans la liste  $d_{max}$  et  $mem$ . Ces deux derniers sont respectivement la distance max, en pixel, à laquelle chercher une goutte à l'image suivante; et le nombre d'images sur lequel on s'autorise à chercher si on ne trouve pas la goutte à l'image  $n + 1$  (typiquement  $mem$  vaut 3 ou 4). Dès lors, nous ne manipulons que des fichiers sous format texte peu coûteux à manipuler. Table 2.2 présente l'ensemble des données obtenues après l'application de ce code de recherche.

À l'aide de ces données nous pouvons déterminer la vitesse des gouttes. Il nous faut simplement la fréquence d'acquisition  $f = 1/\Delta t$  de la vidéo, qui est dans les meta-données de cette dernière et est extraite automatiquement. Nous calculons la vitesse par une méthode classique d'Euler explicite :

$$V_{x_j}(t_i) = \frac{x_j(n_j(i+1)) - x_j(n_j(i))}{(n_j(i+1) - n_j(i))\Delta t} \quad (2.7)$$

$$V_{y_j}(t_i) = \frac{y_j(n_j(i+1)) - y_j(n_j(i))}{(n_j(i+1) - n_j(i))\Delta t} \quad (2.8)$$

avec  $n_j$  la liste contenant les images auxquelles apparaissent la goutte  $j$  et  $\Delta t$  l'intervalle de temps entre deux acquisitions. Ces vitesses nous permettent, par exemple, de tracer la courbe présentée en

$x_g$ (pix)	$y_g$ (pix)	Aire (pix)	Feret max	Feret min	Circularité	Image	Goutte
66.5	223.2	15241.0	141.3	137.4	1.0	1	1
1079.7	217.3	14893.0	138.8	136.6	1.0	1	2
	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮
167.6	222.8	15494.0	141.2	139.6	1.0	7	2
2112.9	212.9	14675.0	137.3	136.0	1.0	1	3
	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮
128.2	223.0	15408.0	140.8	139.2	1.0	14	3

TABLE 2.2 – Exemple de données traitées. On constate par exemple sur l'image 1 de la vidéo la présence de 3 gouttes. La goutte 1 n'apparaît ici que sur l'image 1, d'ailleurs la position de son centre de gravité  $x_g$  en témoigne : elle est au bord du champs d'observation. La goutte 2 est elle aussi présente sur l'image 1 et disparaît à l'image 7. La 3 elle, disparaît à l'image 14.

Figure 2.16, décrivant la vitesse des gouttes le long de leur trajectoire dans la cavité.

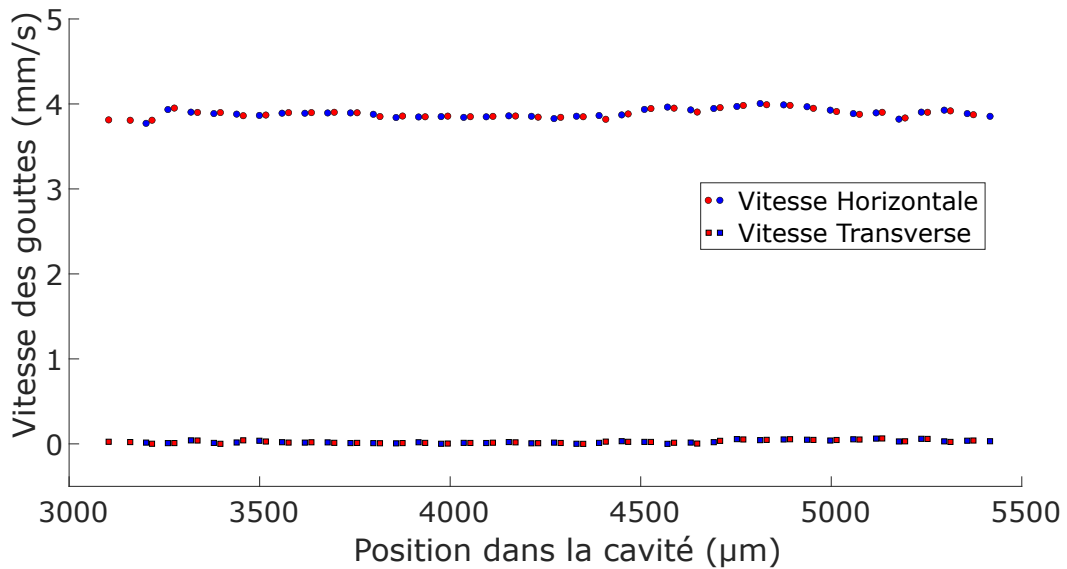


FIGURE 2.16 – Vitesse au milieu de la cavité de deux gouttes différentes à un même débit de phase porteuse (rouge et bleu). L'alignement "à la main" du champs d'observation de la caméra avec le microsystème permet tout de même d'avoir des vitesses transverses extrêmement faibles.

Des variations importantes de vitesses transverses peuvent survenir, notamment à basses vitesses, principalement à cause des aspérités du plafond. Toutefois il est facile de le prendre en compte, et dans la suite de cette étude, quand nous parlerons de vitesse de goutte  $U_d$  nous utiliserons la vitesse absolue :

$$U_d = \sqrt{(V_x^2 + V_y^2)} \quad (2.9)$$

Figure 2.17 conclue le chapitre car elle permet de manière très visuelle de valider différentes hypothèses que nous avons faites. Les hypothèses sur les différentes tailles typiques de la cavité (hypothèses 1 et 2, portant sur le rapport entre la taille typique des gouttes et l'épaisseur de la cavité) ont été résolues de part les choix de conception et de fabrication de notre moule. Il en est de même pour la taille des gouttes qui, nous l'avons vu, est sensiblement constante au cours d'une expérimentation. Enfin, les deux hypothèses les plus importantes portent sur l'indépendance de la mesure de la vitesse avec des paramètres autres que la physico-chimie de notre solution aqueuse. La fréquence de création des gouttes est contrôlée, on s'affranchit donc d'interactions hydrodynamiques entre deux gouttes successives. Enfin, la déformation de la cavité est inférieure à notre taux de détection. Pour se convaincre qu'il n'y a pas d'effets potentiels de déformation de la cavité Figure 2.17 montre que la vitesse de plusieurs gouttes le long de la cavité de Hele-Shaw, et ce, pour deux débits différents, est constante.

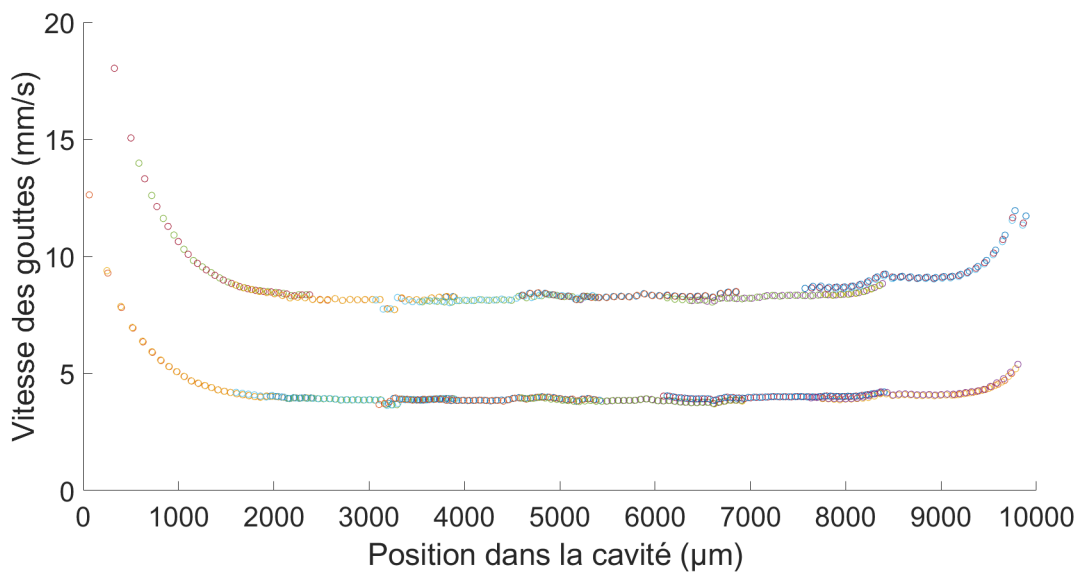


FIGURE 2.17 – Vitesses de gouttes dans la cavité de Hele-Shaw pour deux débits d'entrée différents. Chaque couleur représente une goutte, suivie dans la fenêtre d'observation ( $\sim 3.3$  mm). En se calant sur la mire présente dans le microsysteme, nous nous déportons de 2 mm dans la cavité. Cela nous permet de mesurer les vitesses d'un bout à l'autre de la cavité. De fait les fenêtres d'observations se chevauchent de 1.3 mm à chaque fois, ce qui garantit que l'on trouve bien le même résultat. Peuvent être observés, le ralentissement en entrée de cavité après l'accélérateur, puis une phase de vitesse constante, avant une accélération sensible proche de la sortie.

La constance de la vitesse des gouttes au sein de la cavité a plusieurs conséquences, dont certaines seront détaillées dans le chapitre suivant. La plus importante est que nous croyons fortement à notre mesure de non déformation. Si la cavité se déformait, nous aurions un profil de vitesse totale-

ment différent puisque la déformation aurait un rôle décélérant dans la phase d'augmentation de la section, puis accélérant dans la phase de réduction.

Cette fiabilité de la mesure de vitesse nous donne confiance dans les expériences qui seront faites dans la suite et surtout nous permet de vérifier une hypothèse qui va simplifier très grandement les observations : en régime permanent, deux gouttes successives possèdent sensiblement les mêmes caractéristiques (rayon, vitesse). De fait, il est aisé de faire de la statistique, le seul paramètre limitant est la taille de la vidéo.

Dans le chapitre suivant, sont présentés les résultats de mesures de vitesses de gouttes en fonction de la physico-chimie employée. Toute mesure de vitesse de goutte, de phase porteuse, de rayon ou autre est réalisée et vérifiée comme dit dans le présent chapitre.

### Pour résumer

- La génération de micro-gouttelettes en environnement confiné demande un soin particulier devant la finesse des films de lubrification (i.e. de la dizaine à quelques centaines de nm)
- On utilise un en PDMS Sylgard 184, dont nous avons contrôlé toutes les étapes, de la fabrication du moule à la mise en écoulement.
- La fabrication des gouttes et la mise en écoulement à la vitesse de fluide porteur voulue sont décorrélées dans notre géométrie à 3 entrées; l'ensemble étant contrôlé en pression, apportant stabilité et précision face à un contrôle en débit.
- De part l'aspect confiné, les mesures sont sensibles à la déformation de la cavité d'observation sous la pression, et à la rugosité de notre plafond.
  - La rugosité est contrôlée lors de l'étape de fabrication du moule que nous effectuons nous même.
  - La déformation de la cavité a été écartée par l'expérience, en insérant les dispositifs de mesure (débitmètre) aux entrées, permettant d'avoir une résistance hydrodynamique de sortie de cavité négligeable.
- Les deux paramètres de contrôle pertinents de notre étude étant le rayon de la goutte et la vitesse de la phase porteuse, nous avons mis en place une mesure systématique de chacun, assurant la fiabilité des résultats.
  - Le rayon d'une goutte varie très peu ( $\pm 1 \mu m$ ) à l'échelle de temps de l'acquisition de données i.e. 10 min.
  - La vitesse des gouttes est constante, à un débit donné, le long de la cavité en restant toutefois loin de l'entrée et de la sortie.
- Typiquement le rayon varie dans la gamme :  $45 \mu m < R < 120 \mu m$ .
- Typiquement la vitesse de la goutte varie dans la gamme :  $0.2 \text{ mm/s} < R < 15 \text{ mm/s}$ .





## MESURE DE LA MOBILITÉ // RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Ce chapitre présente les résultats obtenus sur les mesures en vitesse de gouttes dans la configuration expérimentale décrite au chapitre précédent. Nous allons maintenant faire varier différents paramètres afin de mettre en évidence la pertinence ou non de certains paramètres sur la physique du problème.

La géométrie n'est pas un paramètre que nous avons exploré. Nous sommes tout d'abord partis des travaux de Benjamin Reichert [RCJ19] qui a fait évoluer dans une cavité de Hele-Shaw des gouttes d'huile fluorée, du tétradecafluorohexane (FC72, Sigma Aldrich) dans une solution aqueuse de tensioactifs ioniques (Decyltriméthylammonium bromide,  $C_{10}$ -Tab) et du chlorure de sodium. L'idée derrière cette manipulation était d'obtenir un système où la condition à l'interface huile/eau est une condition de type *stress-free* qui devait être assurée par la très faible viscosité de l'huile utilisée (le rapport de viscosité avec les solutions aqueuses utilisées variant de  $\lambda = 0.25$  à  $\lambda = 0.7$   $\eta_h = 0.3$  mPa.S soit bien moins visqueuses que l'eau  $\eta_{eau} = 1$  mPa.s), mais également par la nature du tensioactif choisi [Rio13].

Ce chapitre porte sur nos campagnes d'expérimentations qui ont permis de mettre en évidence le rôle prépondérant de la nature du tensioactif, contrôlée ici par la longueur de la chaîne carbonée sur la dynamique des gouttes. Dans un premier temps nous nous intéressons aux choix de la physico-chimie de notre système, avant de montrer des résultats expérimentaux pour un panel de surfactants. Nous montrons que la physico-chimie joue un rôle crucial sur la dissipation des gouttes. Plus précisément, nous identifions la longueur de la chaîne carbonée de tensioactifs ioniques comme paramètre pertinent pour décrire une transition de comportement. Enfin, nous ferons le lien avec des travaux trouvés dans la littérature qui donnent des arguments expérimentaux et théoriques à ce que nous observons.

### 3.1 Paramètres de contrôle.

#### 3.1.1 Chimies utilisées

Table 3.1 présente les différentes solutions aqueuses utilisées au cours de nos expérimentations. Dans la suite de ce chapitre, hors précision, les gouttes sont des gouttes d'huile fluorée, du *Perfluorohexane*, une huile très peu visqueuse ( $\eta_{\text{huile}} \approx 0.3 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ) et plus dense que l'eau ( $\rho = 1.669$ ). Le choix de cette huile est guidé par le fait qu'une huile fluorée n'est pas un solvant du PDMS qui forme notre microsysteme. Par ailleurs, nous faisons le choix de tensioactifs qui sont davantage solubles dans la phase aqueuse que dans la phase dispersée. Les mesures de viscosimétrie présentées Table 3.1 ont été faites au rhéomètre, de même les mesures de tension de surface ont été faites avec la technique de la goutte pendante. Dans Table 3.1 deux familles de tensioactifs ont été étudiées, les  $C_x$ -*Sulfate* et

Surfactant	$L_c$	Polarité	CMC(mM)	$\gamma$ (mN/m)	$\eta$ (Pa.s)
$C_{10}$ – Sulfate	10	–	32	15.6	1
$C_{11}$ – Sulfate	11	–	16	17	1
$C_{12}$ – Sulfate	12	–	8	18.2	1
$C_{12}$ – Sulfate(+NaCl 0.2 M)	12	–	$\sim 0.9$	14	1
$C_{10}$ – Bromide(+NaCl 1 M)	10	+	$\sim 6$	14	1.15
$C_{12}$ – Bromide(+NaCl 0.1 M)	12	+	$\sim 1$	15.6	1
$C_{14}$ – Bromide(+NaCl 1 M)	14	+	$\sim 0.1$	15	1.5

TABLE 3.1 – Tableau récapitulatif des solutions aqueuses utilisées pour pousser des gouttes d'huile fluorée (*Perfluorohexane* C6F14).

les  $C_x$ -*Bromide*, qui correspondent à deux familles de tensioactifs ioniques composés d'une chaîne carbonée et d'une tête polaire : l'une sulfate, l'autre brome. Les premiers sont chargés négativement dans l'eau, les seconds positivement.

Plus la longueur de la chaîne carbonée augmente, plus la solubilité du tensioactif diminue et sa concentration micellaire critique diminue, c'est-à-dire que l'on peut dissoudre moins de surfactants en solution avant que le surplus ne forme des micelles.

La gamme de concentration étudiée est faible car nous nous sommes concentrés sur d'autres paramètres. En effet, à de très faibles concentrations (i.e. 0.5 CMC) la stabilité des gouttes devient moindre. Elles ont tendance à casser ou à mouiller au cours de l'expérience. À de très fortes concentrations (i.e. d'une dizaine à quelques dizaines de fois la CMC) les micelles se structurent et changent les propriétés de la phase aqueuse. Toutefois, nous n'avons pas observé de changement significatif de 0.9 à 10 CMC sur la mobilité d'une goutte. Nous nous sommes donc restreints à 2 fois la CMC pour chaque tensioactif.

#### 3.1.2 Limitations

Ces paramètres de contrôle que nous avons possèdent des limitations qui définissent le cadre de notre expérimentation.

##### Limitation en rayon

La première hypothèse de notre expérience précise que les gouttes doivent être sous la forme d'un pancake, c'est-à-dire que le rapport du rayon sur la demi-hauteur de la cavité doit être grand,

i.e.  $R/H_o > 5$ .  $H_o$  valant  $7.5 \mu\text{m}$ , notre rayon minimal est proche de  $R_{min} \sim 40 \mu\text{m}$ . La borne supérieure de notre limitation en rayon est triple. Premièrement, d'un point de vue très pratique, notre champ d'observation en interférométrie, que l'on verra dans la deuxième partie de ce manuscrit, est de  $265 \mu\text{m}$  environ. Nous souhaitons pouvoir observer entièrement la goutte. Cela impose que le rayon max  $R_{max}$  est proche de  $150 \mu\text{m}$ . La deuxième raison est elle aussi expérimentale : plus la goutte est grande, plus elle a de chances, notamment à basses vitesses, d'être piégée et/ou gênée par une aspérité. Enfin la troisième raison est liée à une autre hypothèse, celle de la circularité des gouttes. Lorsque la goutte est grande elle tend à se déformer notamment à hautes vitesses, ce qui est une limitation double : à la fois cela limite la taille de celles-ci, mais également la vitesse maximale des gouttes dans la cavité. Figure 3.1 montre trois gouttes, de rayons différents dans la même cavité, poussées par la même solution au même débit. Typiquement ici deux d'entre elles, d'après

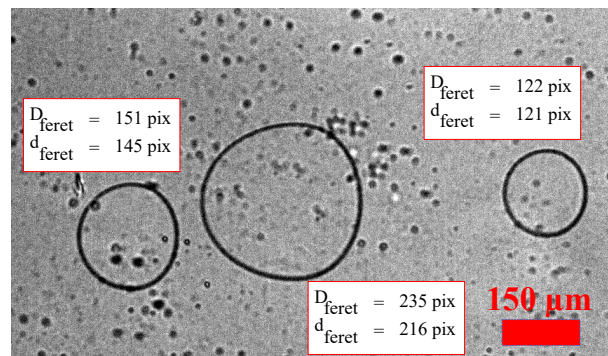


FIGURE 3.1 – Superposition de deux images contenant des gouttes d'huile fluorée FC72 dans une solution de  $C_{14}$ -Bromide à débit  $Q_{tot} \approx 90 \mu\text{L}/\text{min}$

nos critères, sont déformées : les deux premières en partant de la gauche. La troisième, non.

### Limitation en vitesse

La borne maximale de la limitation en vitesse est donc liée à la déformation des gouttes. Elle est liée aux caractéristiques physico-chimiques de nos solutions, puisque la déformation de la goutte est liée au rapport des forces visqueuses qui tendent à la déformer sur les forces capillaires qui elles tendent à vouloir la garder circulaire.

La limitation en borne inférieure de vitesse dépend elle aussi de la chimie, mais pour des raisons différentes. À basses vitesses, les gouttes ont tendance à s'arrêter, c'est lié au fait que l'épaisseur du film de lubrification de part et d'autre de la goutte croît avec la vitesse de celle-ci. Lorsque la vitesse est faible, l'épaisseur du film est très faible (pour une goutte statique nous mesurons une épaisseur de film de  $h_{\text{inf}} = 27 \text{ nm}$ ) et de fait les interfaces verre/eau et huile/eau sous la goutte par exemple, se voient au travers des interactions moléculaires [?]. La suite dépend des interactions entre ces interfaces : dans l'hypothèse où la pression de disjonction est répulsive, c'est-à-dire qu'elle tend à stabiliser le film, la valeur de l'épaisseur du film de lubrification possède une borne inférieure (les fameux 27 nm mesurés ci-après) qui peut ne pas être négligeable devant la taille des aspérités de surfaces. Le moindre "creux" dans notre plafond créera un piège pour les gouttes qui ne pourront en sortir que si nous leur fournissons davantage d'énergie, e.g. en augmentant le débit de la phase porteuse.

La pression de disjonction est répulsive dans le cadre de tensioactifs ioniques chargés négativement. En effet le verre se charge naturellement négativement dans l'eau. Si l'interface eau/huile de la

goutte est peuplée de tensioactifs chargés eux aussi négativement alors elle tend à stabiliser ce film. C'est le cas pour la famille de tensioactifs  $C_x$ -Sulfate.

Pour des tensioactifs chargés positivement, c'est le cas pour la famille de tensioactifs  $C_x$ -Bromide, la pression de disjonction sera attractive et aura tendance à rompre le film de lubrification dès lors que les interfaces se voient : c'est le mouillage. Typiquement, dans notre expérience, avec  $C_x$ -Bromide la vitesse minimale que l'on peut atteindre est de l'ordre de la centaine à quelques centaines de microns par seconde avant que le film ne se rompe. Il est possible de limiter les effets de la pression de disjonction chimiquement en ajoutant du sel. C'est l'objet de la partie suivante.

### 3.1.3 Sel et mouillage

Dans Table 3.1, il apparaît que certaines solutions ont été faites avec du chlorure de sodium, NaCl. En effet, rajouter du sel dans la solution permet d'augmenter le nombre de charges ioniques dans l'eau et ainsi de diminuer les interactions électrostatiques, en portée et en ampleur. Ce faisant, l'épaisseur du film de lubrification sous la goutte, donnée par la pression de disjonction dont le terme dominant à nos échelles est le terme électrostatique, diminue. Mettre du sel diminue l'impact de cette interaction, et donc stabilise les films lorsque les charges de surface sont de signes opposés.

Néanmoins, le sel peut jouer d'autres rôles. En augmentant la quantité d'ions dans la solution, le nombre de monomères tensioactifs dans le volume diminue. En effet, le sel a pour effet de diminuer la concentration micellaire critique. Il a également un effet sur la tension de surface : il la diminue [RKP<sup>+</sup>20]. Figure 3.2 montre les tensions de surface mesurées à la goutte pendante d'huile fluorée dans une solution de  $C_{12}$ -Sulfate à 2 CMC dans laquelle on rajoute du sel.

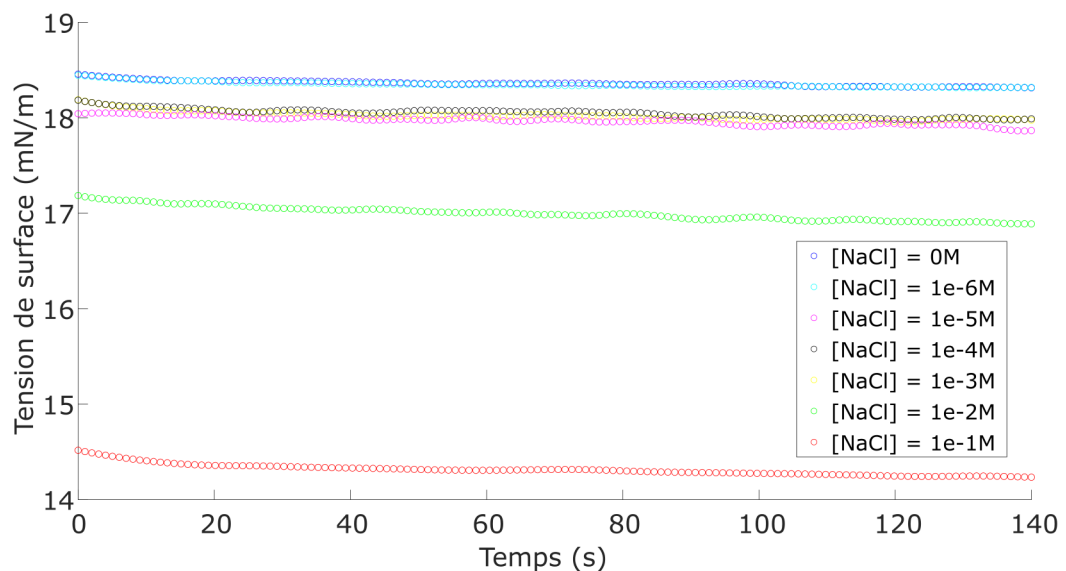


FIGURE 3.2 – Profils de tension de surface en fonction du temps pour différentes solutions aqueuses de  $C_{12}$ -Sulfate à 2 CMC dans lesquelles on rajoute une certaine quantité de chlorure de sodium.

On constate que la tension de surface diminue drastiquement quand la quantité de sel dépasse les  $10^{-2}$  M. Pour cette solution-ci, il n'était pas possible de dissoudre 1M de chlorure de sodium.

Dans la suite, nous nous intéresserons surtout à la famille sulfate, pour deux raisons principales :

1. La gamme de nombres capillaires exploitable est plus importante avec les sulfates du fait de la possibilité d'aller à basses vitesses sans rupture de film.
2. Il est possible de faire l'expérimentation SANS chlorure de sodium, ce qui permet de s'affranchir des implications de sa présence : changement de la CMC, de la viscosité, de la tension de surface...

Dans le but d'observer un effet, discriminé par la chimie du tensioactif, il apparaît préférable de ne pas rajouter de composant externe à notre solution. De plus toutes les implications de la présence de sel dans notre solution ne sont pas envisagées ou comprises. Si le sel diminue la CMC, alors à quantité de tensioactifs égale, pour deux solutions l'une avec sel l'autre sans, la quantité de monomères en solution n'est pas la même, la quantité de micelles non plus. Quid des effets de ré-arrangements de micelles dans la phase aqueuse à très fortes concentrations [MK72]? Quel est l'impact sur la viscosité de telles solutions? Enfin, l'effet du sel sur l'arrangement des tensioactifs à l'interface nous est inconnue. Si l'on ne comprend pas tous les effets possibles du sel sur la physico-chimie de nos solutions, il est possible de discriminer son potentiel effet sur la dynamique de nos gouttes en s'en affranchissant. C'est l'un des points présentés dans les résultats expérimentaux décrits ci-dessous.

## 3.2 Résultats expérimentaux.

Comparer les effets de la physico-chimie sur la dynamique des gouttes revient à s'intéresser aux conditions aux limites sur la goutte. Ainsi, est représentée Figure 3.3 la vitesse de la goutte  $U_d$  mesurée à une vitesse de fluide porteur  $U_f$  donnée. Le lien entre ces deux grandeurs est le témoin de la dissipation du système. À vitesse de phase porteuse fixée, la vitesse de la goutte mesurée dépend des mécanismes de dissipation à l'œuvre.

### 3.2.1 $U_d = f(U_f)$

La vitesse de la goutte est obtenue par traitement d'image comme présenté dans le Chapitre 2. En détaillant, image après image, la position de la goutte au cours du temps, et en dérivant cette position par rapport au temps, nous obtenons la vitesse de la goutte.

La vitesse de la phase porteuse, quant à elle, est obtenue par mesure du débit de cette même phase et par la connaissance de la section de notre canal. Le débit  $Q_{tot}$  varie de  $1 \mu\text{L}/\text{min}$  à  $100 \mu\text{L}/\text{min}$  environ. La section de notre canal est connue :  $15 \mu\text{m}$  de hauteur  $H_o$ ,  $2.5 \text{ mm}$  de largeur  $l$ , cela nous donne des vitesses  $U_f$  variant de  $1$  à  $50 \text{ mm/s}$ . Pour des rayons typiques de gouttes  $R$  variants de  $45$  à  $150 \mu\text{m}$ , cela donne des rapports d'aspects critiques  $R/H_o > 6$  et  $l/2R > 8$ . Ainsi on s'assure que les gouttes demeurent confinées, de forme pancake et loin des bords. Au vu du nombre de points présents dans la Figure 3.3, les barres d'erreur, de la taille du point, ne sont pas représentées, pour ne pas surcharger le graphique, mais elles sont présentes dans la suite et leur fabrication est détaillée ci-après. On constate que le modèle de Taylor & Saffman surestime grandement les valeurs de nos vitesses. Dans la suite nous ne représenterons plus ce modèle. Nous constatons également qu'en échelle logarithmique nous obtenons une loi de puissance entre les vitesses des gouttes et celles de la phase porteuse.

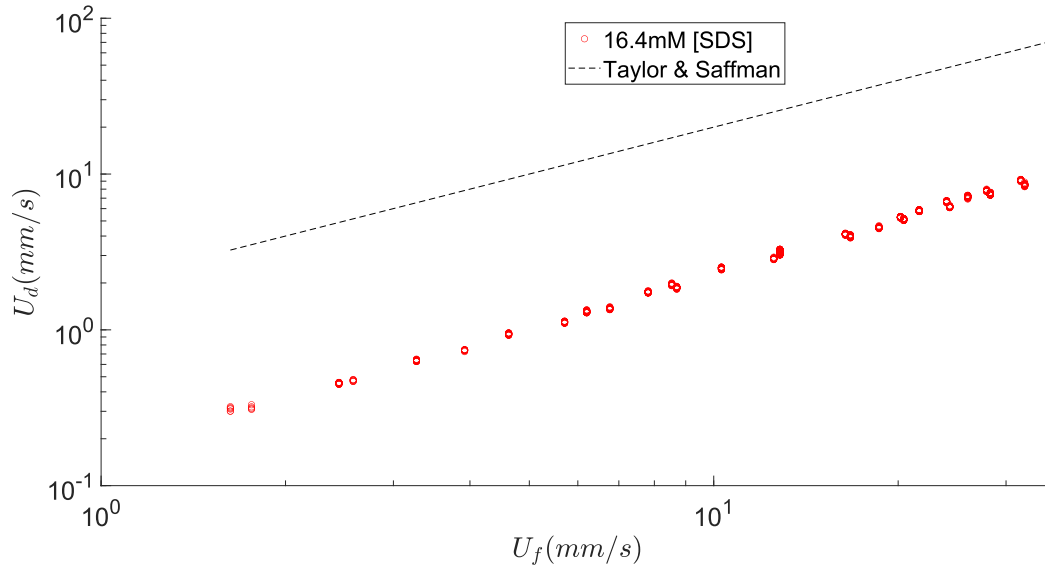


FIGURE 3.3 – Vitesse de goutte en fonction de la vitesse de la phase porteuse. Chaque point représente une goutte d’huile fluorée poussée par une solution de  $C_{12}$ -Sulfate. Les gouttes sont triées, et ici ne sont représentées que les gouttes dont le rayon est compris entre 85 et 95  $\mu m$ . La ligne discontinue noire représente le modèle de Taylor & Saffman.

### 3.2.2 $U_d = f(U_f)$ pour des gouttes de différents rayons au sein d’une même cavité

Dans cette section nous souhaitons compléter le Chapitre 2 sur les tailles accessibles de gouttes. Pour des raisons pratiques nous avons décidé d’utiliser les microsystèmes dans une gamme restreinte de taille de gouttes (cf. Chapitre 2) et de changer de microsystème pour changer de taille. Nous présentons ici les résultats obtenus lors d’une expérience avec une seule cavité, où nous avons pris le temps et la peine de faire varier le rapport de pression en entrée pour modifier les rayons.

Figure 3.4 montre l’histogramme des rayons obtenus lors de cette expérience. Nous poussons des gouttes d’huile fluorée FC72 dans la même solution que Benjamin Reichert dans sa thèse [Rei17] où l’inversion de la dépendance en rayon est notifiée la première fois. Il s’agit d’une solution de SDS à 0.82 mM et de NaCl à 0.1 M. La solution est alors juste en deçà de la concentration micellaire critique (environ 0.9 CMC).

Si l’on trace la vitesse de ces gouttes en regroupant par famille de rayons et ce, en fonction de la vitesse de la phase porteuse, nous obtenons Figure 3.5.

On note alors la dépendance décroissante de la vitesse avec le rayon, nous retrouvons donc le résultat de B. Reichert. Nous obtenons les mêmes valeurs de mobilité que lui. On note également l’absence de points expérimentaux à basses vitesses pour les gouttes avec des rayons plus importants. En effet, c’est là que les difficultés expérimentales sont les plus importantes : il est presque impossible de séparer suffisamment les gouttes. Néanmoins, cette expérience nous permet d’affirmer que l’inversion de la dépendance en rayon, n’est pas un artefact de notre choix de changement de cellule pour modifier la taille de gouttes. Dans la suite de ce manuscrit, chaque taille de goutte sera obtenue à l’aide d’un microsystème adapté.

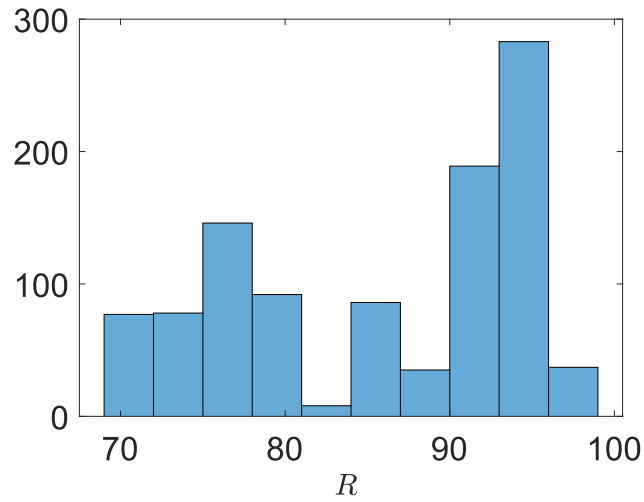


FIGURE 3.4 – Histogramme des rayons obtenus lors de cette expérience. On note une différence entre les deux groupes de rayons visés faible : environ 20 micromètres.

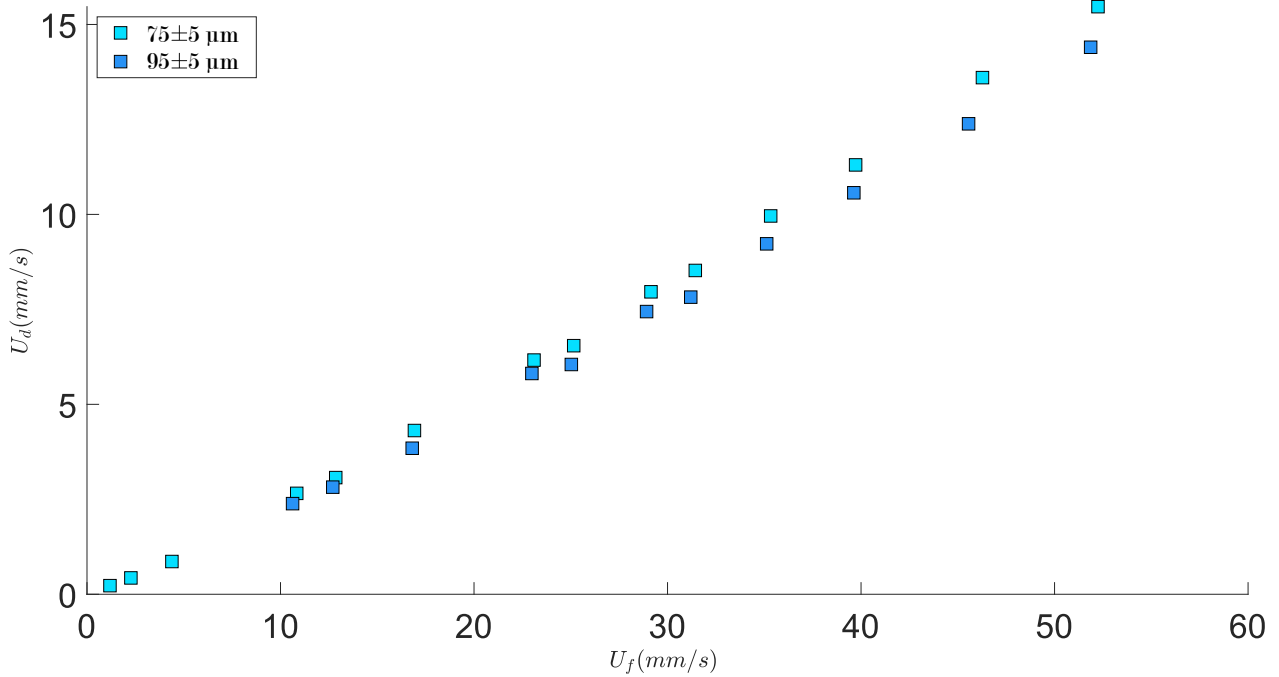


FIGURE 3.5 – Vitesses de gouttes d'huile fluorée FC72 en fonction de la vitesse de la phase porteuse, une solution de SDS et NaCl, respectivement à 0.82 mM et 0.1 M.



### 3.2.3 $U_d = f(U_f)$ pour différentes concentrations en sel

Commençons par définir quel va être notre espace de paramètres exploré concernant la formulation des solutions. Pour ce faire, Figure 3.6 montre la vitesse d'une goutte en fonction de la vitesse de la phase porteuse, pour une famille de rayons restreinte, et ce, pour 3 solutions de tensioactifs à différentes concentrations avec ou sans sel. Cette courbe nous permet de dire que la vitesse d'une goutte

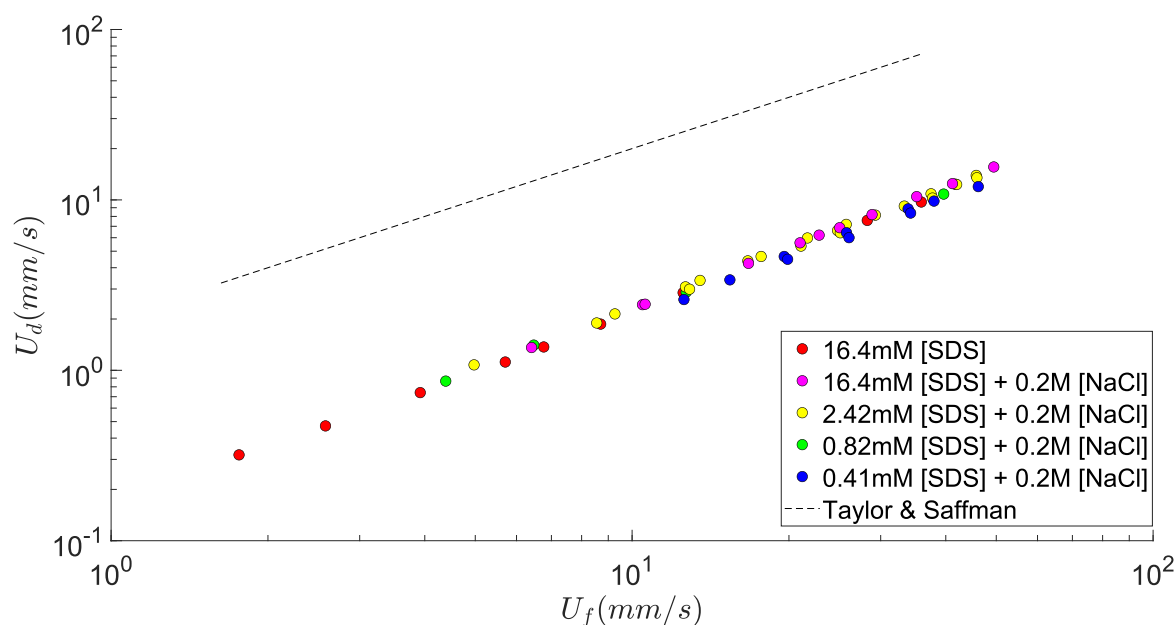


FIGURE 3.6 – Vitesse de gouttes en fonction de la vitesse de phase porteuse au cours de l’acquisition vidéo. Chaque point représente une goutte (environ 1200 points ici). Toutes ces gouttes ont un rayon compris en  $85\ \mu\text{m}$  et  $95\ \mu\text{m}$ . Les couleurs représentent trois solutions de  $C_{12}$ -Sulfate à différentes concentrations, avec et sans chlorure de sodium rajouté. La ligne discontinue noire représente le modèle théorique de Taylor & Saffman de la bulle cylindrique mouillante allant deux fois plus vite que sa phase porteuse. Nous rappelons que la CMC sans sel correspond à une concentration de 8 mM.

d’huile fluorée peu visqueuse, poussée par une phase aqueuse contenant du  $C_{12}$ -Sulfate, ne dépend pas de la concentration en tensioactifs, ou en sel dans la gamme de paramètres que nous explorons. Dans la suite de ce manuscrit, nous n’avons pas exploré l’ensemble de ces paramètres pour chaque tensioactif. Nous avons mis du sel lorsque cela était nécessaire (i.e. pour la famille  $C_x$ -Bromide pour que le régime de pression de disjonction soit aux nombres capillaires les plus faibles possibles et éviter ainsi le mouillage de la goutte) et nous n’en avons pas mis le reste du temps. Pour ce qui est de la concentration choisie, nous nous sommes restreints à *deux fois la concentration micellaire critique*, afin d’éviter des régimes inconnus ou mal compris bien au-delà [MK72].

### 3.2.4 Mobilité d’une goutte

#### Pourquoi la mobilité?

Si le rapport  $\beta = \frac{U_d}{U_f}$ , que l’on appelle *mobilité*, est une signature des mécanismes dissipatifs en fonction des différents paramètres (rayon, vitesse, tensioactif...), il est pertinent de représenter ce

rapport pour différents régimes de vitesse. Ces régimes sont représentés par le nombre Capillaire  $C_a = \eta U_d / \gamma$ . Les mêmes données visibles en Figure 3.3 sont représentées sous cette nouvelle forme Figure 3.7. L'axe des abscisses donne le nombre capillaire. La gamme typique de nos expériences est

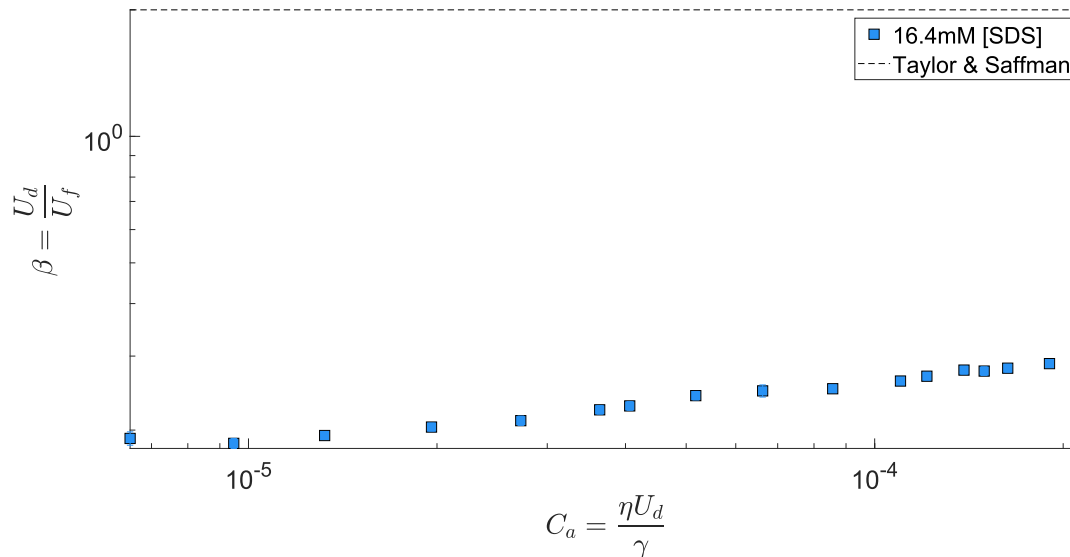


FIGURE 3.7 – Mobilité d’une goutte d’huile fluorée poussée par une solution de  $C_{12}$ -Sulfate en fonction du nombre capillaire. La ligne discontinue noire représente le modèle de Taylor & Saffman, une mobilité qui vaut 2 pour une bulle représentée par un bulle cylindrique mouillante.

$10^{-5} < C_a < 10^{-3}$ . En effet, la gamme de vitesses de gouttes,  $U_d$ , que l’on observe varie de 0.5 mm/s à 15 mm/s ce qui, pour les tensions de surfaces et viscosité données dans Table 3.1, donne ces nombres capillaires dans la gamme donnée.

Pour la borne supérieure, nous sommes d’une part limités en pression d’un point de vue purement technique, d’autre part au-delà d’un certain nombre capillaire les gouttes commencent à se déformer. Rester en deçà d’un  $C_{amax} \sim 10^{-3}$  nous assure de la bonne circularité des gouttes.

### Barres d’erreur

La mobilité des gouttes est très clairement plus faible que le modèle de Taylor & Saffman. Ainsi, nous ne représentons pas ce modèle dans Figure 3.8. À cette échelle ci, les barres d’erreur sont visibles. Voici comment elles sont construites.

- **Erreur sur  $U_d$ .** Pour chaque goutte, nous obtenons une vitesse "instantanée" (comprendre, d’une image à l’autre) lors du traitement d’image. Nous la moyennons pour obtenir sa vitesse dans le champs d’observation et nous gardons en erreur la déviation standard de cette liste. Si la goutte n’apparaît que dans deux images, i.e. nous n’avons qu’un point de vitesse. Nous rejetons la goutte. Sur Figure 3.8, chaque point représente l’ensemble des gouttes conservées pour chaque débit de phase porteuse, dont le rayon est compris entre deux valeurs arbitraires. La barre d’erreur représentée est la déviation standard de la vitesse des gouttes de cette liste.
- **Erreur sur  $Q$ .** Au cours d’une acquisition vidéo (environ 5 minutes), nous lançons l’enregistrement de la mesure des débits de phase externe. Nous gardons l’écart à la valeur moyenne du débit comme erreur.

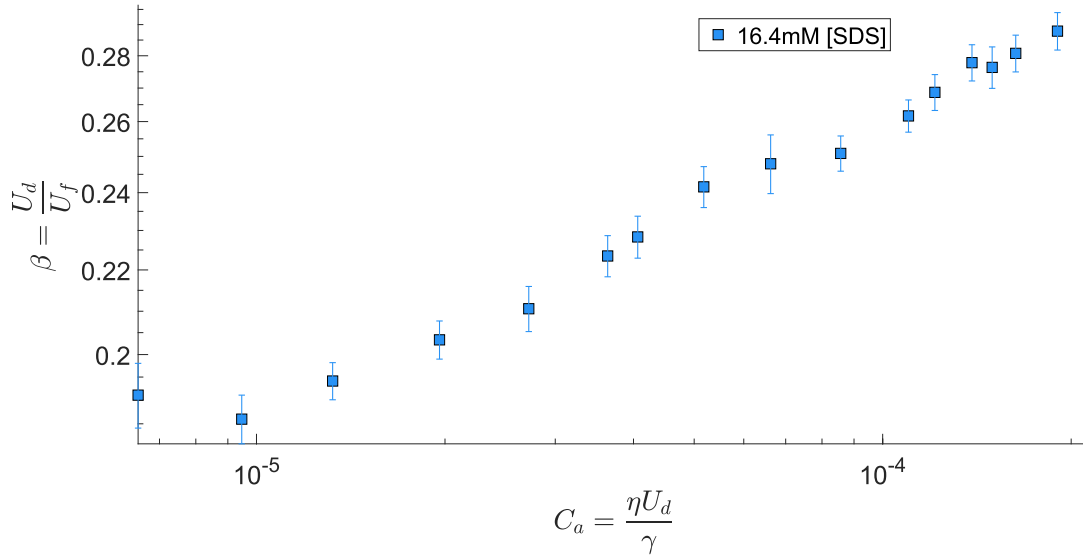


FIGURE 3.8 – Mobilité d’une goutte d’huile fluorée poussée par une solution de  $C_{12}$ -Sulfate en fonction du nombre capillaire.

- **Erreur sur la section.** Du fait que nous changeons de microsysteme à chaque experimentation de rayons différents, la section de chaque systeme n’est pas exactement identique. Notre variation de hauteur sur les 6 systemes utilisés au cours de ces travaux est de 400 nm. Le systeme le plus épais a été mesuré à 15.1  $\mu\text{m}$ , le plus fin à 14.7  $\mu\text{m}$ . Nous avons pris la valeur moyenne de la section : 14.9  $\mu\text{m}$  et avons construit une erreur due à l’écart possible avec les bornes min et max de notre hauteur de cavité. Cette erreur, est plus importante que les déviations standards de mesure de vitesse de gouttes ou de débit : elle englobe la majorité de notre erreur.

$\Delta U_f$  est construit avec les erreurs faites sur la mesure du débit, et sur l’écart moyen de la hauteur de cavité. On obtient ainsi notre erreur sur la mobilité :

$$\Delta\beta = \beta \left( \frac{\Delta U_d}{U_d} + \frac{\Delta U_f}{U_f} \right) \quad (3.1)$$

Nous n’avons pas représenté les barres d’erreur en capillaire  $\Delta C_a$  sur le graphe présentant la mobilité en fonction du nombre capillaire. D’abord par souci de lecture, et aussi vu la faible valeur de l’erreur sur la mesure de  $U_d$ . Mais aussi et surtout car les autres erreurs possibles (sur les valeurs de viscosité et/ou de tension de surface) décaleraient tous les points d’une même valeur. Cette erreur serait systématique sur une chimie. Ainsi, nous prenons le parti de ne pas les représenter.

### Régimes capillaire et de disjonction

Figure 3.9 montre une courbe typique de mobilité de goutte en fonction du nombre capillaire. On observe ici deux régimes différents. Un premier où la mobilité est constante avec le nombre capillaire, qu’on appellera le régime de disjonction. Ce régime correspond, on le verra dans la suite, au cas où l’épaisseur du film de lubrification est dictée par la pression de disjonction. C’est celui-ci qui est

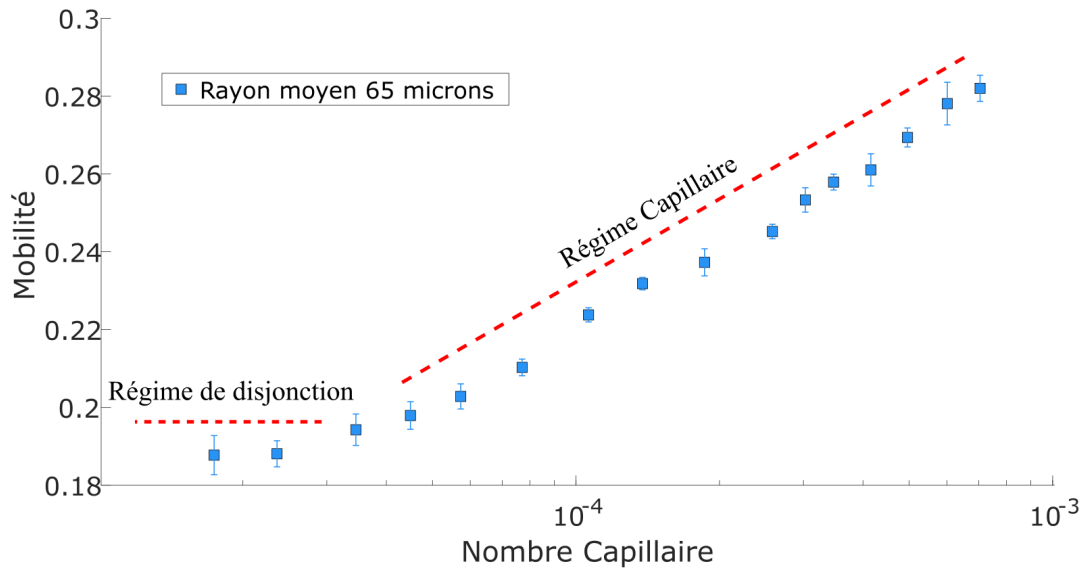


FIGURE 3.9 – Mobilité d’une goutte en fonction du nombre capillaire, ici, une goutte d’huile fluorée FC72 dans une phase aqueuse de  $C_{12}$ -Sulfate à 2 CMC.

modifié en premier lorsque l’on rajoute du sel : il n’est plus observé dans notre gamme de nombres capillaires.

Le second régime, qu’on nomme le régime capillaire, est un régime où la mobilité croît avec le nombre capillaire. Cette croissance signifie que la dissipation augmente moins vite que la propulsion.

C’est ce second régime qui nous intéresse dans la suite.

### 3.2.5 Comparaison C10-C12 à même rayon

Figure 3.10 montre cette fois-ci les mobilités de gouttes obtenues pour deux chimies de phase externe différentes : la précédente avec du C12-Sulfate, et une autre de C10-Sulfate également à deux fois sa CMC.

Le C10-Sulfate est un tensioactif plus soluble que le C12-Sulfate du fait de ses 2 carbones en moins. Il y a une signature macroscopique de cette différence avec une mobilité plus importante pour le tensioactif dont la chaîne carbonée est plus courte. La mobilité de gouttes de sensiblement mêmes rayons est plus grande pour les C10 que pour les C12.

Autrement dit, le système dissipe moins dans une solution aqueuse de C10-Sulfate que dans une solution de C12-Sulfate. Les tensions de surfaces et les viscosités sont proches dans les deux cas, cela signifie que les effets Marangoni induits par les tensioactifs à l’interface des gouttes varient avec la nature, voire la solubilité du tensioactif. Essayons maintenant, de faire varier la taille des gouttes dans chacune des deux solutions.

### 3.2.6 Comparaison C10-C12 pour différents rayons

Figure 3.11 représente la mobilité d’une goutte poussée par une solution de C10-Sulfate pour différents rayons de gouttes.

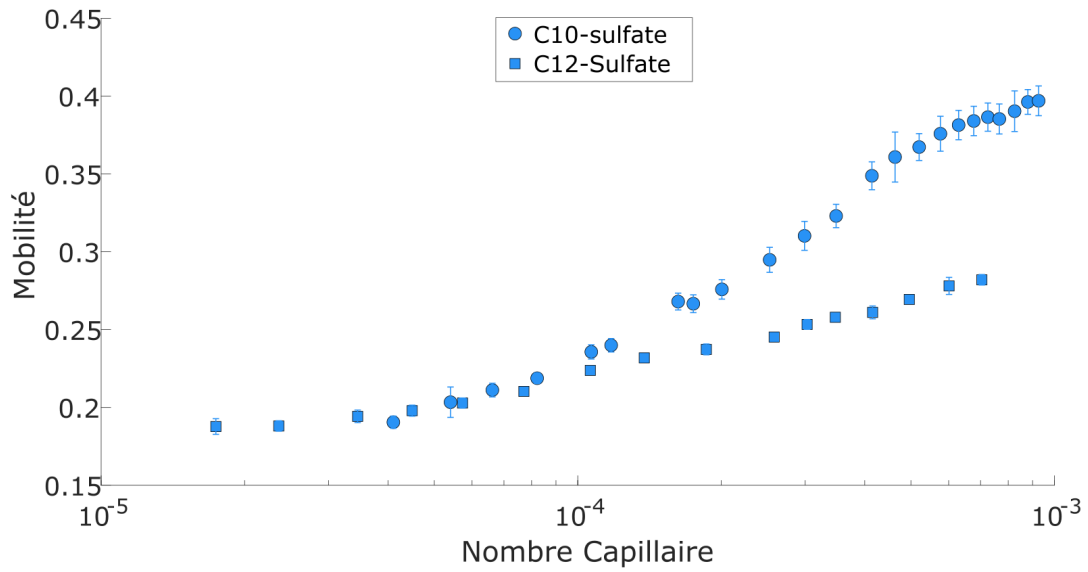


FIGURE 3.10 – Mobilité de gouttes de rayon  $R = 70 \mu\text{m} \pm 3 \mu\text{m}$  de FC72 dans deux solutions aqueuses différentes : C10-Sulfate et C12-Sulfate à 2 CMC.

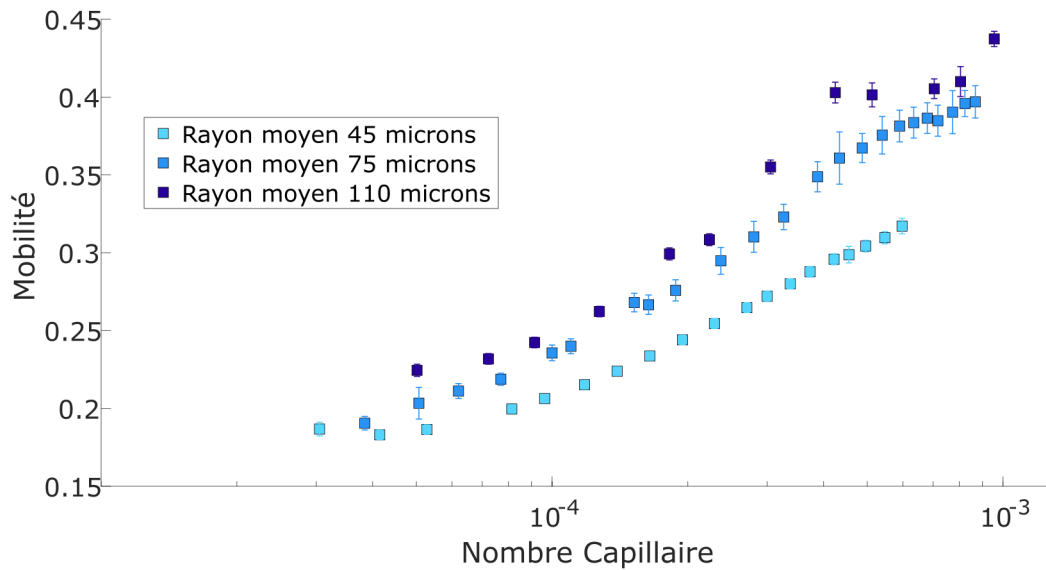


FIGURE 3.11 – Mobilité de gouttes dans une solution de C10-Sulfate à 2 CMC pour différents rayons de gouttes.

Chacune des courbes possède le même type d'évolution avec une pente faible à très bas nombre capillaire, au niveau de la disjonction, et un accroissement de la mobilité avec le nombre capillaire ensuite. On constate également un début de saturation vers les nombres capillaires approchant  $10^{-3}$ , au-delà, la déformation des gouttes est très importante et nous ne sommes plus dans notre cadre d'observation. De même, pour les gouttes dont le rayon est important, elles sont davantage sujettes à la déformation à haut capillaire, et davantage sujettes à de grandes variations de vitesses à basses vitesses : plus grandes, elles ont plus de chances de se faire affecter par les aspérités des parois sol/

plafond.

Enfin et surtout on observe une augmentation significative de la mobilité de la goutte avec le rayon à un nombre capillaire donné. Dit autrement, à vitesse de phase porteuse égale, la goutte la plus grande ira plus vite que la plus petite.

Pour le sodium dodecyl sulfate, C12-Sulfate nous obtenons le graphique présenté en Figure 3.12.

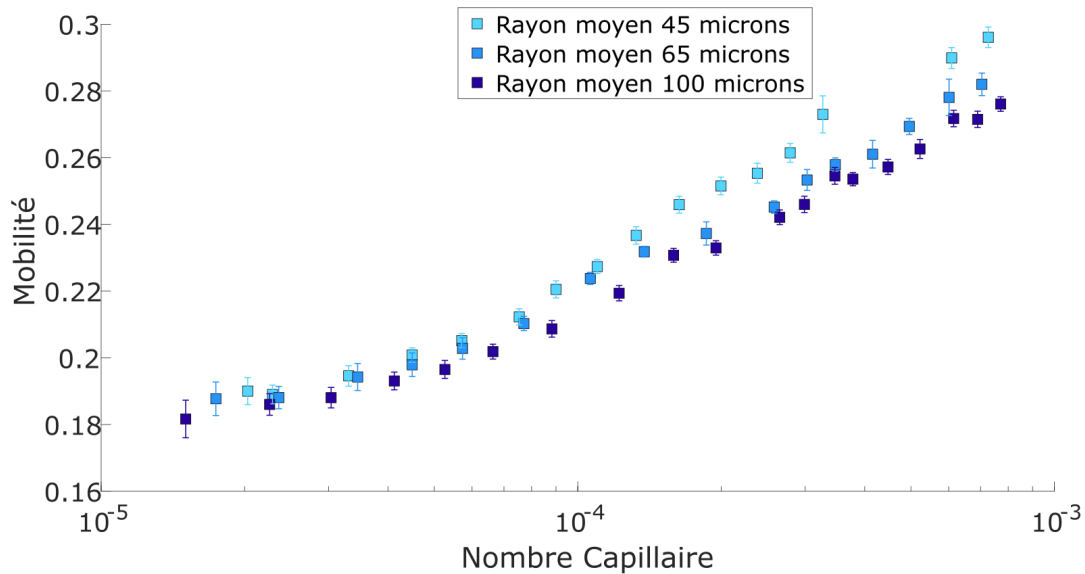


FIGURE 3.12 – Mobilité de gouttes dans une solution de C12-Sulfate à 2 CMC pour différents rayons de gouttes.

De la même façon, les formes des courbes sont équivalentes avec la présence des deux régimes. À nouveau, quantitativement, les gouttes poussées par une solution de C12-Sulfate, vont moins vite que celles poussées par du C10-Sulfate. Cette fois-ci en revanche, nous obtenons un comportement inverse en fonction du rayon : la mobilité des gouttes décroît lorsque le rayon augmente. C'est-à-dire qu'à vitesse de phase porteuse égale, plus la goutte est grande moins elle va vite.

### 3.2.7 Bilan pour différentes chimies de phase porteuse

Nous avons concaténé en Figure 3.13 les résultats obtenus pour toutes les solutions présentées Table 3.1. C'est-à-dire, que pour un nombre capillaire donné, dans le régime capillaire (i.e.  $C_a \sim 5 \cdot 10^{-4}$ ) nous pointons la mobilité des gouttes pour chacune des familles de rayons obtenues. Précisément voici comment nous avons obtenu nos points :

- Nous prenons différents jeux de données pour chaque tensioactif (e.g. les courbes Figure 3.12).
- Dans le régime capillaire  $C_a$  compris entre  $10^{-4}$  et  $10^{-3}$ , nous interpolons les données pour deux ou trois courbes à famille de rayon donnée et ce, pour chaque tensioactif.
- Nous relevons la mobilité interpolée pour un nombre capillaire fixé, ici  $C_a \sim 5 \cdot 10^{-4}$ .

Si l'on trace ces données sur une figure représentant la mobilité en fonction du rayon moyen de la famille choisie nous obtenons Figure 3.13.

Une tendance tend à se dégager. Au-delà de 12 carbones sur la chaîne hydrophobe, les gouttes ont

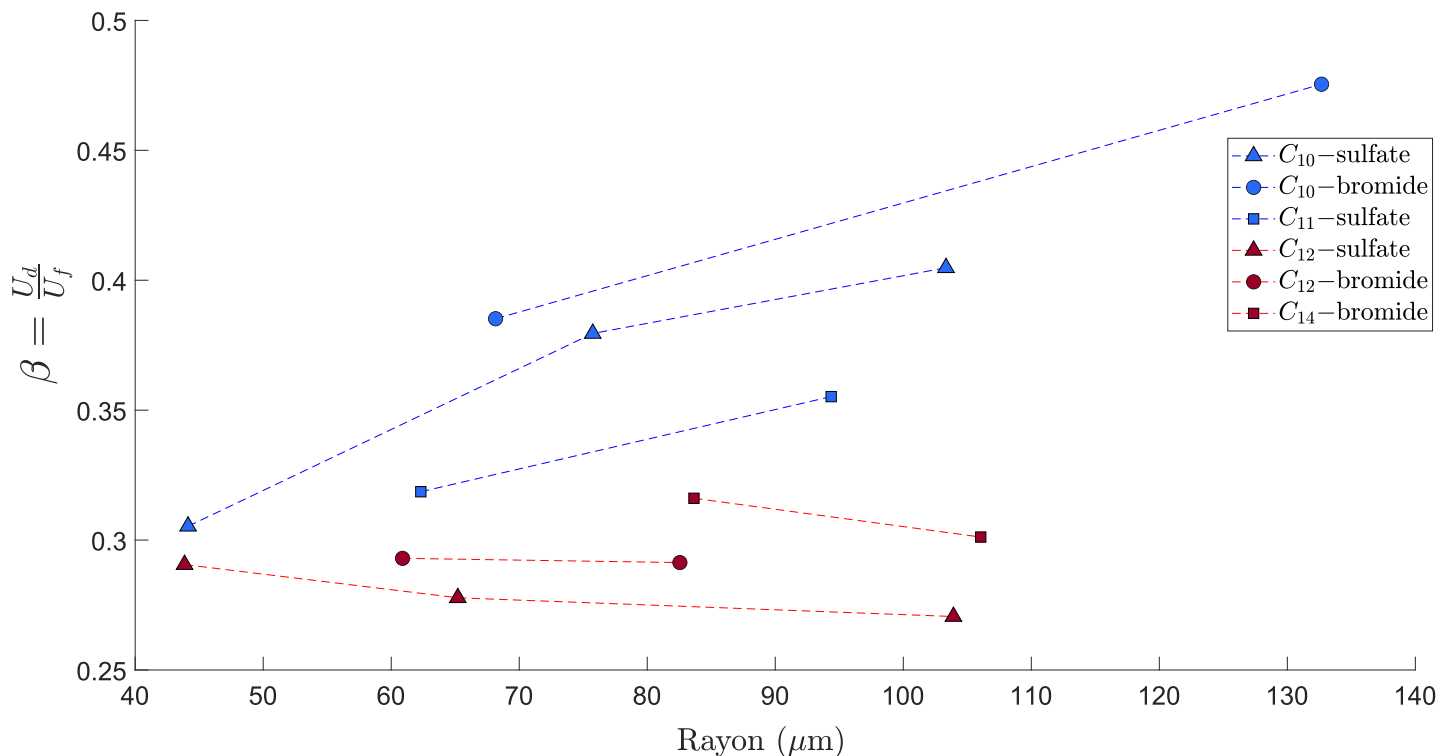


FIGURE 3.13 – Bilan de l'étude en mobilité sur l'inversion de la dépendance en rayon. La couleur, bleue ou rouge montre respectivement si la dépendance en rayon est positive, i.e.  $R \nearrow \rightarrow \beta \nearrow$  en bleu, ou si la dépendance est négative, i.e.  $R \nearrow \rightarrow \beta \searrow$ , en rouge. La forme, carrée ou ronde représente la famille à laquelle appartient le tensioactif, carrée pour les sulfates, ronde pour les bromides. La légende, de haut en bas, correspond aux courbes de haut en bas.

une vitesse qui évolue en décroissance avec le rayon. Cette distinction avec la longueur de chaîne carbonée n'a pas pu être entravée par d'autres paramètres; avec sel, sans sel, juste en dessous de la CMC ou à 20 fois la CMC. S'il y a des variations sur la valeur, d'un point de vue quantitatif de la mobilité on observe une inversion de la mobilité en fonction du rayon pour une longueur de chaîne carbonée  $L_c \geq 12$  carbones.

### 3.3 Conclusion et ouverture

Nous avons à l'aide du dispositif expérimental décrit au Chapitre 2 effectué une campagne d'expérimentations sur des gouttes d'huile fluorée poussées par une phase aqueuse dans une cellule de Hele-Shaw. Les gouttes sont monodisperses, les quantités de phase externe injectées dans la cellule sont connues et contrôlées, enfin la vitesse des gouttes est mesurée précisément par traitement d'image des vidéos d'acquisition.

Nous avons tracé pour une huile fluorée particulière, *tetrafluorohexane*-FC72, peu visqueuse, la mobilité des gouttes en fonction du nombre capillaire et ce pour différentes chimies de phase externe. Nous retrouvons les résultats de Benjamin Reichert [Rei17] exposés Figure 1.17 sur la mobilité d'une goutte d'huile fluorée poussée par une phase aqueuse contenant soit du C10-Bromide soit du C12-Sulfate [RCJ19, Rei17] malgré les quelques différences existantes dans nos protocoles et nos chimies

(CMC, présence de sel). Pour une solution de sodium dodecyl sulfate à 2 CMC nous retrouvons le même ordre de grandeur que Shen [SLRT14] qui trouvait pour des nombre capillaire proches de  $C_a \sim 10^{-5}$  une mobilité  $\beta \sim 0.21$  (cf. Figure 1.14).

Nous avons mené ces mesures de mobilités pour des tensioactifs ioniques (cationiques ou anioniques) pour différentes concentrations et avec la présence ou non de sel. Pour une partie d'entre eux, nous obtenons des résultats en accord avec les travaux théoriques ou numériques exposés en introduction sur l'évolution croissante de la vitesse de la goutte avec son rayon.

Cependant, nous avons obtenu plusieurs configurations où cette dépendance était inversée, et où la vitesse de la goutte décroît avec le rayon. Ces configurations semblent montrer que le paramètre pertinent à prendre en compte dans ce phénomène est la longueur de chaîne carbonée.

Pour des tensioactifs ioniques dont la chaîne carbonée comporte un nombre inférieur à 12 carbones, à vitesse de phase porteuse donnée la vitesse de la goutte croît avec le rayon. On rejoint alors les théories de Dangla [Dan12b] ou les travaux de Ling [LFPJ16]. Pour des chaînes carbonées plus longues, alors cette dépendance s'inverse dans notre gamme de nombre capillaires et la vitesse de la goutte décroît lorsque la goutte s'agrandit. C'est un résultat central de notre thèse car à notre connaissance.

Il reste à comprendre pourquoi les tensioactifs sont responsables de ce changement de comportement. Quel est leur rôle précisément? Comment modifient-ils les conditions aux limites à l'interface?

Pour répondre à ces questions il serait préférable de pouvoir observer les tensioactifs directement dans la solution et à l'interface. Leur taille ne le permettant pas, on va plutôt venir observer la signature de leur présence en observant et en mesurant l'épaisseur du film de lubrification présent sous la goutte. Comme vu au Chapitre 1 Paragraphe 1.6, l'épaisseur locale du film de lubrification est le témoin de la condition aux limites à l'interface à cet endroit. L'idée est alors de reproduire la topographie du film sous la goutte pour remonter aux conditions à l'interface et en déduire des informations relatives aux différents comportements des tensioactifs.

Pour mesurer cette épaisseur, nous avons monté un dispositif expérimental à l'Institut de Physique de Rennes basé sur les travaux d'Axel Huerre [HJTV16] ou de Benjamin Reichert [RHT<sup>+</sup>18]. Le montage d'un dispositif interférométrique adapté à notre expérimentation est l'objet du chapitre suivant.



### Pour résumer

- La mobilité d'une goutte, c'est-à-dire le rapport entre la vitesse de la goutte et la vitesse moyenne de la phase externe est mesurée précisément.
- La mobilité est tracée en fonction du nombre capillaire pour un tensioactif donné etc, pour plusieurs rayons de gouttes.
- On observe tantôt une croissance de la vitesse de la goutte à vitesse de phase porteuse donnée avec le rayon, tantôt une décroissance.
- Ce changement de comportement de la mobilité ne semble dépendre :
  - ni de la concentration en tensioactifs (dans notre gamme 0.5 → 20 CMC),
  - ni de la présence de sel.
- Le paramètre pertinent qui semble piloter cette inversion de dépendance en rayon est la longueur de chaîne carbonée du tensioactif dilué dans la phase porteuse (à 2 CMC). Ce résultat, à notre connaissance inédit, s'exprime ainsi :
  - Pour une longueur de chaîne carbonée inférieure à 12, nous observons un accroissement de la vitesse de la goutte avec le rayon.
  - Pour une longueur de chaîne carbonée supérieure ou égale à 12, nous observons une décroissance de la vitesse avec le rayon.

## MESURE DE L'ÉPAISSEUR DE FILM DE LUBRIFICATION

### // DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

#### 4.1 Introduction

Dans ce chapitre nous commençons par introduire le dispositif expérimental RICM pour *Reflection interference contrast microscopy*, qui est une technique de mesure d'épaisseur par dispositif interférométrique. Dans un premier temps nous présentons le concept, son application et ses capacités, puis nous détaillons le dispositif RICM que nous avons monté à l'Institut de Physique de Rennes pour pouvoir mesurer l'épaisseur du film de lubrification sous les gouttes. Enfin seront montrées les différentes expérimentations de calibration effectuées sur le dispositif. Celles-ci nous assurant confiance dans les mesures effectives de film qui seront présentées au chapitre suivant.

##### 4.1.1 Mesure d'épaisseur par interférence

En mécanique ondulatoire, les interférences sont la combinaison de deux ondes susceptibles d'interagir. Le moyen le plus visuel de l'expliquer est au travers des ondes mécaniques comme les vagues. Deux ondes peuvent interagir si leurs fréquences sont sensiblement égales. Ce critère est très important car il n'est pas simple à mettre en place : comment générer des ondes, des vagues par exemple, de fréquence égale? La solution la plus évidente est d'avoir deux sources identiques comme en Figure 4.1.

Ce phénomène s'énonce ainsi : il y a interférence lorsque deux ondes de même nature, synchrones et cohérentes (de même fréquence et de déphasage constant) se rencontrent. Il se forme alors des Figures caractéristiques. Dans notre domaine de la matière molle on peut aisément illustrer cela par les irisations des films de savon comme cela est visible sur la photo présentée en Figure 4.2. Chaque lieu de couleur dans le film témoigne d'une épaisseur. En effet lorsqu'un rayon de lumière traverse un film de savon, il rencontre deux interfaces : air-liquide à l'entrée dans le film, et liquide-air en sortant du film. Or, les interfaces sont partiellement réfléchissantes : on peut par exemple voir

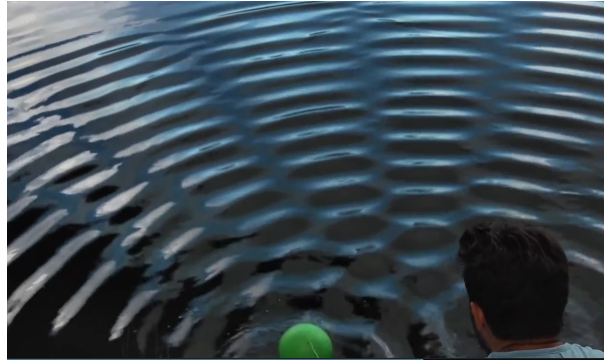


FIGURE 4.1 – Sur cette photo d'expérience réalisée en milieu naturel, on observe l'opérateur générant en deux points sources distants, des ondes mécaniques à la surface de l'eau, i.e. des vagues. De ces deux points sources, des vagues se propagent de manière concentrique et l'on observe bien les nœuds et les ventres de l'interaction entre ces deux ondes : une Figure d'interférence.

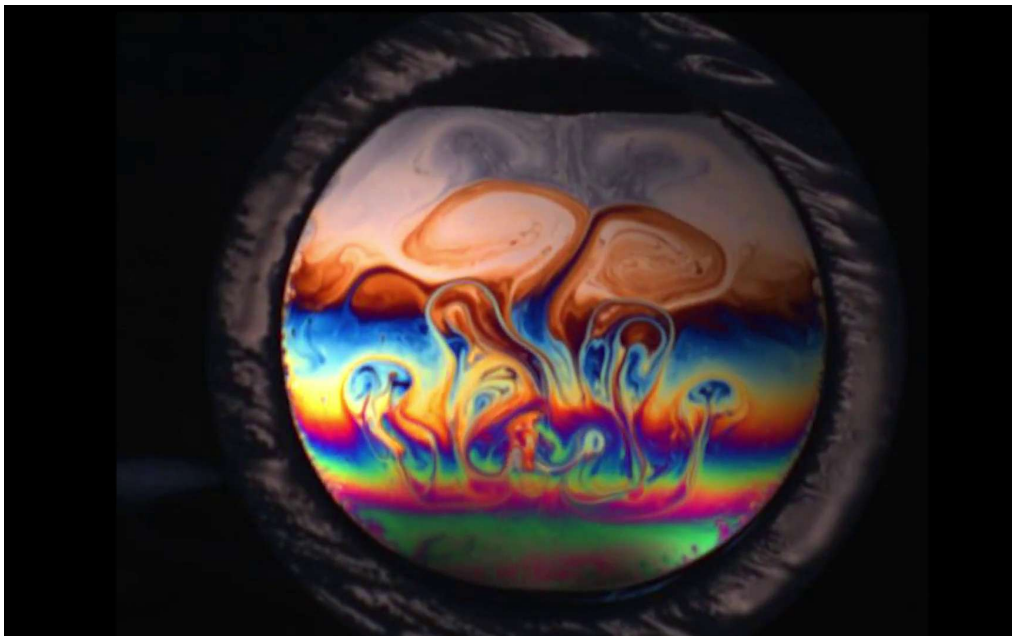


FIGURE 4.2 – Photo récupérée d'une des magnifiques vidéos tirées d'une expérience de visualisation d'ondes sonores sur des films de savon de l'université de Paris-Diderot. *Source : <http://www.msc.univ-paris-diderot.fr/elias/Opera.html>*

des reflets du monde dans une flaque d'eau.

Pour étudier les interactions entre les surfaces, il est nécessaire de mesurer avec précision la distance qui les sépare. Or, pour certains types de surfaces, en particulier celles qui sont stables ou fonctionnelles uniquement dans un environnement aqueux, cette tâche apparemment simple reste un défi. L'interférence de la lumière est couramment utilisée pour mesurer de petites séparations entre les surfaces, par exemple dans les célèbres expériences de Michelson-Morley [MM87]. Dans les années 1960, Adam Curtis [Cur64] a eu l'idée d'utiliser l'interférence d'ondes électromagnétiques pour mesurer la distance entre un substrat de verre et la face inférieure d'une cellule vivante qui y adhère, sous l'eau et observée au microscope optique. Ce travail précurseur a connu un déploiement important en biologie et biophysique pour étudier les propriétés cellulaires. La force de cette technique est

qu'en couplant deux longueurs d'ondes différentes de déterminer l'épaisseur absolue du film.

Prenons notre cas d'une goutte d'huile dans un canal microfluidique. Si nous considérons les différentes interfaces planes nous nous retrouvons dans la situation illustrée Figure 4.3. Le principe de

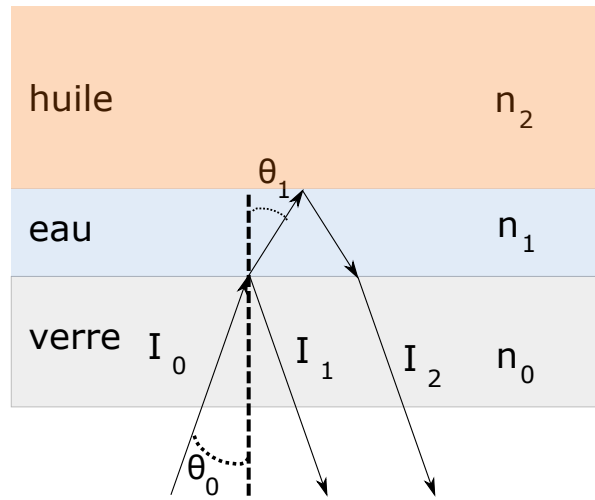


FIGURE 4.3 – Schéma de principe des réflexions au sein d'un film d'eau piégé entre du verre et de l'huile. Un faisceau de lumière  $I_0$  arrive sur le film, une partie est réfléchi, l'autre est transmise. Cette deuxième partie va également se réfléchir et se transmettre à la deuxième interface. Chaque réflexion/transmission diminue l'énergie du faisceau, donc au premier ordre nous ne prenons en compte que les rayons issus des deux premières réflexion/transmission notés  $I_1$  et  $I_2$  ici.

base de la RICM est l'interférence de deux ondes électromagnétiques. Lorsque les ondes lumineuses sont suffisamment éloignées de la source, on peut alors considérer celles-ci comme des ondes planes unidimensionnelles et la polarisation associée à l'onde est définie par l'orientation des oscillations du champ électrique. Les champs électriques  $\mathbf{E}_1$  et  $\mathbf{E}_2$  sont solutions des équations de Maxwell et on peut écrire pour deux polarisations différentes mais pour une même fréquence  $\omega$  :

$$\mathbf{E}_1(r, t) = \mathbf{E}_{01} \cos(k_1 \cdot r - \omega t + \phi_1) \quad (4.1)$$

$$\mathbf{E}_2(r, t) = \mathbf{E}_{02} \cos(k_2 \cdot r - \omega t + \phi_2) \quad (4.2)$$

où  $\mathbf{E}_{01}$  et  $\mathbf{E}_{02}$  sont les intensités vectorielles des deux champs électriques,  $k = 2\pi/\lambda$  est le nombre d'onde avec  $\lambda$  la longueur d'onde et  $\phi$  la phase initiale de chaque onde. Lorsque les deux ondes se superposent, l'intensité lumineuse moyenne, du champ électrique résultant  $\mathbf{E}$ , est déterminée par :

$$I = \langle \mathbf{E}^2 \rangle = \frac{\mathbf{E}_{01}^2}{2} + \frac{\mathbf{E}_{02}^2}{2} + 2\langle \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2 \rangle = I_1 + I_2 + 2\langle \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2 \rangle \quad (4.3)$$

En utilisant les définitions des champs électriques et un peu de trigonométrie, on peut réécrire :

$$\langle \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2 \rangle = \frac{1}{2} \mathbf{E}_{01} \mathbf{E}_{02} \cos(\delta) \quad (4.4)$$

où  $\delta$  représente la différence de phase entre les deux ondes planes, i.e. le déphasage.

Dès lors, on voit que si les deux ondes ont des polarisations orthogonales (i.e.  $\mathbf{E}_{01} \perp \mathbf{E}_{02}$  alors  $\mathbf{E}_{01} \cdot \mathbf{E}_{02} = 0$  et donc l'intensité résultante est simplement la somme des deux intensités de départ  $I = I_1 + I_2$ . D'autre part, si les ondes ont des polarisations identiques, on a alors des interférences et

l'intensité lumineuse associée est :

$$I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos(\delta) \quad (4.5)$$

Finalement, si l'on considère une onde interférant avec elle-même (en reprenant l'exemple des vagues vu ci-dessus) (i.e. :  $I_1 = I_2 = I_0$ ), on obtient :

$$I = 2I_0(1 + \cos(\delta)) = 4I_0 \cos^2(\delta/2) \quad (4.6)$$

L'intensité résultante dépend donc de  $\delta$  et on pourra avoir des interférences constructives ou destructives. Les interférences constructives seront obtenues pour  $\delta \equiv 0 [2\pi]$  et destructives  $\delta \equiv \pi [2\pi]$ .

### Exemple simplifié sous incidence normale

La différence de chemin optique entre les deux ondes est liée à l'épaisseur du film et à l'indice du milieu optique traversé. Si l'on fait l'hypothèse d'incidence normale (i.e. ,  $\theta_0 = 0$ ), et que l'on regarde une interface air/eau parfaitement plane et exposée à une lumière parfaitement monochromatique on obtient un modèle très simple liant le contraste (i.e. le niveau de gris) et l'épaisseur du film  $h$ . La différence de marche ici est simplement le chemin optique parcouru par le rayon lumineux  $I_2$ , noté  $l$  :

$$l = 2n_1 \cdot h \quad (4.7)$$

La différence de chemin optique est également liée au déphasage entre les deux rayons. Ce lien s'exprime simplement :

$$l = \delta \frac{\lambda}{2\pi} \quad (4.8)$$

On a alors dans notre cas un lien entre l'épaisseur du film et l'intensité observée au niveau de l'interface eau/air proche de l'objectif :

$$l = \delta \cdot \frac{\lambda}{2\pi} = 2n_1 \cdot h \quad (4.9)$$

Une subtilité, néanmoins importante, est la suivante : l'indice optique du film d'eau peut être plus ou moins élevé que celui de l'huile. En effet, on a de manière générale pour les indices de l'eau et du verre : ( $n_1 \simeq 1.33$ ,  $n_0 \simeq 1.52$ ). L'indice de l'huile dépend de sa nature. Dans ces travaux nous nous sommes restreints à de l'huile fluorée dont l'indice optique est  $n_2 \simeq 1.25$ . D'autres huiles comme l'hexadécane sont plus réfringentes que l'eau  $n_{hexa} \simeq 1.43$ . Dans ce cas la réflexion sur l'interface eau/huile (on passe d'un milieu moins réfringent à un milieu plus réfringent) induit un déphasage de  $\pi$  pour  $I_2$  et pas pour  $I_1$ .

Cela signifie que selon la nature de l'huile, lorsque l'épaisseur du film d'eau tend vers 0, l'intensité lumineuse tend vers un maximum d'intensité pour une huile moins réfringente que l'eau (c'est le cas de l'huile fluorée), ou vers un minimum d'intensité dans l'autre cas.

La différence de chemin optique totale est alors  $l = 2n_2 \cdot h + \lambda/2$ . En somme, la mesure de  $I$  donne une valeur pour  $\delta$ . On en déduit  $l$ , qui donne finalement une mesure de  $h$ . Cette mesure est relative puisque la valeur de  $\delta$  est connue modulo  $2\pi$ . La problématique de la mesure absolue sera abordée plus tard lors de la validation du procédé sur une goutte statique. Si  $h = 0$  alors  $\delta = \pi [2\pi]$ , l'intensité

est minimum. Cette dernière passera par un maximum si  $\delta = 0 [2\pi]$ . Ainsi, un maximum (et respectivement minimum) d'intensité intervient lorsque l'épaisseur est un multiple de :

$$h = \frac{\lambda}{2n_1} \quad (4.10)$$

On obtient ainsi que l'intensité passe par un extremum à chaque fois que l'épaisseur du film passe par un multiple de  $\frac{\lambda}{4n_2}$ .

Figure 4.4 montre le contraste théorique obtenu après prise en compte des effets mentionnés ci-dessus. Tracé ici pour une interface eau/huile fluorée, on constate bien que lorsque l'épaisseur tend vers 0, on tend vers un maximum d'intensité. Les minima et maxima sont représentés par les points jaunes et rouges et ils interviennent bien lorsque l'épaisseur passe par un multiple de  $\frac{\lambda}{4n_1}$ .

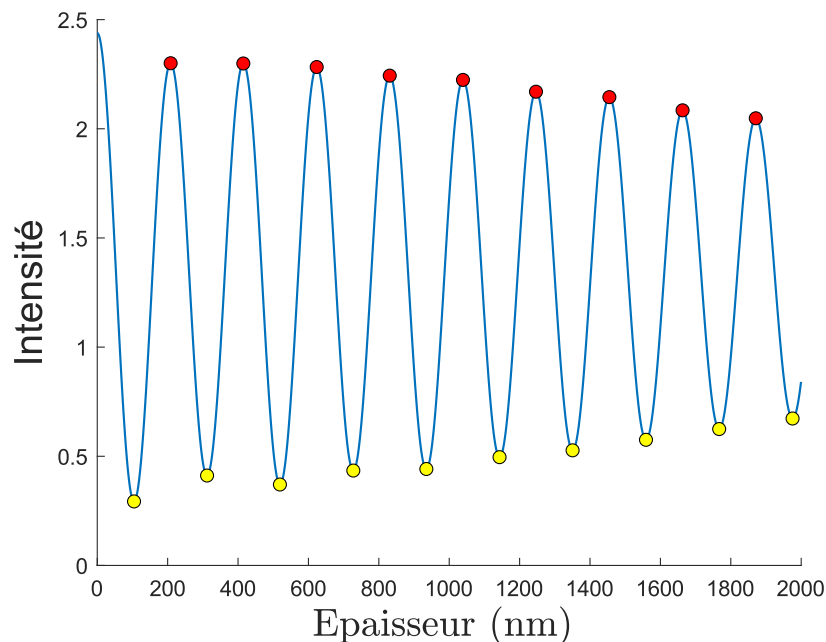


FIGURE 4.4 – Tracé théorique du contraste obtenu pour une interface eau/huile fluorée éclairée par une lumière de longueur d'onde  $\lambda = 546 \pm 11$  nm.

Nous allons voir par la suite comment il est possible de tirer profit de ces propriétés en microfluidique.

#### 4.1.2 Schéma de principe du dispositif

Le principe physique, présenté au 4.11, reliant intensité lumineuse et épaisseur est utilisé pour mesurer la topographie du film de lubrification entre la goutte et la paroi en verre. Cette mesure a déjà été réalisée et publiée sur le dispositif RICM du laboratoire INSERM, Marseille. Le principe théorique de l'expérience que nous avons monté, et l'analyse des images, que nous présentons dans la suite de cette section est très largement inspirée du papier d'Axel Huerre [HJTV16]. Figure 4.5 est une adaptation d'une de ses Figures à notre dispositif. Elle présente le dispositif RICM quasi complet, avec la source lumineuse, les différents diaphragmes présents au sein du microscope, le filtre passe-bande,

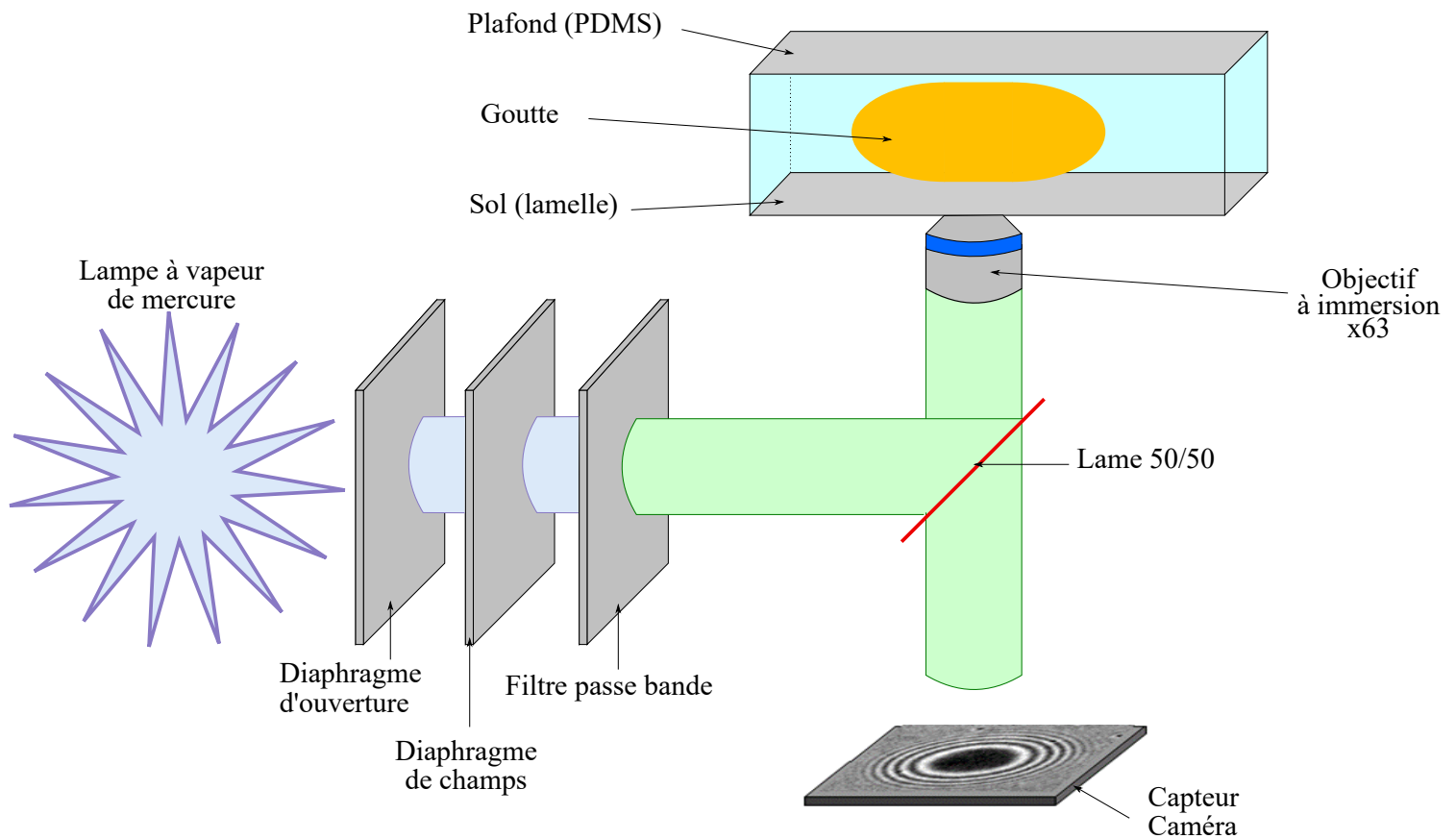


FIGURE 4.5 – Représentation schématique du dispositif RICM utilisé. Adapté de [HJTV16].

la lame 50/50 permettant l'observation en réflexion, l'objectif à immersion x63 utilisé, l'échantillon avec la goutte représentée et enfin le capteur de la caméra de type sCMOS. L'entière des choix techniques de ce dispositif est discutée plus en aval. Pour l'heure, le modèle vu précédemment est adapté à notre observation de gouttes dans un canal microfluidique.

Le principe de base de la formation d'interférences en réflexion dans notre canal microfluidique est décrit en Figure 4.6

### 4.1.3 Modèle plus complet sous épi-illumination

Cette fois ci, oublions l'hypothèse d'incidence normale. Un échantillon est observé avec une onde monochromatique en épi-illumination, c'est-à-dire une illumination par un cône de lumière, ce qui est le cas lors d'une observation via un microscope. On peut alors définir le coefficient de réflexion pour un angle d'incidence donné et ensuite intégrer les angles d'incidence entre  $\theta_0 = 0$  et  $\theta_0 = \theta_m$  l'angle maximal correspondant à l'INA (Incident Numerical Aperture). Ceci nous permet de prendre en compte le fait que les expériences sont réalisées sous microscope et que l'illumination est un cône de lumière. Le rayon incident, d'intensité  $I_0$  est partiellement réfléchi à l'interface verre/eau et on note  $I_1$  l'intensité du rayon réfléchi. La partie transmise est réfléchi à l'interface suivante. Son intensité est notée  $I_2$  (voir Figure 4.3). Les deux rayons interfèrent lorsqu'ils sont collectés par l'objectif du microscope.

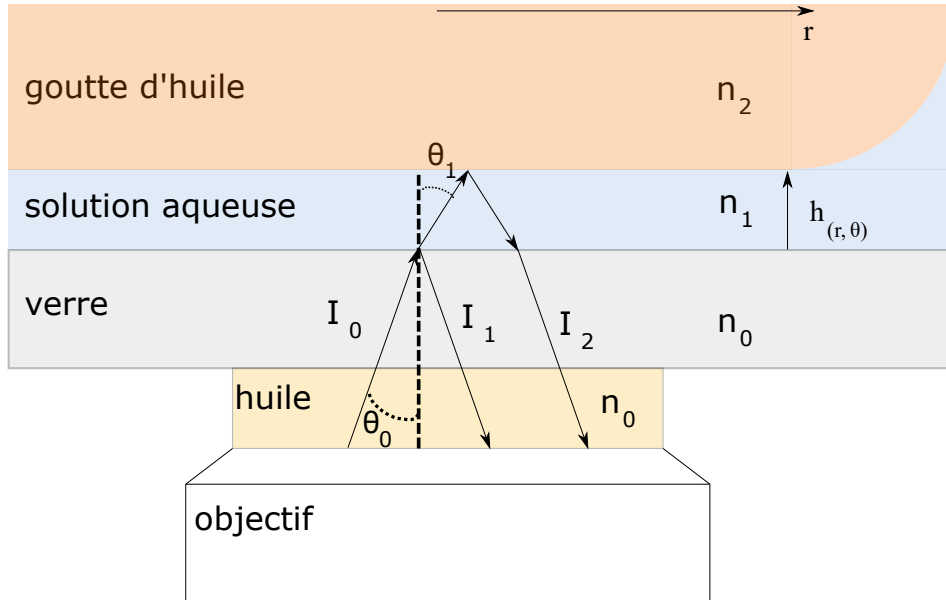


FIGURE 4.6 – Schéma de principe de la RICM. On y voit les 4 milieux traversés par le faisceau lumineux : l'huile à immersion, la lamelle de verre, la solution aqueuse qui forme le film de lubrification et la goutte d'huile (objet de notre observation). Sont notés  $n_0, n_1$  et  $n_2$  les indices optiques respectifs du verre (et de l'huile à immersion) de la solution aqueuse et de l'objet observé (ici, notre goutte d'huile).

On peut déterminer  $\cos(\theta_1)$  l'angle de transmission par la loi Snell-Descartes sur la réflexion :

$$n_0 \cdot \sin \theta_0 = n_1 \cdot \sin \theta_1 \quad (4.11)$$

Dans le cas général, à une interface l'onde électromagnétique incidente peut être décomposée selon deux directions de polarisation  $s$  et  $p$ . La polarisation  $s$  est perpendiculaire au plan d'incidence et la polarisation  $p$  est contenue dans ce plan. Les coefficients de réflexion en intensité  $R_{ij}$  sont liés aux coefficients de Fresnel (coefficients en amplitude), introduits par Augustin Jean Fresnel [Fre68], et interviennent dans la description du phénomène de réflexion-réfraction des ondes électromagnétiques à l'interface entre deux milieux dont l'indice de réfraction est différent. Nous avons :

$$r_{ij}^p = \frac{n_j \cos \theta_i - n_i \cos \theta_j}{n_j \cos \theta_i + n_i \cos \theta_j} \quad r_{ij}^s = \frac{n_i \cos \theta_i - n_j \cos \theta_j}{n_i \cos \theta_i + n_j \cos \theta_j} \quad (4.12)$$

où  $r_{ij}^s$  et  $r_{ij}^p$  sont les coefficients de Fresnel. On obtient alors les coefficients de réflexion :

$$R_{ij} = |r_{ij}^s - r_{ij}^p|^2 \quad (4.13)$$

Les intensités  $I_1$  et  $I_2$  sont reliées aux différents coefficients de réflexion des interfaces :

$$I_1 = R_{01} I_0 \quad I_2 = (1 - R_{01})^2 R_{12} I_0 \quad (4.14)$$

Il ne reste plus qu'à intégrer l'intensité, pour tout angle  $\theta_0$ , sur l'ensemble du cône d'illumination et ainsi obtenir l'intensité totale réfléchie à une interface :

$$I_1 \propto \int_0^{\theta_m} R_{01} I_0 \sin(\theta_0) d\theta_0 \propto \int_0^{\theta_m} |r_{01}^s - r_{01}^p|^2 \sin(\theta_0) d\theta_0 \quad (4.15)$$



## Mesure de l'ouverture numérique

L'ouverture numérique (NA pour *Numerical Aperture*) est un paramètre à prendre en compte dans nos expériences. Elle définit la taille, plus précisément l'ouverture du cône d'illumination. La mesurer est relativement simple. Nous la mesurons dans l'air puis par les lois de Snell-Descartes nous déterminons l'angle d'incidence à travers la lamelle et l'huile à immersion. La mesure consiste à observer l'évolution de la taille du disque lumineux  $\emptyset$  sur une feuille placée sur le trajet du faisceau lumineux en fonction de la hauteur  $L$ . Typiquement, en faisant varier la hauteur de cette feuille, et en mesurant le diamètre du disque lumineux, on remonte au demi-angle au sommet du cône d'illumination.

$$\tan(\theta_m) = \frac{\emptyset}{L} \quad (4.16)$$

Dans notre système, le demi angle au sommet du cône d'illumination dans l'air est mesuré à :

$$\theta_m \sim 20^\circ$$

### 4.1.4 Prise en compte de réflexions au plafond

La complexité vient également du nombre plus important d'interfaces que dans l'exemple présenté au 4.1.1.

La présence de l'huile à immersion entre l'objectif du microscope et la lamelle de verre supprime deux interfaces (air/verre) en remplaçant l'air par une huile dont l'indice optique est sensiblement égal à celui du verre. Au-dessus de la lamelle, l'épaisseur du film de lubrification sous la goutte est de l'ordre de la dizaine à quelques centaines de nanomètres. La hauteur de la cavité est de l'ordre de 15 micromètres. Il faut prendre en compte les deux interfaces supplémentaires qu'engendre notre géométrie à savoir l'interface huile/eau du sommet de la goutte et l'interface eau/PDMS du plafond de notre cavité. Une amélioration du modèle par rapport à 4.1.1 consiste à considérer une contribution additionnelle correspondant à la réflexion au plafond de la cellule microfluidique. Dans la prise en compte de la réflexion au plafond d'un canal d'épaisseur  $H$ , l'objet confiné (i.e. la goutte) est considéré comme un milieu d'indice optique  $n_2$ , d'épaisseur macroscopique  $H$  (on néglige la contribution des deux films de lubrification devant la hauteur de la cavité). Au sein de cette épaisse couche de fluide, la lumière perd sa cohérence et aucune interférence n'a lieu entre les rayons réfléchis des interfaces inférieure et supérieure si tant est que le signal soit correctement défini, nous y reviendrons. Le signal total réfléchi provenant du canal est donc la somme incohérente des intensités provenant de l'empilement 0-1-2 d'une part et de l'empilement 2-1-3, où 3 est le plafond en PDMS (non représenté en Figure 4.6 mais présent en Figure 4.7) d'autre part. Étant donné que le signal provenant de l'empilement supérieur est atténué deux fois par le facteur de transmission  $(1 - R_{012})$  dû à la double traversée de l'empilement inférieur, l'intensité totale réfléchie par le canal peut s'écrire :

$$I_{th} = R_{012} + p(1 - R_{012})^2 \cdot R_{123} \quad (4.17)$$

Où  $p$  est un paramètre d'ajustement, variant de 0 à 1. Dans les cas où la prise en compte de ces réflexions au plafond est nécessaire alors  $p = 1$ , sinon  $p = 0$ . On comprend que l'influence de la réflexion au plafond dépende de l'épaisseur du canal  $H$ . Cette dépendance a été mesurée par les auteurs [HJTV16] et est présentée dans Figure 4.8. D'après ce graphique l'épaisseur joue un rôle dès qu'elle devient inférieure à  $100 \mu\text{m}$ . Ces réflexions ajoutent un fond lumineux à notre image, mais dans le

cas où la longueur de cohérence de la source est importante devant la taille du canal, ces mêmes réflexions peuvent générer des interférences et perturber nos mesures. Ce point est détaillé plus bas.

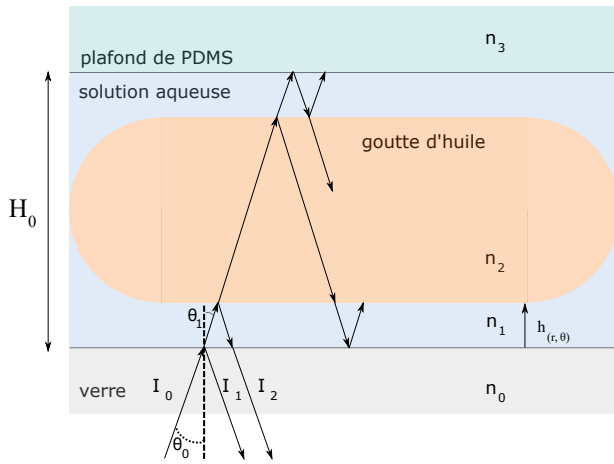


FIGURE 4.7 – Schéma montrant les différentes possibilités de réflexion à prendre en compte, ou non, dans le modèle optique.

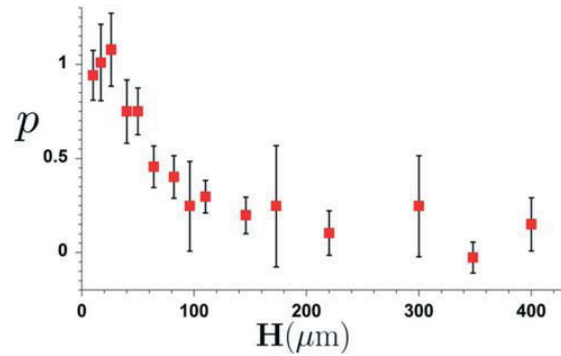


FIGURE 4.8 – Contribution de la réflexion au niveau du plafond de la cavité en fonction de la hauteur de celle-ci. Elle est particulièrement importante en deçà de  $30 \mu\text{m}$  et négligeable au-delà de la centaine de microns. Extraite de [HJTV16].

Dans nos expériences, l'épaisseur de la cavité est de  $H_0 \sim 15 \mu\text{m}$ , il va donc falloir prendre en compte cette réflexion, et nous prendrons  $p = 1$  dans le modèle optique. Le code du modèle optique, déterminant l'intensité totale réfléchi par le canal est donnée en annexe. La méthode expérimentale de détermination de l'épaisseur du film de lubrification consiste à mesurer l'intensité réfléchi, puis à déduire l'épaisseur à partir d'un modèle optique ayant comme paramètres d'entrée : la longueur d'onde de la lumière monochromatique incidente, donnée par la valeur de la longueur d'onde au centre de la bande passante du filtre, les indices de réfraction des différents milieux à cette longueur d'onde et le demi-angle au sommet du cône d'illumination. Dans les faits, le modèle optique établit la courbe du contraste théorique en fonction de l'épaisseur du film. Ensuite, on obtient un contraste expérimental par la mesure des intensités réfléchies par le canal et les références, que l'on compare au modèle optique théorique pour en déduire l'épaisseur. Dans la suite est présenté le dispositif expérimental que nous avons mis en place à l'Institut de Physique de Rennes, sont discutées ensuite ses performances et les choix qui ont été faits pour les obtenir.

## 4.2 Dispositif expérimental

Notre objectif est d'observer des objets dynamiques (gouttes ou bulles) poussés par une solution a priori quelconque dans une cellule microfluidique. Cet environnement implique une prise en compte des paramètres expérimentaux de notre dispositif qui doit donc s'adapter aux spécificités de notre système. Le cahier des charges du dispositif est donné ci-dessous :

### Cahier des charges

- Observer des gouttes de rayon maximum  $R \sim 150 \mu\text{m}$ , (*critère de confinement et d'observation des gouttes*).
- Observer des gouttes ayant des vitesses  $0 < U_d < 2 \text{ cm/s}$  (*critère sur la fréquence d'acquisition*).
- Changer de longueurs d'ondes de l'éclairage pour sonder différentes épaisseurs.

Pour répondre à ce cahier des charges le montage expérimental de la RICM est conçu en jouant sur les 3 points suivants :

- la source lumineuse,
- l'acquisition,
- l'optique.

En jouant sur ces 3 points nous avons monté un dispositif RICM performant dans le cadre de notre expérimentation : des gouttes allant à des vitesses couvrant au moins une décade du régime capillaire.

#### 4.2.1 Montage de l'expérience

L'ensemble du dispositif est monté sur un microscope inversé de chez Leica, un DM-IRB. Pour effectuer la mesure de la mobilité des gouttes (cf Chapitre 2 et 3), nous observons les gouttes en transmission. C'est à dire que l'échantillon est au travers du chemin du faisceau lumineux (la source lumineuse au dessus par exemple, et le capteur, la caméra, au-dessous). La source lumineuse en transmission est une source de lumière blanche halogène classique, qui a été utilisée pour obtenir les images présentées au chapitre précédent. En revanche, pour pouvoir effectuer de l'interférométrie, nous devons avoir capteur et source lumineuse du même côté de l'échantillon. Ainsi, le faisceau lumineux vient se réfléchir sur l'échantillon : d'où l'éclairage dit en réflexion. La source lumineuse en réflexion sur ce microscope est une lampe à décharge, à vapeur de mercure, dont le spectre est présenté ci-dessous, Figure 4.9.

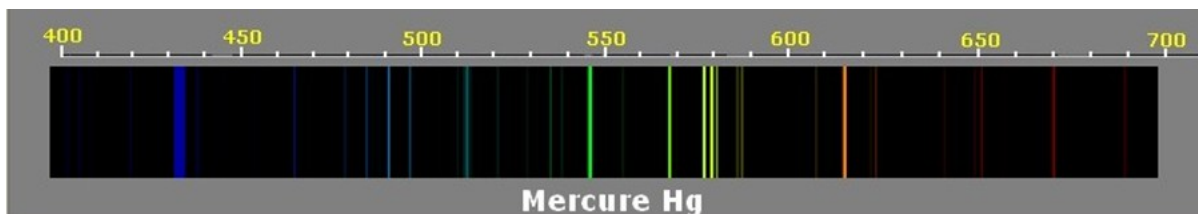


FIGURE 4.9 – Spectre d'émission d'une lampe à vapeur de mercure. Les deux pics les plus intenses sont le bleu et le vert situés respectivement autour de 435 nm et 543 nm.

#### La source lumineuse

La source lumineuse utilisée dans le dispositif RICM est une lampe à décharge, à vapeur de mercure de 100W dont le spectre est présenté Figure 4.9.

Le compromis à trouver est le suivant : *plus on prend une large gamme de spectre plus on a de signal, mais moins on a de contraste sur les interférences*. En effet, comme vu plus haut, deux ondes

conduisent à la même valeur d'intensité si leur fréquence sont proches, c'est-à-dire si leur longueur d'onde est proche l'une de l'autre. De plus, l'indice optique des milieux dépend également de la longueur d'onde. Cela implique que les franges d'interférences de chacune des longueurs d'onde composant la lumière incidente se superposent et conduisent à une extinction du contraste.

Il est nécessaire de couper le signal et de le centrer sur une petite gamme de longueurs d'onde pour garder un contraste important. Nous avons fait le choix de filtres passe-bande centrés sur les raies d'émission de notre lampe à décharge (*exemple* : 543/22 nm BrightLine® single-band bandpass filter, notre filtre vert), i.e. centrés sur les deux pics présentés plus bas.

Pour savoir s'il faut choisir un éclairage à LED, une lampe à décharge avec un filtre ou un laser, il faut se poser la question de ce que nous voulons observer. En effet, l'épaisseur type du film de lubrification que nous cherchons à mesurer est de l'ordre de la dizaine de nanomètres or 2 ondes lumineuses interfèrent si et seulement si elles sont cohérentes entre elles. Entre en jeu alors la longueur de cohérence  $l_c$  qui est définie comme la longueur caractéristique sur laquelle une onde est cohérente avec elle même (train d'onde). Le temps de cohérence  $\tau_c$  est défini comme le temps durant lequel une onde est cohérente. Il est inversement proportionnel à la largeur de la bande spectrale. On a :

$$l_c = c\tau_c = \frac{\lambda_0^2}{\Delta\lambda} \quad (4.18)$$

On voit directement que des sources laser auront des longueurs de cohérence très importantes. Et même trop importantes. Dans notre cas, pour observer les interférences qui sont uniquement dues au film de lubrification, il faut que la longueur de cohérence de notre source soit du même ordre de grandeur que deux fois l'épaisseur maximale de notre film de lubrification. Dès lors, si on utilise une source laser qui fait partie des sources lumineuses avec les longueurs de cohérence les plus grandes utilisables, le risque est que la longueur de cohérence soit plus importante que la hauteur du canal microfluidique et qu'il faille donc prendre en compte dans la Figure d'interférences, les interactions avec les interfaces successives : l'interface huile/solution aqueuse du haut de la goutte ainsi que l'interface phase aqueuse/PDMS encore au-dessus, i.e. le plafond. La contribution de ce dernier ne serait pas qu'un simple fond lumineux mais également une source d'interférences multiples.

À l'aide d'un spectromètre, nous avons mesuré le spectre du faisceau lumineux obtenu en sortie d'objectif pour les deux filtres utilisés ainsi que la LED utilisée dans le montage "multi-LED" discuté en fin de chapitre.

Ce sont ces spectres que nous implantons dans les modèles optiques reliant intensité et épaisseur pour les montages avec filtre.

### Application numérique

Pour le filtre vert dont les références sont *543/22 nm BrightLine® single-band bandpass filter*, la longueur d'onde centrale est de  $\lambda_0 = 543$  nm, et la bande passante  $\Delta\lambda = 22$  nm. D'après l'équation 4.18 cela donne une longueur de cohérence  $L_c \approx 13$   $\mu\text{m}$ , valeur inférieure à l'épaisseur supposée des gouttes, on ne risque pas **d'interférences supplémentaires** dues à une réflexion au plafond.

### L'acquisition

L'acquisition comprend le capteur de la caméra et les paramètres possibles de l'acquisition. Avant d'aller plus loin, il est important de faire un aparté sur la sensibilité. Pour simplifier, un photosite est

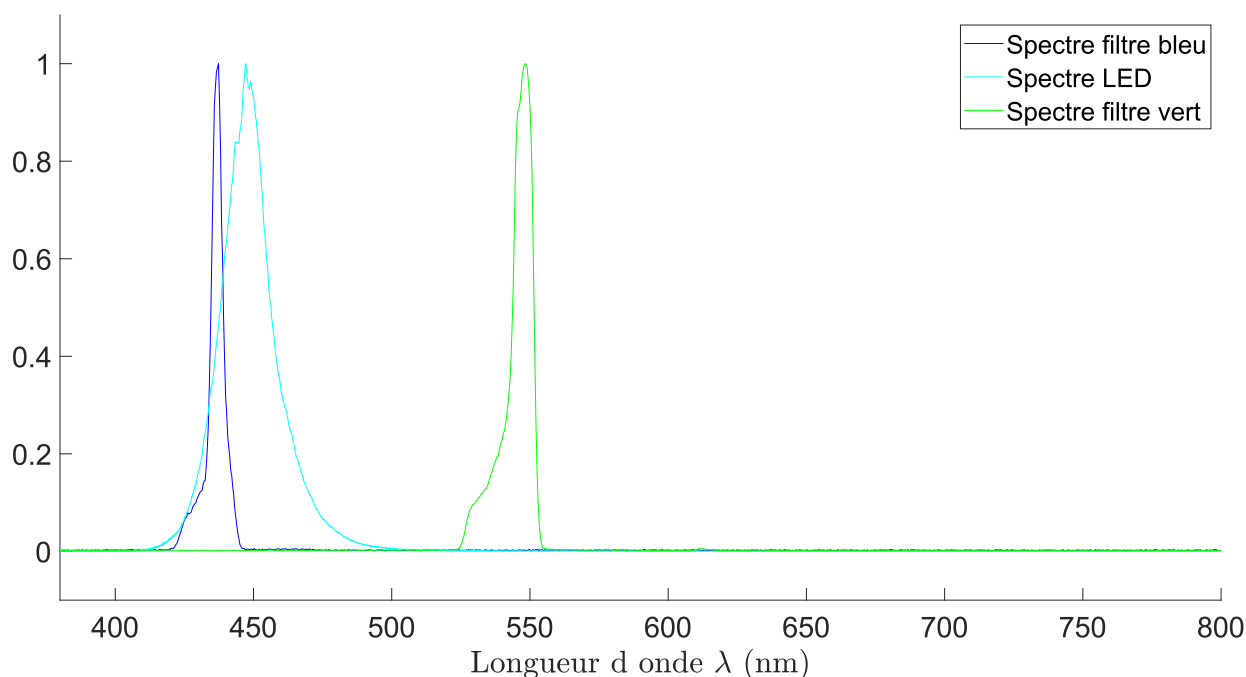


FIGURE 4.10 – Spectre de notre faisceau en sortie d'objectif, respectivement avec la lampe à vapeur de mercure couplée à un filtre bleu, à un le filtre vert et la configuration "finale" avec une LED bleue.

une petite surface d'un capteur électronique destinée à capter des photons. C'est même l'unité de base du capteur. Un pixel est un ensemble de 3 ou 4 photosites, un bleu, un ou deux verts et un rouge. Pour du monochrome,  $\text{pixel} \approx \text{photosite}$ . Les photosites, indépendants les uns des autres, sont organisés en lignes et colonnes formant une matrice de points, qui correspondent à chaque pixel d'une image numérique.

En ce qui concerne leur capacité à capter la lumière, ils peuvent être comparés à des récipients recevant de l'eau de pluie. Donc pour une pluie donnée, plus le récipient sera grand, et plus il recevra d'eau. En optique cela peut se traduire par : plus le photosite sera grand et plus il recevra de lumière. Seulement, sur une surface de silicium donnée (le capteur) plus les photosites sont grands, et moins il y en aura, donc plus la résolution spatiale sera faible. Lors de la conception d'un capteur, deux impératifs contradictoires sont à gérer : la sensibilité du capteur aux faibles puissances lumineuses et sa résolution (au sens de l'optique). Pour la résolution il est aisément compréhensible que plus le photosite est petit, meilleure est la résolution spatiale du détecteur. La diffraction doit également être prise en compte. En effet, la diffraction est un phénomène lié au comportement des ondes : lorsqu'elles rencontrent un obstacle ou une ouverture, ce dernier se comporte comme une source secondaire. Cela résulte en l'apparition de zones d'amplitudes maximales et minimales autour de la direction de propagation ; il apparaît une figure de diffraction appelée tache d'Airy, représentée Figure 4.11.

Deux objets très proches du fait de ce phénomène vont se superposer rendant leur distinction difficile, problème schématiquement représenté Figure 4.12. La résolution d'un microscope désigne sa capacité à séparer des détails très voisins. Indépendamment du capteur utilisé et des aberrations ou imperfections des lentilles, la résolution du microscope optique est fondamentalement limitée

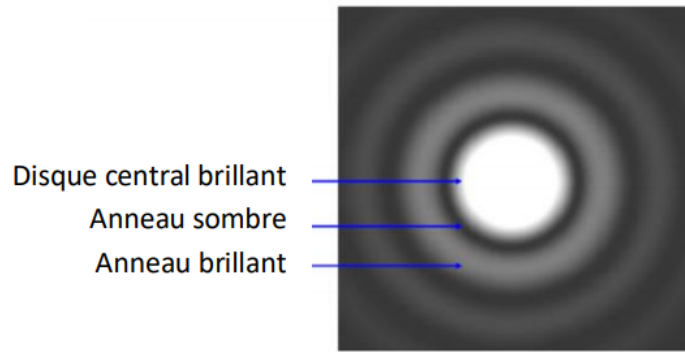


FIGURE 4.11 – Tache d’Airy

par la diffraction de la lumière. En effet, un point source formera nécessairement une image en forme de tache d’Airy.

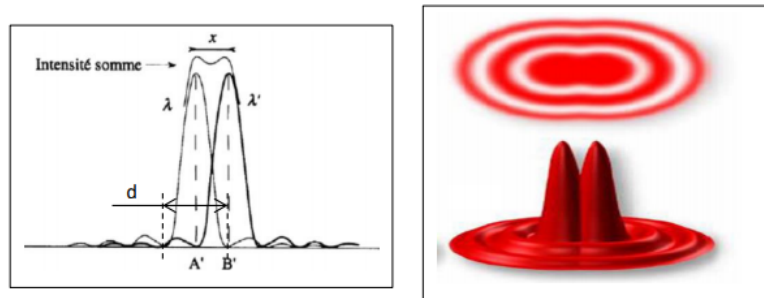


FIGURE 4.12 – Limite de résolution

Il est possible de déterminer le rayon de la tache d’Airy numériquement parlant. En effet, on montre que le rayon de cette dernière s’écrit comme :

$$r_{airy} = 1.22 \frac{\lambda}{2NA} \quad (4.19)$$

où  $NA$  est l’ouverture numérique de l’objectif. Cela correspond à l’angle d’ouverture de l’objectif (représenté Figure 4.13), pondéré par l’indice de réfraction du milieu  $n$  entre la platine et l’objectif :  $NA = n \cdot \sin(\theta)$ . Avec nos valeurs numériques, on détermine  $r_{airy} \approx 0.25 \mu\text{m}$  au niveau de l’objectif,

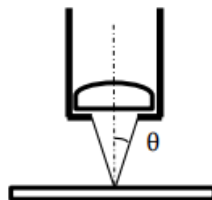


FIGURE 4.13 – Schéma de principe de l’ouverture numérique.

ce qui donne au niveau du capteur de la caméra un rayon affecté par le grossissement du système optique ( $\times 63$ ) :

$$r_{airy}(cam) = r_{airy}(obj) \times G \approx 16.3 \mu\text{m}$$

Enfin, par analogie avec le théorème de Shannon-Nyquist pour le traitement de données stipulant que la fréquence d'échantillonnage d'une information doit être au moins deux fois supérieure à la fréquence maximum de la donnée nous pouvons faire de même et imposer au moins trois photosites dans le diamètre de cette tache. Figure 4.14 illustre ce propos.

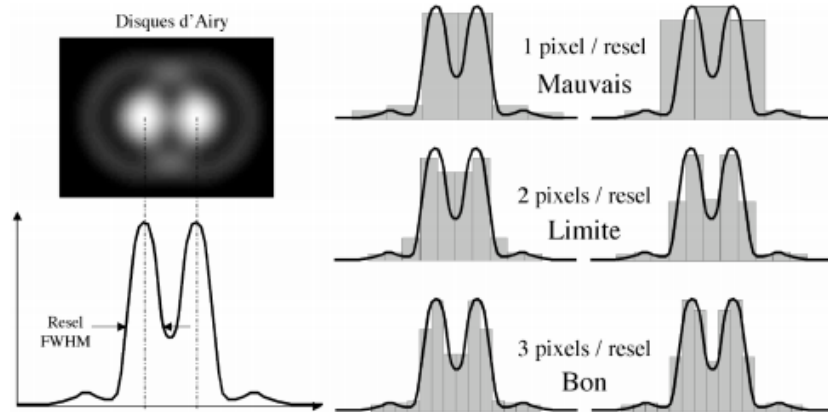


FIGURE 4.14 – Illustration du théorème de Nyquist-Shannon pour l'optique. Il faut que la taille du pixel soit strictement inférieure à la distance de résolution, c'est-à-dire à la largeur de la tache de diffraction mesurée à mi-amplitude (FWHM, full width half maximum). *Source : Traitement d'images numériques en microscopie - Yves Usson*

Cela nous donne un critère sur la taille maximale des photosites, soit :

$$L_{\text{photosite}} \leq \frac{32.6}{3} \approx 10.8 \mu\text{m} \quad (4.20)$$

Ce critère sera assez facilement rempli; pour des caméras standard, d'une technologie type sCMOS qui est la technologie qui de prime abord serait la plus intéressante pour nous, la taille des pixels est de  $6.5 \mu\text{m} < 10.8 \mu\text{m}$ .

Le dernier type de bruit que nous sommes amenés à rencontrer est le bruit thermique qui est dû à l'agitation thermique des électrons : le courant d'obscurité. Il est donné par le constructeur à une température donnée. Il est possible de le quantifier et de s'en affranchir par traitement d'image. Finalement, la problématique est la suivante : pour une surface de capteur donnée, si on veut augmenter sa résolution spatiale on va en diminuer la dynamique et donc augmenter le bruit.

### Rolling ou global shutter

Un second point à prendre en compte est la technique utilisée pour l'enregistrement des images. Deux possibilités sont offertes : le *rolling shutter* et le *global shutter* que l'on peut traduire par obturateur par ligne ou global. Pour comprendre le rolling shutter, il faut revenir aux technologies des capteurs. Celles-ci se scindent en deux grandes familles : les CMOS pour *Complementary Metal Oxide Semi-Conductor* et les CCD pour *Charge-Coupled Device*. Ces derniers exposent l'intégralité de la surface photosensible en une seule fois. Une fois exposé, le capteur est obturé afin de transférer les charges électriques vers les zones de lecture. Si ce procédé, appelé global shutter, convient bien à la technologie CCD, il est moins efficace avec les capteurs CMOS qui sont moins sensibles à la lumière. Pour raccourcir le temps d'occultation des photodiodes, une technologie de lecture ligne par ligne

(de haut en bas du capteur) est utilisée. Une fois la ligne de photodiode lue, elle peut à nouveau être exposée plus rapidement. On peut noter que cette limitation technique n'est pas inhérente à la technologie CMOS, mais résulte de contraintes liées aux choix techniques et aux coûts de production. En effet, des capteurs CMOS à obturation globale existent déjà depuis longtemps pour des applications industrielles. Ceux-ci nécessitent plusieurs transistors supplémentaires par photodiode, augmentant de facto la complexité de fabrication ainsi que le tarif. Un schéma étant plus parlant, voici schématiquement en Figure 4.15 le problème du rolling shutter.

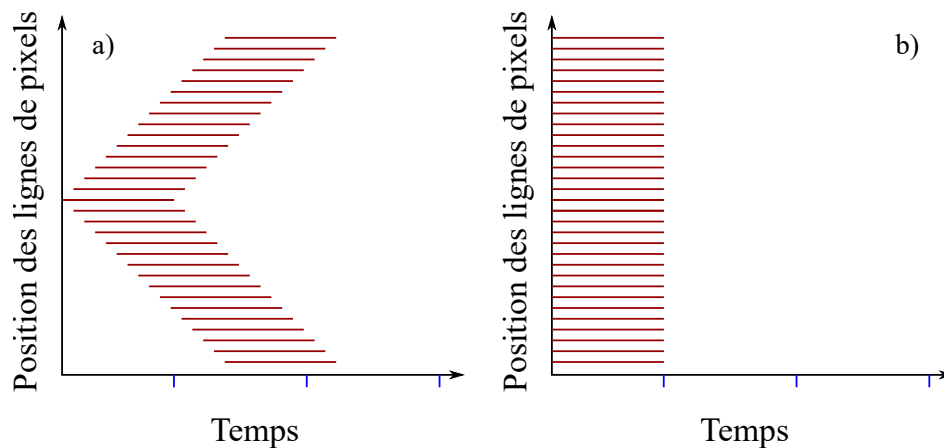


FIGURE 4.15 – Temps d'exposition en fonction de la position de la ligne de pixels. a) *Rolling shutter* où l'exposition commence avec un retard croissant suivant la distance à la ligne de pixels centrale. b) *Global shutter* où l'exposition de tous les pixels commence au même moment.

Il apparaît alors évident que pour notre application la technologie global shutter semble indispensable pour éviter la distorsion des images. Ce critère est primordial. Il nous fait enlever une bonne partie du parc de caméras pour la microscopie.

Un autre critère à observer est celui du rendement quantique, aussi appelé efficacité quantique. Ce dernier, représenté par une courbe en fonction de la longueur d'onde, est le rapport entre le nombre de charges électroniques collectées et le nombre de photons incidents sur une surface photoréactive. Cette efficacité quantique permet de déterminer la sensibilité à telle ou telle longueur d'onde, voir Figure 4.16. Un autre point important à prendre en considération : nous verrons que pour mesurer les plus petites épaisseurs de film (vingtaine de nanomètres), il faudra aller vers de plus faibles longueurs d'ondes pour augmenter la résolution, or la caméra capte plus ou moins de signal en fonction de la longueur d'onde incidente. La technologie emCCD est la technologie garantissant la meilleure efficacité quantique c'est pourquoi elle est utilisée dans les applications types molécules uniques. Trop sensibles par rapport à notre application, ce sont surtout des caméras avec des photosites de grande taille, pas assez résolues ni assez rapides pour nous. La technologie garantissant le meilleur rapport résolution/sensibilité est la technologie sCMOS. Leur défaut est de ne pas être très rapide, surtout en global shutter où la fréquence d'acquisition maximale en *full-frame* avoisine les 50 Hz.



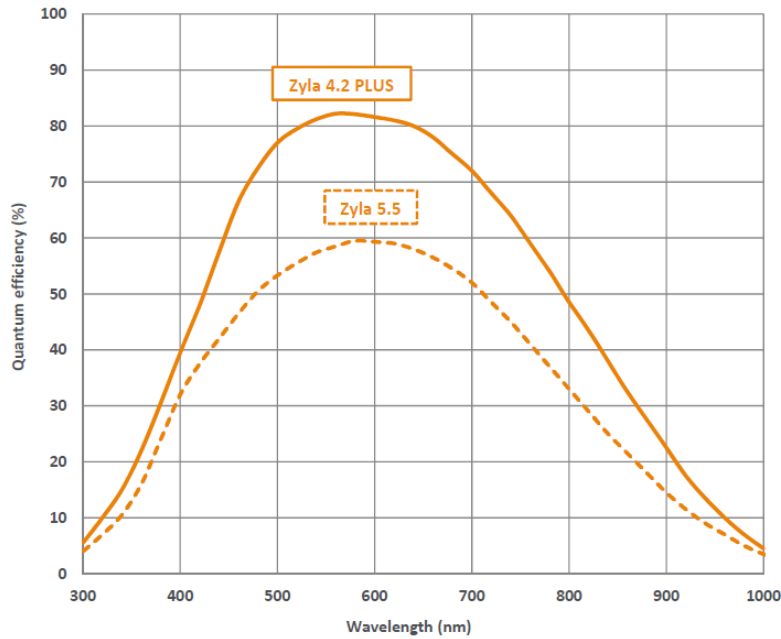


FIGURE 4.16 – Courbe d’efficacité quantique. *Source : Données constructeur Andor*

### Choix du capteur

Nous avons choisi la caméra sCMOS Zyla 5.5 de chez Andor. Elle possède un capteur  $16.64 \times 14$  mm, ce qui, couplé à l’objectif choisi de grossissement  $G = 63$ , donne un champs d’observation de  $265 \times 223 \mu\text{m}$ . Les gouttes ayant un rayon typique de  $R = 100 \mu\text{m}$ , cette taille de capteur répond bien à notre critère sur la taille. La technologie sCmos, nous assure une bonne sensibilité, et la taille de ses photosites ( $6.5 \mu\text{m}$ ) est en accord avec notre résolution de tache d’Airy. Évidemment la partie optique a été réfléchi en boucle fermée avec la partie acquisition. Elle est présentée ci-dessous.

### L’optique

Il existe déjà plusieurs dispositifs RICM : l’observation de cellules ou la caractérisation de surfaces. Une modification du système de Curtis [Cur64] est la méthode *antiflex* utilisée par Ploem [VBTP88] pour observer l’accroche de cellules vivantes à une surface de verre. Elle consiste à rajouter un système polariseur/analyseur croisé dans le chemin optique, couplé à une lame quart-d’onde dans l’objectif. Cette méthode permet de couper la lumière parasite réfléchi en amont de la lame quart d’onde. Son fonctionnement est le suivant : un polariseur polarise rectilignement la lumière incidente. La lumière se trouve polarisée circulairement après être passée à travers une lame quart-d’onde incluse dans l’objectif du microscope (déphasée de  $\pi/4$ ). La lumière réfléchi par l’échantillon repasse par la lame quart d’onde une seconde fois (à nouveau déphasée de  $\pi/4$ ) et redevient polarisée rectilignement, avec une direction de polarisation tournée de  $90^\circ$  par rapport au rayon incident initial. Finalement cette lumière déphasée de  $\pi/2$  par rapport à la lumière entrante dans le système peut traverser l’analyseur croisé (i.e. tournée de  $\pi/2$  par rapport au polariseur en entrée). Cette technique permet de ne récupérer que les rayons réfléchis par l’échantillon et de retirer tout le signal parasite. Il y a des inconvénients à l’utilisation de cette méthode d’amélioration de contraste dans notre cas :

- La perte de signal

- La nécessité d’avoir différentes lames quart-d’onde (associée chacune à la longueur d’onde de l’éclairage), et donc différents objectifs

Premièrement, cela signifie, que pour un signal déjà faible puisque filtré (filtre passe bande de bande passante 22 nm pour notre filtre vert), du signal est encore perdu. D’abord en traversant le polariseur, puis au niveau de lame quart-d’onde qui fonctionne pour une longueur d’onde donnée, à nouveau intrinsèquement par réflexion/transmission au niveau de l’échantillon, à nouveau au niveau de la lame quart-d’onde et enfin au niveau de l’analyseur. Les pertes dues au miroir semi-réfléchissant (lame 50/50 dans le cube du microscope) ne sont pas évitables.

Deuxièmement, une lame quart-d’onde ne remplit sa mission que pour une longueur d’onde donnée. Pour un signal de bande passante  $543 \pm 11$  nm cela fonctionne si la lame quart-d’onde est centrée dans le vert. Néanmoins, si l’on veut changer de couleur, et utiliser notre filtre bleu alors, la lame quart-d’onde ne remplit plus son rôle et nous fait perdre grandement du signal.

Notre choix a été d’utiliser un objectif à immersion classique, fourni avec le microscope (x63 à immersion de chez Leica) et donc de s’affranchir du système polariseur/analyseur croisé + lame quart-d’onde. Cela permet d’accroître notre signal de manière significative (un ordre de grandeur en intensité) et donc de pouvoir descendre le temps d’exposition, ce qui fait partie de nos critères principaux du fait de la dynamique rapide des gouttes étudiées.

Typiquement, si l’on considère une goutte de rayon  $R = 100 \mu\text{m}$ , allant, en prenant une vitesse importante typique des expériences, e.g.  $U_d = 1.5 \text{ cm/s}$ , on construit un temps caractéristique  $\tau_{obs}$  qui est le temps que la goutte met pour parcourir une fois sa taille :

$$\tau_{obs} = \frac{R}{U_d} \simeq 7 \text{ ms} \quad (4.21)$$

Ainsi, pour éviter le flou de bougé, il faut que le temps d’exposition soit très faible devant ce temps d’observation. Si l’on reprend l’exemple de la goutte précédente, avec un temps d’exposition de  $\tau_{exp} = 1 \text{ ms}$ , durant ce temps elle a parcouru  $d = 1.5 \cdot 10^{-2} * 10 \cdot 10^{-3} = 14 \mu\text{m}$ . Ce qui n’est pas petit devant la taille de l’objet. Typiquement, un temps d’exposition de l’ordre de 50 à 10  $\mu\text{s}$  est utilisé dans nos expériences, balayant ainsi respectivement les gouttes les plus lentes, aux gouttes les plus rapides. Ce temps d’exposition est le coeur de notre problème puisque le réduire nécessite d’avoir un signal très fort pour continuer à capter suffisamment de photons. Dans notre cas, la méthode antiflex de Ploem n’était pas indiquée. Dans la suite de cette partie, nous présentons succinctement les performances chiffrées de notre dispositif. Ensuite, il s’agira de montrer les étapes de validation du dispositif expérimental.

#### 4.2.2 Performances

Nos critères de choix sur le montage expérimental étaient :

- Observer une goutte entière dans le champs de vision - *critère de taille de capteur*
- Avoir une image nette, sans flou de bougé de notre goutte - *critère couplé temps d’exposition/signal lumineux + global shutter*
- Maximiser le rapport signal/bruit - *critère sur l’intensité du signal*

De par nos choix techniques au montage de notre dispositif, nous sommes capables :

1. d'observer des gouttes de rayon  $R \leq 150 \mu\text{m}$
2. de descendre à un temps d'exposition de  $\tau_{exp} = 10 \mu\text{s}$  en ayant une image exploitable.

$$\frac{\tau_{exp}}{\tau_{obs}} \simeq 2 \cdot 10^{-3} \ll 1$$

### 4.3 Validation du dispositif

Dans cette partie les deux expériences réalisées pour permettre la validation du dispositif expérimental sont présentées. Vont être également discutées les problématiques liées à une mesure relative d'épaisseur, et à une mesure absolue. Dans un premier temps, nous montrons les résultats obtenus par observation avec le dispositif RICM sur une bille optique de verre, et dans un second temps, une goutte statique piégée dans notre cavité de Hele-Shaw.

#### 4.3.1 Sur un objet calibré : le cas d'une bille optique, pour une mesure relative.

Pour valider le dispositif RICM nous avons utilisé un objet calibré afin d'obtenir une idée qualitative et quantitative des erreurs de mesure d'épaisseur. Un schéma représentant l'expérience est donné Figure 4.17 L'objet utilisé est une bille optique, (*ref*: diamètre 1.5mm, N-BK7 Ball Lens de chez

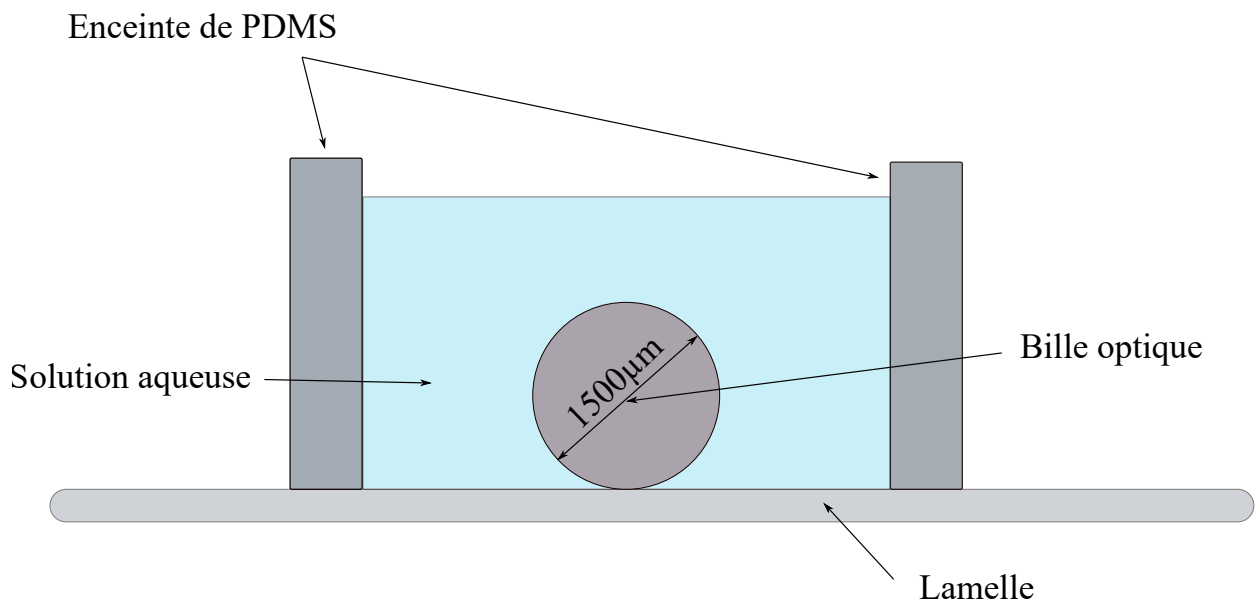


FIGURE 4.17 – Schéma représentant l'expérience d'observation d'une bille optique, au contact d'une lamelle de verre plongée dans une solution aqueuse de tensioactifs identique à nos expériences de gouttes.

Edmund optics); c'est une bille de verre polie de sorte que sa rugosité est faible et sa surface est propre et dénuée d'aspérités. Les données constructeur nous donnent :

- un diamètre, par exemple  $1500 \mu\text{m} \pm 2.5 \mu\text{m}$ .
- une sphéricité,  $\pm 0.625 \mu\text{m}$ .
- un indice optique  $n = 1.517$ .

On plonge cette bille dans une solution aqueuse de tensioactifs semblable à celle que nous utilisons. Une enceinte en PDMS est préalablement remplie de solution avant d'y mettre la bille. Cette solution est une solution contenant du  $C_{10}$ -Bromide et du chlorure de sodium afin de se placer dans les conditions expérimentales que nous aurons lors de l'observation des gouttes. Cette solution permet également d'abaisser la tension de surface : la bille, trop petite, ne coulait pas. Ainsi nous assurons le contact entre la bille et la lamelle de verre. En observant avec le dispositif RICM, nous devrions être capable de reconstruire le profil de la sphère. L'image de la sphère observée avec le dispositif RICM est donnée Figure 4.18.

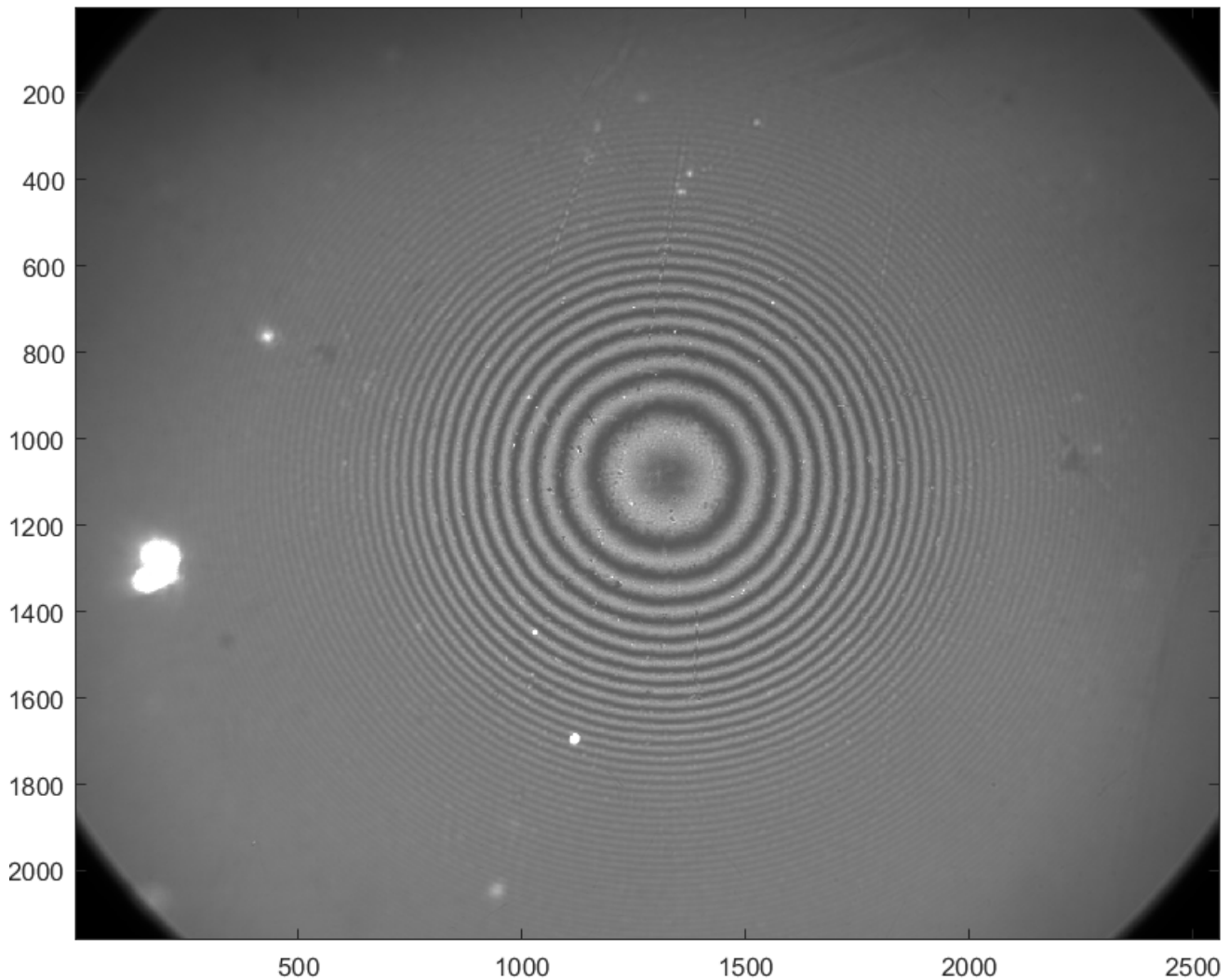


FIGURE 4.18 – Image de la sphère de  $1000 \mu\text{m}$  de diamètre observée avec le dispositif RICM.

L'indice optique de la bille étant quasi identique à celui de la lamelle et faisant l'hypothèse de contact entre la bille et la lamelle, le point de contact est un minimum. Ensuite, on observe une alternance de maxima et de minima d'intensité. Les indices optiques sont les données d'entrée du modèle théorique qui donne la relation entre l'intensité et l'épaisseur. Ces indices optiques sont donnés pour une longueur d'onde standard de  $\lambda = 546 \text{ nm}$ . Le modèle, pour les indices optiques suivants, est tracé en Figure 4.19.

—  $n_{eau} = 1.33$

—  $n_{verre} = 1.518$

—  $n_{bille} = 1.517$

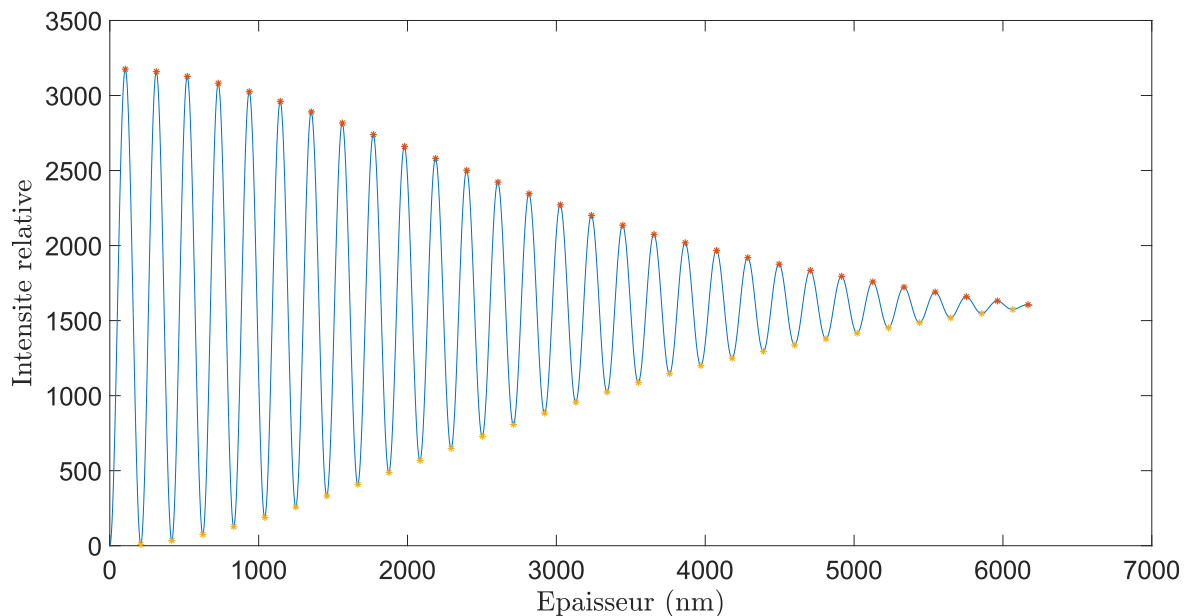


FIGURE 4.19 – Modèle d'intensité relative donnée en fonction de l'épaisseur de la phase liquide située entre la lamelle et la bille. En rouge sont tracés les maxima de la courbe, en jaune les minima. L'épaisseur est donnée en nanomètres.

Maintenant, traçons l'intensité expérimentale relative que nous obtenons pour une coupe de l'image de la bille normalisée par une image où il n'y a que de l'eau, toutes deux obtenues par RICM. Pour obtenir cette courbe on extrait une bande de 20 pixels le long d'un diamètre de la bille. On obtient un tableau de 2560 colonnes (taille du capteur) et de 20 lignes. On somme chacune de ces colonnes, on obtient alors l'intensité moyenne de ces 20 pixels. On fait ici l'hypothèse que 20 pixels (ce qui correspond à  $2\ \mu\text{m}$ ) est très petit devant le rayon de la bille et que localement le rayon de courbure du motif d'interférence est infini. Ce traitement permet d'atténuer le bruit numérique, ainsi on obtient la courbe présentée en Figure 4.20. Afin d'améliorer la précision sur la position des extrema qui sont posés arbitrairement à un pixel près, nous effectuons un traitement qui consiste à approximer chaque frange par une parabole et d'affecter à la position de l'extremum correspondant l'abscisse du foyer.

Précisément nous prenons cinq points, cinq pixels celui déterminé comme étant l'extremum par l'algorithme et ses quatre voisins deux à deux. Figure 4.21 représente ce traitement. La différence est ténue, mais cela permet de placer un extremum entre deux pixels et d'accroître notre résolution.

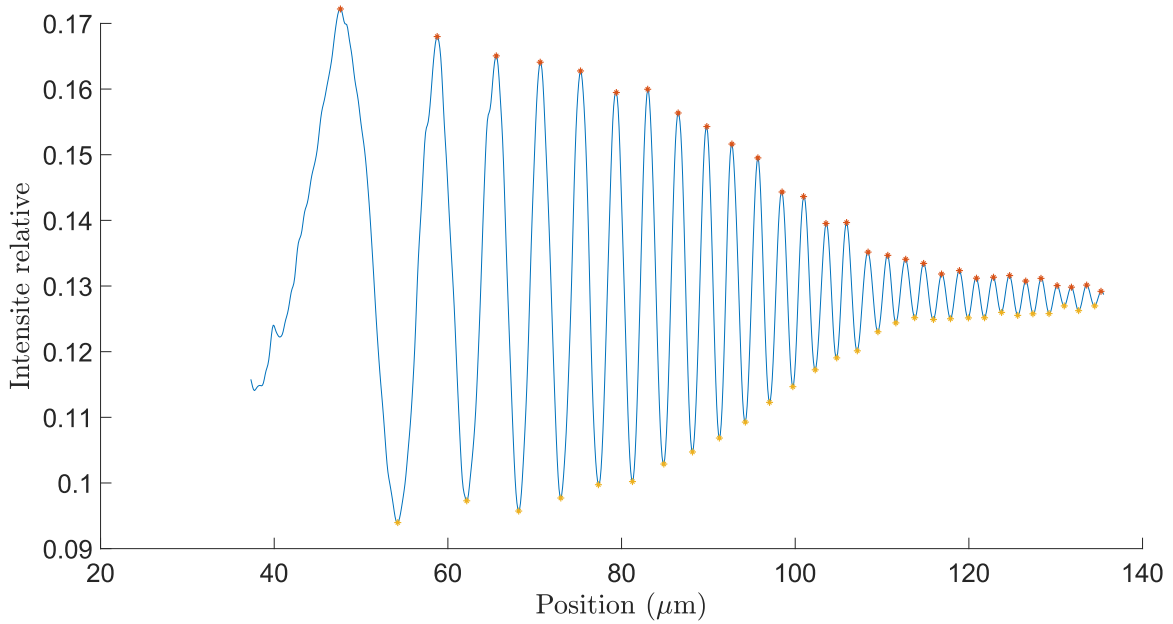


FIGURE 4.20 – Mesure de l'intensité relative donnée en fonction de la position de la cavité. En rouge sont tracés les maxima de la courbe, en jaune les minima. la position est une position absolue dans le champs d'observation donnée en micromètres. Ici, seul un coté de la bille est tracé.

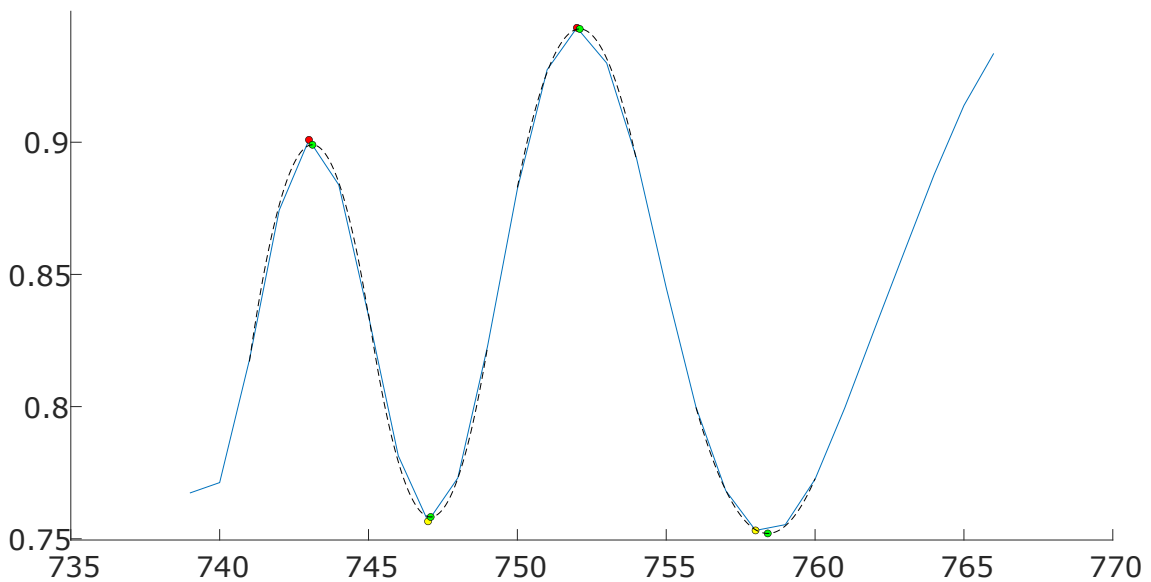


FIGURE 4.21 – Contraste expérimental mesuré en fonction de la position (en pixels) dans la cavité. La ligne bleue continue représente le contraste mesuré, les points rouges et les points jaunes représentent respectivement les positions des maxima et des minima au pixel prêt. Les lignes discontinues noires, représentent les approximations de paraboles faites pour chaque extremum. Les points verts sont les foyers de ces dernières.

Chacun des extrema expérimentaux correspond à une épaisseur. Néanmoins, il n'est a priori pas possible de distinguer de manière absolue à quelle branche l'intensité correspond car, pour une intensité donnée plusieurs épaisseurs sont possibles. En effet, chaque extremum correspond au déphasage de l'onde réfléchiée à la surface de la bille. On ne la connaît que modulo  $2\pi$ . Nous verrons dans la suite que l'utilisation d'une autre longueur d'onde permet de lever cette incertitude.

Deux hypothèses nous permettent de reconstruire le profil : la première est de supposer que la bille est au contact avec la lamelle (1<sup>re</sup> branche dans le modèle optique), la seconde est que l'épaisseur croît en s'éloignant du point de contact.

Ainsi, le premier maximum expérimental correspond au premier maximum théorique. Nous verrons dans la suite que pour les gouttes, cette indétermination n'est pas aussi facile que cela à lever. Maintenant de manière très naïve, nous attribuons à chacun des extremum l'épaisseur correspondante sur le modèle théorique. Le résultat obtenu est présenté en Figure 4.22.

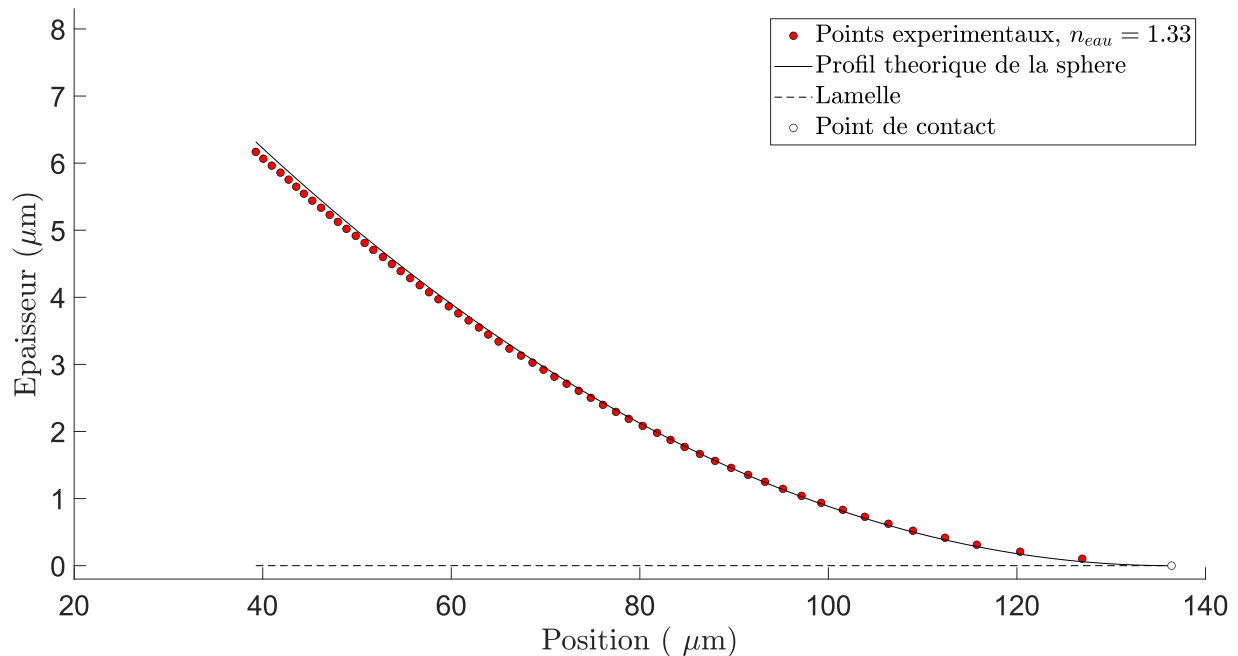


FIGURE 4.22 – Profil d'une bille de verre plongée dans une solution aqueuse de SDS + NaCl, au contact de la lamelle de verre. Les points rouges sont les points expérimentaux, la ligne en traits noirs est la position de la lamelle, le point blanc est le centre supposé de la bille (déterminé expérimentalement) que l'on impose au contact de la lamelle, la ligne noire continue est le profil théorique de la sphère.

L'indice optique utilisé pour la solution est  $n_{eau} = 1.33$  donné pour de l'eau éclairée dans le vert. Le profil théorique de la bille est calculé en prenant le rayon théorique (ici, le diamètre vaut  $1000 \mu\text{m}$ ) et en prenant le centre déterminé de la sphère,  $x_c$ . Ensuite, on calcule pour une liste d'abscisses données  $X_{bille}$  et les ordonnées correspondantes :

$$Y_{bille} = \sqrt{R_{bille}^2 - (X_{bille} - x_c)^2} \quad (4.22)$$

Le tracé du profil est donc dépendant du rayon de la bille, donné à plus ou moins  $2.5 \mu\text{m}$ , mais plus fortement encore de la position du centre. On note clairement un très bon accord notamment jusqu'à

quelques microns de profondeur, sachant la profondeur de champ typique de notre objectif est de 1 micron. Toutefois, les sources d'erreurs de mesure sont les suivantes :

- erreur sur l'indice optique de la solution,
- erreur sur le rayon de la bille elle-même,
- erreur sur la position du centre.

La première source d'erreur sur l'indice optique est discutée juste après. La seconde est une donnée constructeur. La troisième est moins dramatique sur la bille dont la courbure est grande. Elle sera plus critique sur la goutte. L'indice optique d'un matériau, d'un fluide ici, varie en fonction de divers paramètres. Pour une solution aqueuse, la température, la longueur d'onde d'exposition ainsi que la composition chimique de la solution jouent un rôle parfois non négligeable dans la valeur de l'indice de réfraction. La température dans la salle de manipulation est sensiblement contrôlée autour de  $20^{\circ}\text{C} \pm 0.4$  donc ce n'est pas un paramètre qui va venir perturber l'expérimentation. En revanche, l'indice optique change en fonction de la longueur d'onde. On parle d'une variation faible tout de même, au troisième chiffre significatif ce qui ne va pas influencer sur nos mesures. Plus tard dans ce manuscrit il est montré l'impact d'une variation de 10% de l'indice optique sur la reconstruction d'une bille. Enfin, il est connu que la chimie de la solution aqueuse fait varier l'indice optique et parfois de manière importante. Les graphiques présentés en Figure 4.23 montrent l'évolution de l'indice optique de l'eau respectivement en fonction de la longueur d'onde et de la présence de sel dans la solution.

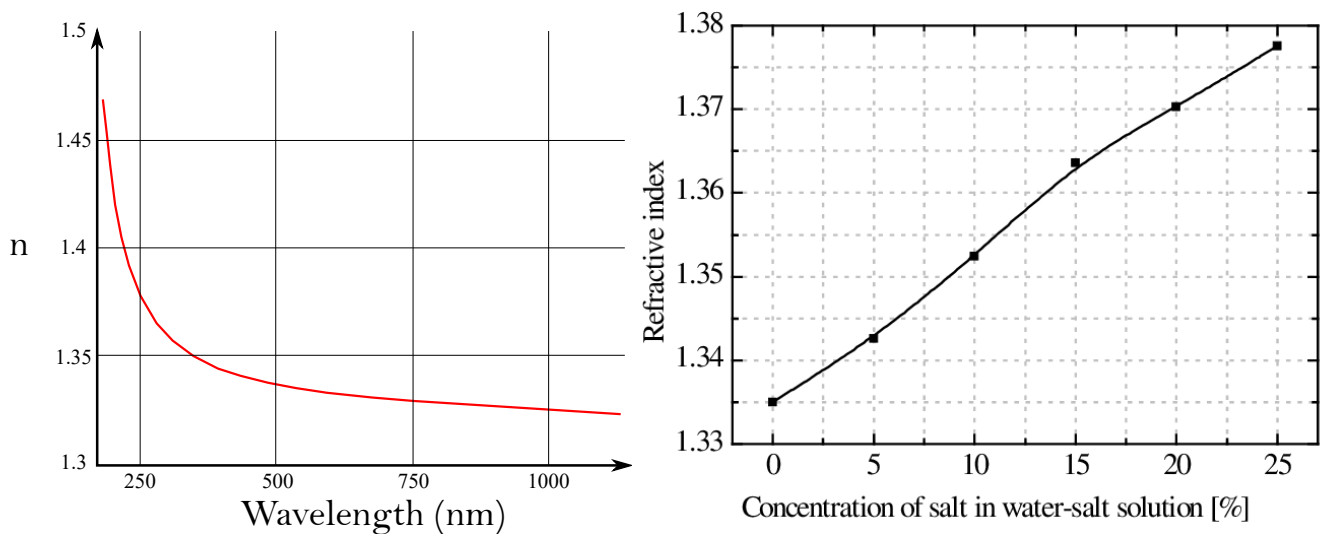


FIGURE 4.23 – Évolution de l'indice optique en fonction de la longueur d'onde et de la présence de sel dans la solution. Figures extraites et adaptées de [SBJ]<sup>+</sup> 12],[DM07]

Figure 4.25 montre la reconstruction d'une bille d'un millimètre de diamètre mais cette fois-ci éclairée au travers du filtre bleu (référence 434/17 nm *BrightLine single-band bandpass filter chez Edmund Optics*) qui est un filtre passe bande centré sur  $\lambda = 434$  avec une bande passante de 17 nm.

L'intérêt de pouvoir éclairer de deux couleurs différentes est triple. Pour le comprendre, Figure 4.24 donne le modèle optique pour des indices optiques identiques, mais pour un spectre différent. En l'occurrence pour les deux spectres présentés plus haut, en Figure 4.10. On constate qu'il y a un décalage entre les deux courbes. Comme le modèle l'avait décrit plus haut les extrema sont des multiples de  $h = \frac{\lambda}{4n_2}$ . Ainsi, le modèle théorique associé au spectre bleu passe par un minimum plus tôt,



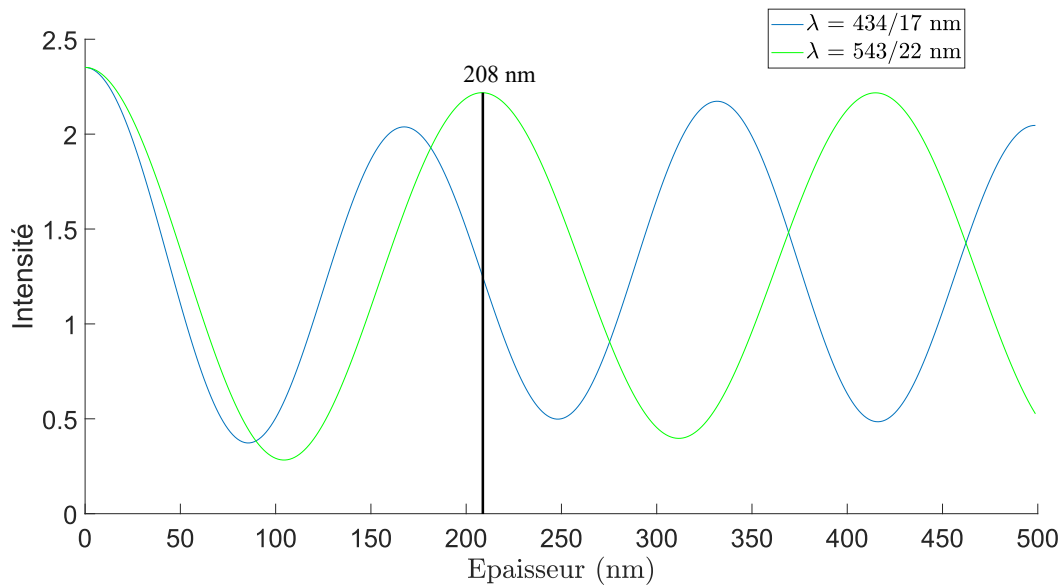


FIGURE 4.24 – Intensité relative obtenue en fonction de l'épaisseur du film de lubrification pour deux spectres différents.

i.e. pour des épaisseurs plus faibles, que le vert : pour une épaisseur qui vaut environ 82 nm contre 105 nm pour le filtre vert. La deuxième chose qu'il faut constater, qui découle de ce décalage, est que les zones de faibles pentes (proche d'un extremum), et donc de faibles résolutions sont de fait décalées également. Avoir deux couleurs nous permet donc de sonder différentes épaisseurs, avec une précision améliorée. Par exemple, si l'on se place sur l'intensité théorique liée au vert, vers 208 nm ce qui correspond au deuxième extremum, une grande variation d'épaisseur n'induit qu'un faible changement d'intensité lumineuse. Comment différencier une épaisseur de 195 nm et une épaisseur de 215 nm qui ont le même niveau de gris ? Pour la même épaisseur, le modèle associé au bleu est dans une zone de pente importante. Ainsi, changer de longueur d'onde en fonction de la zone de mesure, permet de reconstruire avec précision les épaisseurs correspondantes et de déterminer la branche sur laquelle l'épaisseur se situe. De cette manière, le raccordement à 0 est déterminé ici de manière équivoque.

Par ailleurs, la variation d'indices optiques est une question à poser. Le modèle optique que nous utilisons est robuste au changement de paramètres. Le seul paramètre qui fait varier la position des extrema, c'est-à-dire l'épaisseur à laquelle ils apparaissent, est l'indice optique de la phase externe.

Dans notre expérimentation nous n'avons pas mesuré les indices optiques de la phase externe. Comme vu précédemment l'indice optique de l'eau varie : avec la longueur d'onde et la température. Pour l'une ce sont des données qui sont tabulées et pour l'autre nous travaillons à température constante, la salle d'expérimentation étant tempérée. Toutefois, l'indice optique de l'eau varie également en fonction de la concentration en sel. Quid de l'évolution de l'indice optique dans le cas d'une évolution de la concentration en tensioactifs ?

Une amélioration possible du dispositif serait la mesure systématique des indices optiques.

Cependant, l'épaisseur correspondant à un extremum est un multiple de  $h = \frac{\lambda}{4n_2}$ . Ici, la variation d'indice optique est de l'ordre du centième. Une telle variation entraîne sur l'épaisseur du premier extremum une incertitude de l'ordre du nanomètre. Incertitude qui, si elle est répétée à chaque ex-

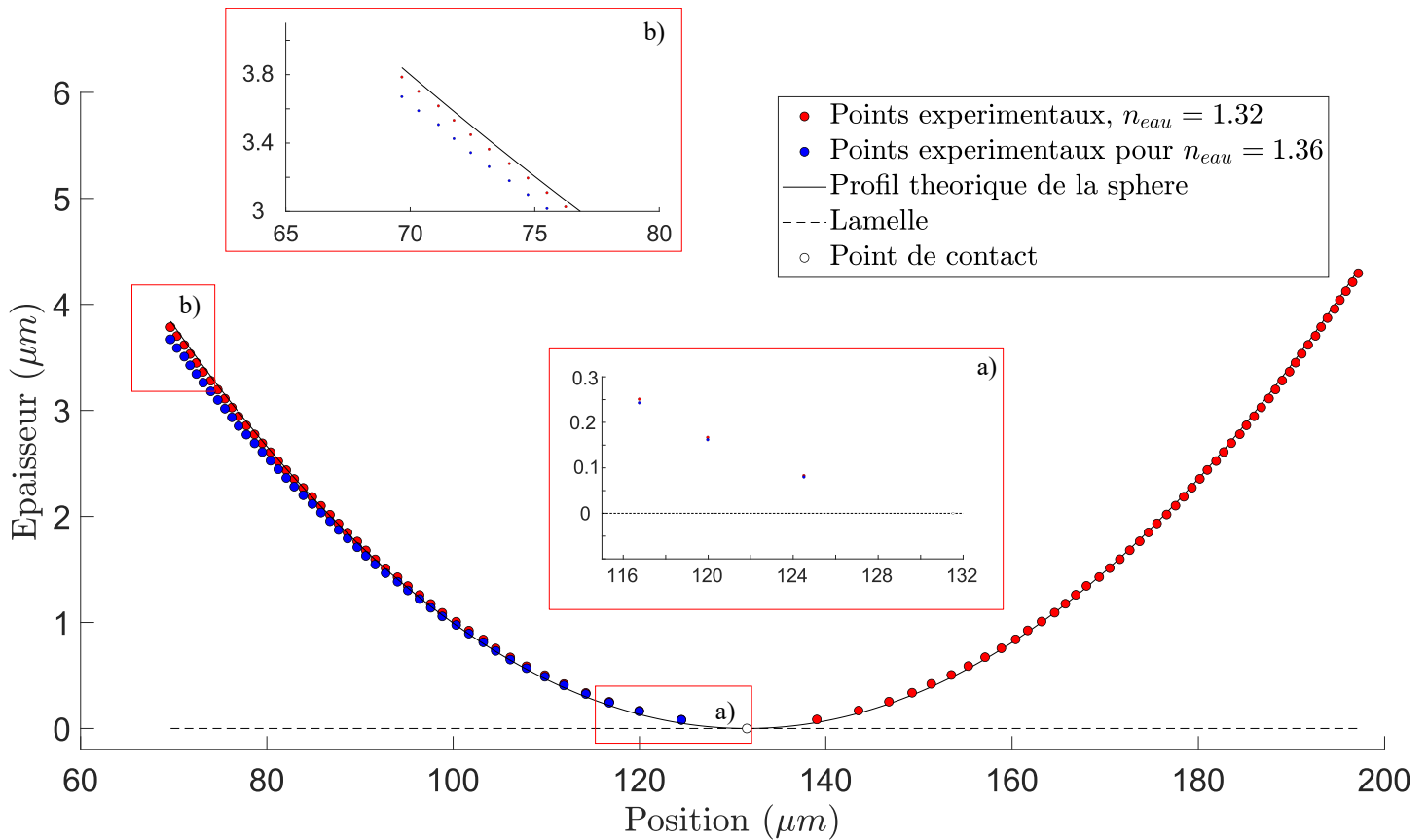


FIGURE 4.25 – Profils reconstruits de la sphère, la ligne noire continue est le profil théorique de la sphère calculée à l’aide de 4.22, la ligne discontinue représente l’ordonnée 0 c’est-à-dire la lamelle de verre. Les points rouges et bleus sont les points expérimentaux pour deux indices optiques de l’eau différents.

tremum peut devenir non négligeable à de très fortes profondeurs, comme le montre l’encart **b)** en Figure 4.25. Les films de lubrification que nous cherchons à mesurer ne dépassent pas les 350 nm. L’encart **a)** montre l’écart que l’on obtient entre deux positions d’extrema pour un écart de 4 centièmes sur l’indice optique de la solution aqueuse. On peut constater que l’écart pour une épaisseur de 350nm est de l’ordre de 12 nm soit 4%. Cela nous permettra de nous affranchir pour la suite de ces variations d’indice. Nous prendrons donc un indice optique valant 1.33 pour l’eau éclairée avec le filtre vert, et 1.34 une fois éclairée dans le bleu.

Enfin, nous avons effectué un dernier test pour montrer que la reconstruction de la bille est correcte : nous avons pris les points obtenus pour un indice optique de l’eau égal à  $n_{eau} = 1.34$ , une valeur typique pour du bleu, et nous avons tracé le cercle inscrit passant par les points obtenus. Le logiciel donne un cercle de rayon  $R_{fit} = 506 \mu\text{m}$ , très proche des  $500 \pm 2.5 \mu\text{m}$  du constructeur. Il nous donne également que le point de contact théorique obtenu de cette façon est situé à 20 nm d’épaisseur. Cet écart peut s’expliquer par l’incertitude que l’on a sur la position du centre de la bille.

Le montage expérimental semble validé pour un objet statique calibré. Dans une seconde partie nous présentons la reconstruction d’un ménisque statique sur une de nos gouttes.

### 4.3.2 Sur notre objet d'étude : le cas d'une goutte statique pour une mesure absolue.

La reconstruction de la bille était une mesure relative, c'est-à-dire que nous imposions la présence d'un point de contact entre la lamelle et la bille et les seuls points expérimentaux considérés ont été les extrema dont nous déterminions la position et connaissions l'épaisseur théorique. Le défi de la mesure de film de lubrification sous les gouttes est tout autre. Premièrement, il faut savoir sur quelle branche du modèle optique nous nous trouvons, et il faut également pouvoir discerner les variations d'intensité au sein de celle-ci, c'est-à-dire déterminer des épaisseurs comprises entre deux multiples de  $h = \frac{\lambda}{2n_2}$ .

Dans la première partie de cette section nous présentons l'analyse d'images qui permet d'obtenir le profil d'intensité. Dans une seconde partie, nous présentons le lien entre intensité expérimentale et épaisseur, en soulignant notamment la question primordiale de la mesure absolue. Enfin, la troisième partie aborde le modèle de ménisque statique et la comparaison avec les points expérimentaux.

#### Profil d'intensité.

Figure 4.27 montre une goutte stoppée dans notre cavité de Hele-Shaw. Nous l'avons laissée drainer toute la nuit de sorte que l'épaisseur de la partie centrale du film de lubrification est uniquement déterminée par la pression de disjonction. Deux images sont récupérées, l'une contient la goutte  $I_{goutte}$ , l'autre non,  $I_{eau}$ . Cela nous permet d'obtenir une image normalisée en faisant le rapport des deux images, pixel par pixel. Nous obtenons alors une image normalisée  $I$  :

$$I = \frac{I_{goutte}}{I_{eau}}$$

Cela donne un contraste expérimental que l'on pourra comparer au contraste théorique calculé de la même façon. De plus cela permet de s'affranchir des inhomogénéités spatiales d'éclairage.

Le fait d'être ici en statique permet de prendre une multitude d'images de la goutte, et de la cavité afin de les moyennner pour s'affranchir d'inhomogénéités temporelles de l'éclairage. Figure 4.26 montre respectivement l'image moyennnée de la goutte  $I_{goutte}$  et celle de l'eau  $I_{eau}$ . L'image à traiter, i.e. le rapport entre les deux, est présenté en Figure 4.27. Une fois cette image obtenue, on peut tracer

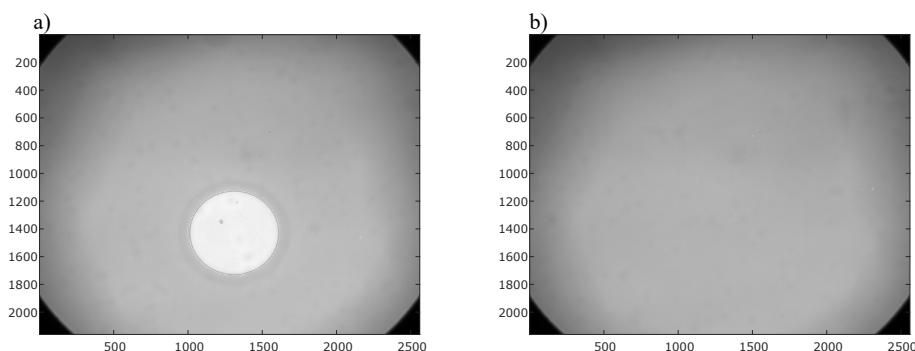


FIGURE 4.26 – a) moyenne temporelle de 50 images contenant la goutte statique. b) moyenne temporelle de 50 images de la cavité.

le profil d'intensité normalisée, moyennné sur une bande de 40 pixels centrée sur un diamètre de la goutte (voir Figure 4.28). Ici la partie haute du profil correspond au film plat, on constate qu'elle est

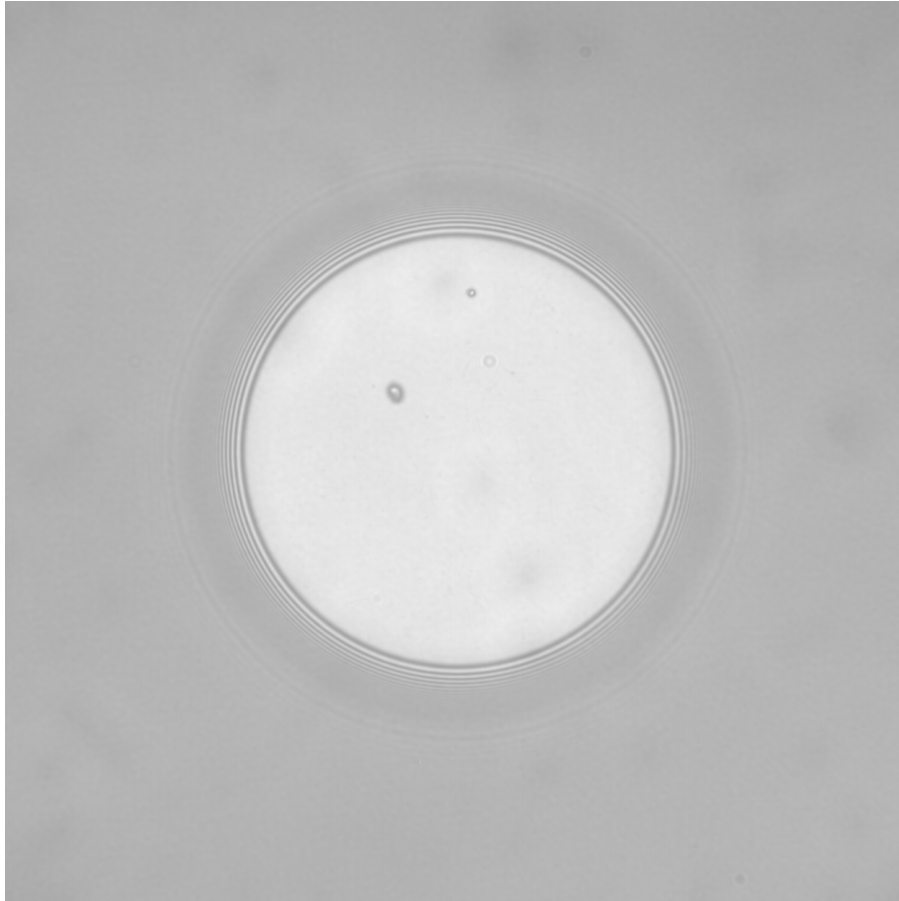


FIGURE 4.27 – Image normalisée de notre goutte statique. Goutte d’huile fluorée FC72, dans une solution de  $C_{12}$  – Sulfate, à 2 CMC de rayon  $R = 47 \mu\text{m}$ .

sensiblement constante avec quelques variations notamment dues à des imperfections sur l’image. Ces imperfections peuvent être dues notamment à des rayures sur la lamelle ou de la rugosité locale du plafond; ces traces sont visibles surtout à basse vitesse, à fortiori à l’arrêt, et le sont beaucoup moins une fois le film de lubrification épais. Les franges d’interférences sur les côtés représentent des branches successives et sont la signature de la présence des ménisques.

Pour pouvoir réaliser une mesure absolue il faut prendre quelques précautions. Tout d’abord, il faut déterminer sur quelle branche se situe le film plat. Ensuite, il faut déterminer la référence à prendre pour reconstruire une mesure absolue.

### **Branche du film plat.**

Nous considérons une goutte d’huile fluorée d’indice optique  $n_{\text{huile}} = 1.25$  qui est plus faible que celui de l’eau. Une conséquence immédiate est que, pour une épaisseur nulle, on a un maximum d’intensité. La première branche est donc une branche qui, du blanc, descend vers le noir au fur et à mesure que le film s’épaissit. Ici, pour une goutte statique le ménisque est forcément d’épaisseur croissante et monotone. On part d’un blanc pour aller vers un noir en s’épaississant : nous sommes forcément sur une branche impaire (i.e. blanc vers noir). Ainsi notre épaisseur de film à la pression de disjonction doit être soit compris entre 0 et 105 nm, ce qui correspond à la branche 1, soit supérieure à 208 nm ce qui est le début de la branche 3. D’après les travaux d’Axel Huerre [HJTV16] nous

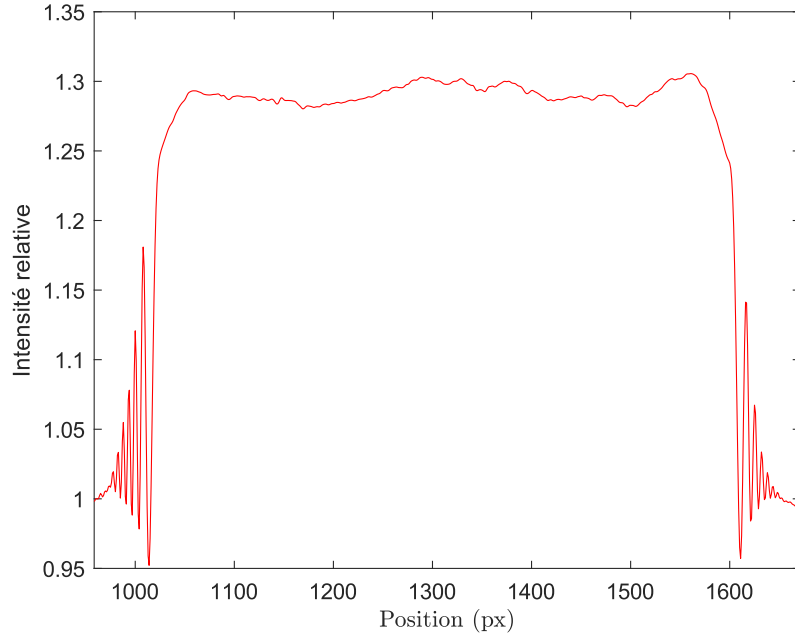


FIGURE 4.28 – Profil d'intensité normalisée, résultant de la moyenne d'une bande de 40 pixels de large.

savons que l'épaisseur est de l'ordre de grandeur de 30 nm ; nous sommes donc placés sur la première branche.

### Référence du premier extremum.

Reprenons la reconstruction du ménisque statique. L'épaisseur est croissante et parfaitement monotone et nous connaissons les positions de certaines épaisseurs qui correspondent aux changements de branche. Le profil complet est déterminé en comparant le contraste théorique à celui mesuré.

Supposons que nous soyons sur la branche 1, c'est-à-dire, dans le profil Figure 4.28, entre le film plat et le premier minimum. On note l'intensité locale  $I_{mesurée}$ , on note l'intensité expérimentale du premier extremum  $I_{exp-min_1}$  (elle correspond au premier minimum du contraste expérimental). On note également respectivement  $I_{th-max_1}$  et  $I_{th-min_1}$  le premier maximum et le premier minimum du contraste théorique. Enfin, on appelle  $I_{corresp}$  l'intensité théorique correspondant à l'intensité expérimentale mesurée. On a alors :

$$\frac{I_{mesurée} - I_{exp-min_1}}{I_{exp-max_1} - I_{exp-min_1}} = \frac{I_{corresp} - I_{th-min_1}}{I_{th-max_1} - I_{th-min_1}} \quad (4.23)$$

Le problème de la mesure absolue est que l'on ne connaît pas  $I_{exp-max_1}$ . Cette référence est nécessaire pour savoir où est-ce que l'on se trouve sur la branche expérimentale. Pour ce faire nous avons décidé de nous fabriquer une référence expérimentale. En effet les valeurs d'épaisseur correspondant aux min et aux max sont très bien prédites, mais les intensités aux min et aux max le sont beaucoup moins.

$I_{exp-max_1}$  correspond à l'intensité expérimentale pour une épaisseur de film de lubrification nulle. Nous avons rempli un microsystème d'huile et avons mesuré l'intensité obtenue. Dans la suite de ce

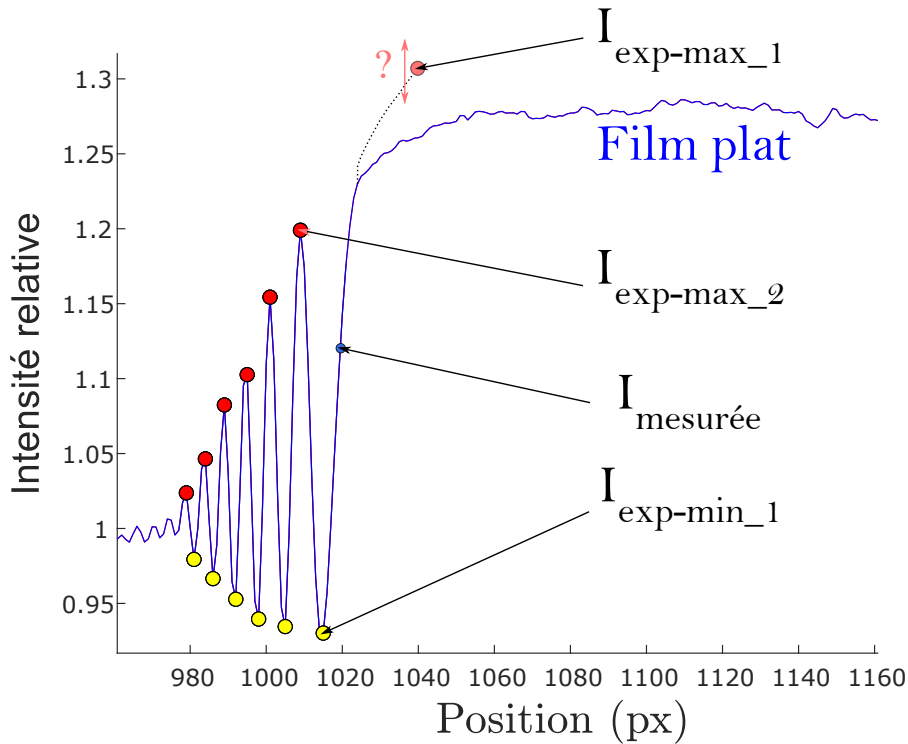


FIGURE 4.29 – Ménisque de la goutte statique en profil d'intensité. Les différents extrema sont notés  $I_{exp-min_1}$  et ainsi de suite.  $I_{mesurée}$  est le contraste local du point que l'on traite.

manuscrit les références pour épaisseur nulle ont été obtenues ainsi. Figure 4.29 remplace chacune des intensités expérimentales pour l'étude de la première branche et du film plat.

L'incertitude engendrée par une erreur sur la référence est discutée plus tard.

### Reconstruction du ménisque statique.

En suivant l'ensemble de ces démarches, il nous est possible de reconstruire le profil du ménisque d'une goutte statique. Cette reconstruction est montrée Figure 4.30. Nous allons maintenant confronter cette reconstruction à un modèle. C'est l'objet de cette section.

La forme du ménisque statique d'une goutte confinée est donnée par la relation suivante :

$$\frac{-r''}{(1+r'^2)^{3/2}} + \frac{1}{r(1+r'^2)^{1/2}} = \frac{\Delta P}{\gamma} \quad (4.24)$$

L'idée ici est de reprendre la relation de Laplace et de l'appliquer à notre problème. La somme des courbures radiale et équatoriale est constante et vaut la différence de pression entre les phases interne et externe sur la tension de surface. Ce modèle est résolu semi-analytiquement par l'équipe de Cyprien Gay [GRRM11] et a été résolue numériquement par Adrien Gans, post-doctorant à l'Institut de Physique de Rennes. La résolution numérique du profil par Adrien Gans nécessite trois paramètres en entrée : le rayon de la goutte dans le plan équatorial, c'est-à-dire le plan perpendiculaire au profil présenté Figure 4.30, qui est mesuré par microscopie, la hauteur de la cavité, qui est mesurée par profilométrie, et l'épaisseur du film plat à laquelle se raccorder. L'équation 4.24 est résolue jusqu'à cette épaisseur critique où la pression de disjonction commence à intervenir. Au-delà l'équation 4.24

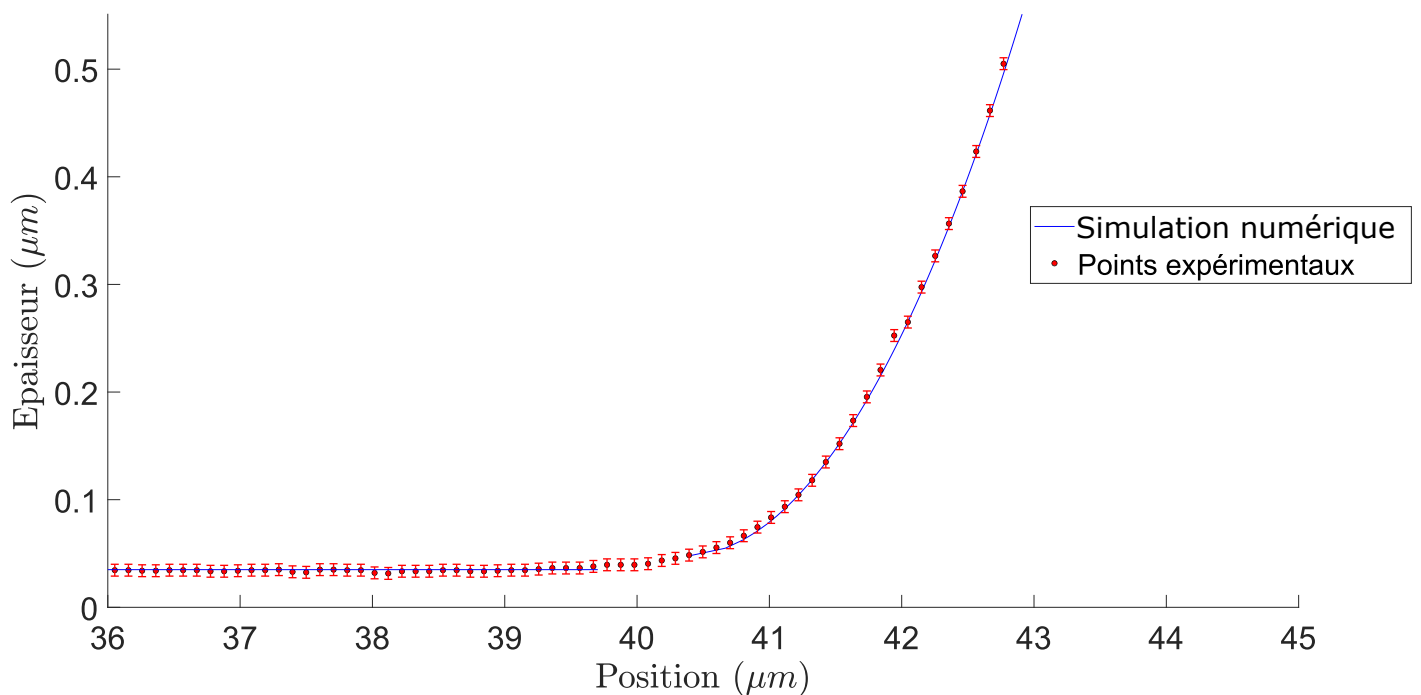


FIGURE 4.30 – Profil d’une goutte statique, centré sur le ménisque au bord de la goutte. La ligne bleu continue est le résultat des simulations numériques, les points sont les données expérimentales.

n’est plus valable et le profil théorique est simplement prolongé par un film d’épaisseur constante. Les barres d’erreur sont fabriquées à partir de l’incertitude qui engendre le plus d’erreur : la prise de la référence d’intensité à épaisseur nulle. Le seul paramètre ajustable du modèle est l’autorisation de translation horizontale.

On constate un très bon accord entre le modèle du ménisque statique et notre mesure. Nous sommes capables de reproduire le ménisque sur plus de 500 nm, c’est-à-dire que nous gérons les changements de branches et que nos choix successifs de références sont pertinents. Cet accord demeure très bon même si l’on change l’épaisseur à laquelle raccorder le ménisque (valeur qui dépend du choix de la référence  $I_{exp-max_1}$ ).

### Impact du choix de la référence.

Le choix de la référence a un impact très important aux très faibles épaisseurs, car le modèle optique possède une pente très faible proche des extrema. Ainsi, une faible variation d’intensité engendre une variation plus forte de l’épaisseur correspondante. Typiquement dans la gamme de références que nous avons choisie, l’épaisseur du film de lubrification obtenue après une nuit de drainage égale :

$$h_{\infty} = 25 \pm 5 \text{ nm}$$

Dès que nous dépassons les 45 nm d’épaisseur alors notre résolution est bien plus importante car la pente est très forte à ces épaisseurs-là.

Nous finissons donc avec un montage expérimental qui montre de très bonnes performances sur des objets statiques, qu’ils soient ceux calibrés ou ceux présents dans nos manipulations. Il est temps

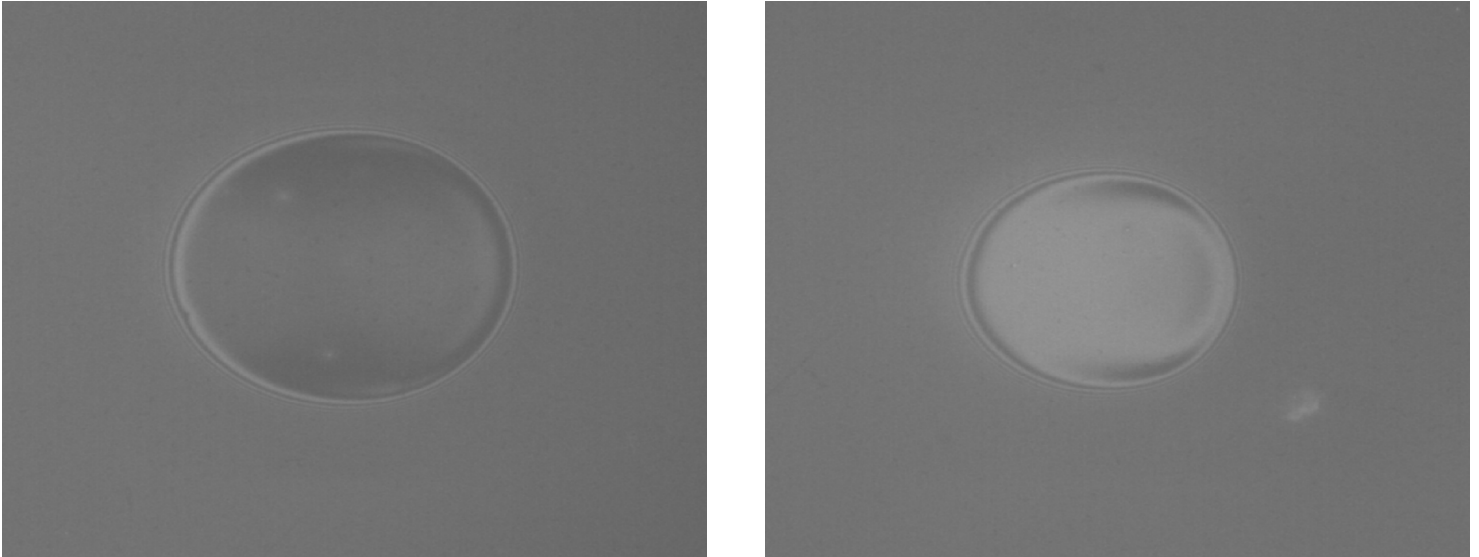


FIGURE 4.31 – Deux images brutes, c'est-à-dire  $I_{goutte}$  seulement, de gouttes d'huile fluorée poussées par une solution de C10-Tab, obtenues avec le montage multi-LED (LED à 455 nm). La goutte de gauche est poussée par une phase aqueuse de débit  $Q = 40 \mu\text{L}/\text{min}$ , celle de droite  $Q = 80 \mu\text{L}/\text{min}$ . Ce sont des gouttes rapides. Le  $C_a$  de celle de droite est proche de  $10^{-3}$ .

d'aller sonder les épaisseurs de films mais cette fois-ci en dynamique. L'observation de gouttes en dynamique et les mesures qui en découlent sont présentées dans le chapitre suivant.

#### 4.4 Perspectives : vers un montage multi-LED

Dans notre expérimentation il faut pour changer de longueur d'onde changer de filtre, ce qui n'est pas difficile mais demande une action mécanique. Nous avons également des problèmes d'homogénéité d'éclairage avec la lampe à vapeur de mercure malgré des changements d'ampoules. Un éclairage par LED conviendrait très bien à ce type d'expérimentation en statique, malheureusement la puissance des LED est moindre comparé au combo lampe à décharge + filtre. C'est pourquoi avec Emmanuel Schaub, Ingénieur de Recherche au laboratoire, nous avons réfléchi à contourner ce problème : faire un montage multi-LED composé de plusieurs LED (3, pour 3 longueurs d'ondes différentes) pilotées par ordinateur et qu'on alimenterait par impulsions synchronisées à l'acquisition de la caméra. Je ne peux rentrer dans les détails ici car le montage qui est déjà mis en place sur la manipulation va être soumis à un dépôt de brevet. Néanmoins, des images sont montrées en Figure 4.31. Nous obtenons déjà des résultats équivalents en termes de contraste et de niveau de temps d'exposition, avec un gain très notable en homogénéité d'éclairage qu'il soit spatiale ou temporelle. Le principal inconvénient de ce montage est la perte plus rapide de cohérence. En effet, le spectre de la LED étant moins piqué, la longueur de cohérence de notre signal vaut  $L_c \sim 3 \mu\text{m}$ . C'est la raison pour laquelle, il y a moins de franges d'interférences visibles sur les images présentées en Figure 4.31. Cela n'est pas important dans notre application car, comme nous allons le voir dans le chapitre suivant, les films de lubrification qui nous intéressent ont des épaisseurs allant jusqu'à 400 nm. Ce montage permet des performances accrues en termes de contraste, mais également en termes d'ergonomie : le changement de longueur d'onde d'éclairage n'est finalement plus qu'un allumage de LED.



### Pour résumer

- Le dispositif classique de RICM avec dispositif antireflectif ne nous permet pas d'atteindre les temps d'exposition nécessaires à nos expérimentations :  $\tau_{exp} < 20 \mu s$
- Le dispositif actuel comprend un dispositif d'éclairage que l'on peut configurer différemment, d'un objectif à immersion x63 et d'une caméra sCMOS Zyla 5.5 d'Andor.
- Les trois configurations que nous avons à notre disposition pour le moment sont :
  - lampe à vapeur de mercure + filtre passe-bande  $543 \pm 22 \text{ nm}$ .
  - lampe à vapeur de mercure + filtre passe-bande  $434 \pm 17 \text{ nm}$ .
  - montage LED avec LED Thorlabs 455 nm.
- Les caractéristiques techniques de notre montage sont :
  - un champ d'observation de  $230 \times 265 \mu m$ .
  - un temps d'exposition utilisable jusqu'à  $\tau_{exp} = 10 \mu s$ .
- Notre dispositif et notre protocole nous permet de reconstruire avec précision des billes optiques en verre de grande dimension (de 300 à 1500  $\mu m$  de diamètre) pour différentes configurations expérimentales.
- La reconstruction d'un ménisque statique de goutte laissée au repos se fait avec un très bon accord avec le modèle de Gay et al [GRRM11].
- Le montage *multi-LED* réalisé au laboratoire nous permet d'accroître de façon remarquable notre qualité d'éclairage, nous rendant ainsi moins sensibles aux variations de notre éclairage.

## MESURE DE L'ÉPAISSEUR DE FILM DE LUBRIFICATION // GOUTTES DYNAMIQUES

### 5.1 Introduction

Le dispositif expérimental étant opérationnel, nous pouvons mesurer les films de lubrification sous les gouttes à différents régimes de vitesses, et ce, pour différentes compositions des solutions. Dans ce chapitre, nous commencerons par présenter les images obtenues et la manière de les traiter. Ensuite les résultats obtenus pour différents tensioactifs (avec ou sans sel), vis à vis d'un rayon donné et différents nombres capillaires, sont présentés. Nous montrons également que ces épaisseurs suivent des lois de puissance que nous déterminons. Nous continuons par présenter des profils de ménisques avant et arrière pour mettre en avant une différence entre les deux familles de surfactants mises en jeu au chapitre précédent. Pour finir, nous comparerons nos profils d'épaisseur à des modèles théoriques où l'on peut modifier la condition de vitesse à l'interface ce qui fera le lien avec les perspectives ouvertes par ces travaux et ce dispositif expérimental.

### 5.2 Reconstruction du film.

Le traitement utilisé pour une goutte statique est repris ici. Les principales différences sont les suivantes :

1. Non-monotonie des variations d'épaisseur entre l'avant et l'arrière,
2. Film plat sur une branche du modèle interférométrique a priori non connue lorsque les expériences sont effectuées avec une seule longueur d'onde.

Pour résoudre ce premier point, nous allons résoudre séparément l'avant et l'arrière de la goutte. Puis nous allons traiter chaque goutte dans l'ordre croissant de vitesse. Ainsi, il est possible de faire l'hypothèse qu'à basse vitesse l'épaisseur du film plat est située sur la première branche, et de proche en proche en augmentant la vitesse, observer les changements de branches puisque l'épaisseur du film croît avec la vitesse.

### 5.2.1 Exemple de reconstruction de film

Prenons l'exemple d'une goutte quelconque :

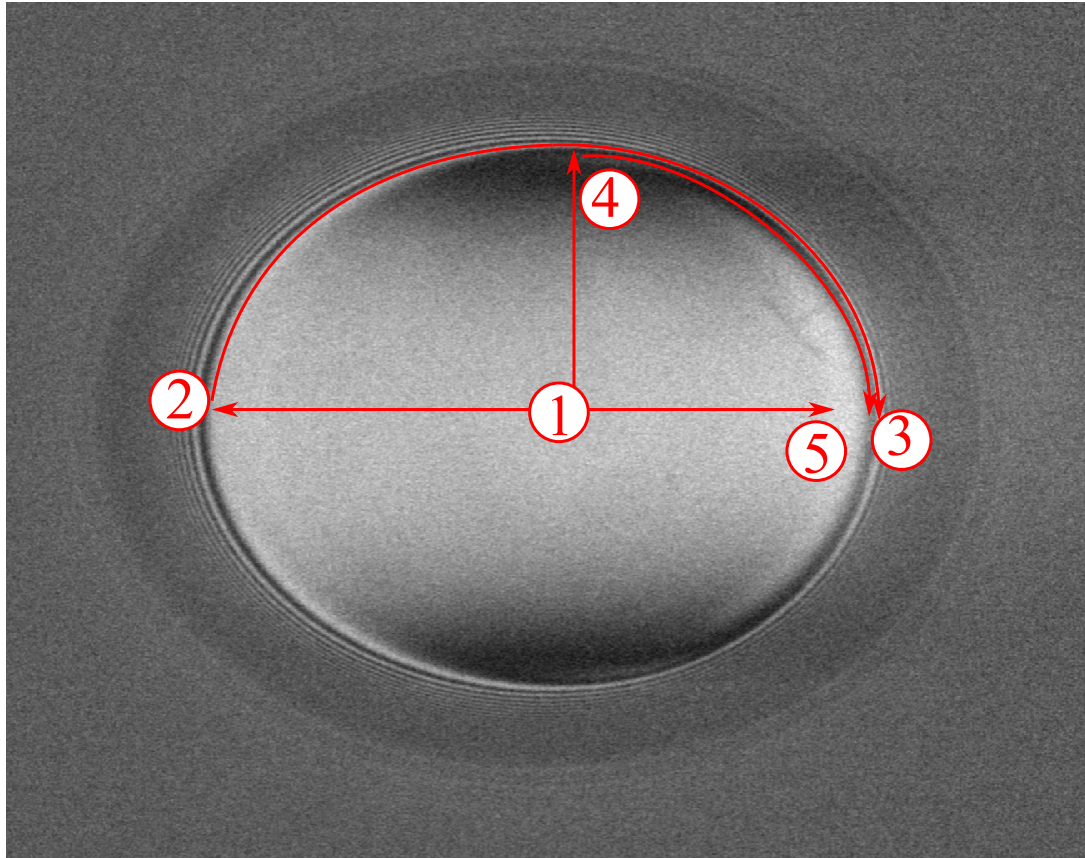


FIGURE 5.1 – Image RICM d'une goutte d'huile fluorée poussée par une solution aqueuse de SDS à 2 CMC. Goutte allant à  $U_d \sim 7.62\text{mm/s}$ .

Nous définissons les zones numérotées de 1 à 5 comme présentées en Figure 5.1, sachant qu'il y a une symétrie axiale haut bas sur l'image, ce qui correspond à une symétrie droite gauche dans le référentiel de la goutte. Plus précisément, les zones sont définies comme suit :

1. Le film plat.
2. Le ménisque avant.
3. Le ménisque arrière.
4. Les ménisques latéraux.
5. Le croissant arrière.

Dès lors que la vitesse est suffisante, i.e. que l'on quitte le plateau de disjonction pour lequel le film est plat et d'épaisseur indépendante de la vitesse, les motifs définissant chaque zone apparaissent. La connaissance des zones 1 et 2 permet la connaissance de toutes les autres par continuité d'épaisseur, c'est la méthode de reconstruction que nous détaillons ci-dessous.

Sur cette goutte, le centre, i.e. le film plat 1, a un niveau de gris moyen. Si l'on essaie de suivre jusqu'au ménisque avant 2, on observe un éclaircissement jusqu'à un maximum, qui ne peut correspondre qu'à un épaissement du film. Cette première frange du ménisque avant, un maximum,

témoigne d'une épaisseur qui vaut à minima  $h = 208$  nm pour le filtre vert (voir Figure 4.24) ou un multiple de cette valeur. Par continuité de l'épaisseur en fonction de la vitesse de la goutte, et en faisant l'hypothèse qu'à très faibles vitesses l'épaisseur est positionnée sur la première branche, nous savons que cette épaisseur est de  $h = 208$  nm. C'est le passage de la zone 1 à la zone 2. Enfin, par continuité de l'épaisseur dans le film de lubrification, une iso-contraste est une iso-épaisseur. Cette frange d'interférence, ce niveau de gris, fait tout le tour de la goutte. De 2 à 3 on garde sans interruption le même niveau de gris, ce qui signifie la même épaisseur. Nous avons donc une épaisseur de  $h = 208$  nm en 3.

Repartons de 1. L'épaisseur ici est forcément plus faible que  $h = 208$  nm puisque le film plat est d'épaisseur plus fine que le ménisque. Dirigeons-nous vers 4. Nous allons vers du noir, et donc une zone plus fine que le film central. En effet, un épaissement conduit à un éclaircissement (ménisque), et donc, inversement, un assombrissement correspond à un amincissement du film. L'amincissement est tel qu'il y a un début de blanc, signifiant que nous sommes moins épais que le minimum précédent,  $h = 104$  nm. Enfin, l'épaisseur remonte très brutalement, pour raccorder à  $h = 208$  nm de l'iso-épaisseur 2 vers 3. On retrouve ici la forme de catamaran de gouttes pancakes déjà montrée expérimentalement dans les travaux de [RHT<sup>+</sup>18, HJTV16] ou numériquement dans les travaux [ZG16, LFPJ16].

Maintenant, si l'on part à nouveau de 1 et que nous allons vers le ménisque arrière, le niveau de gris s'éclaircit puis s'assombrit fortement avant de devoir raccorder à  $h = 208$  nm. Par continuité avec 4, la zone noire entre 5 et 3 est à une épaisseur plus faible que  $h = 208$  nm. Enfin, par continuité entre 1, 5, 4 et 3 on trouve que cet éclaircissement en forme de croissant est une surépaisseur. On retrouve ici le "bump" arrière prédit par Bretherton et défini dans le chapitre 1 de ce manuscrit.

La Figure 5.2 montre le profil longitudinal d'un film de lubrification pour une goutte d'huile fluo-rée FC-72 poussée par une solution de SDS à 2 CMC à  $50 \mu\text{L}/\text{min}$ . Cette courbe a été obtenue en suivant les étapes décrites ci-dessus.

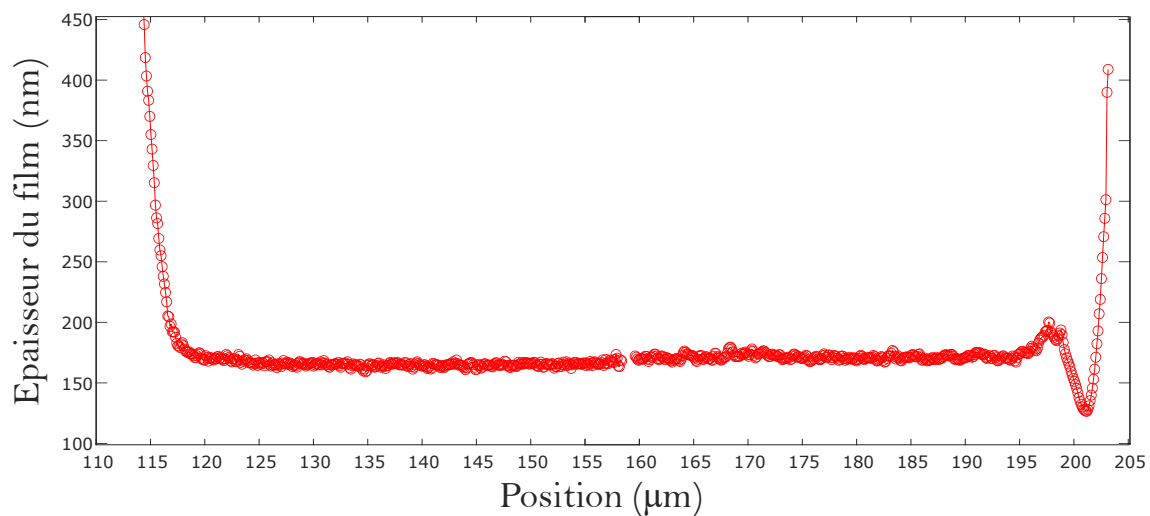


FIGURE 5.2 – Profil d'épaisseur d'un film de lubrification sous une goutte. L'échelle horizontale est le micron tandis que l'échelle verticale est le nanomètre. Chaque point représente la moyenne de la colonne de 40 pixels.

Cette méthode de reconstruction permet également de reproduire la topographie totale de la goutte, que pour l'instant nous n'exploitons pas, mais qui fournit des informations supplémentaires.

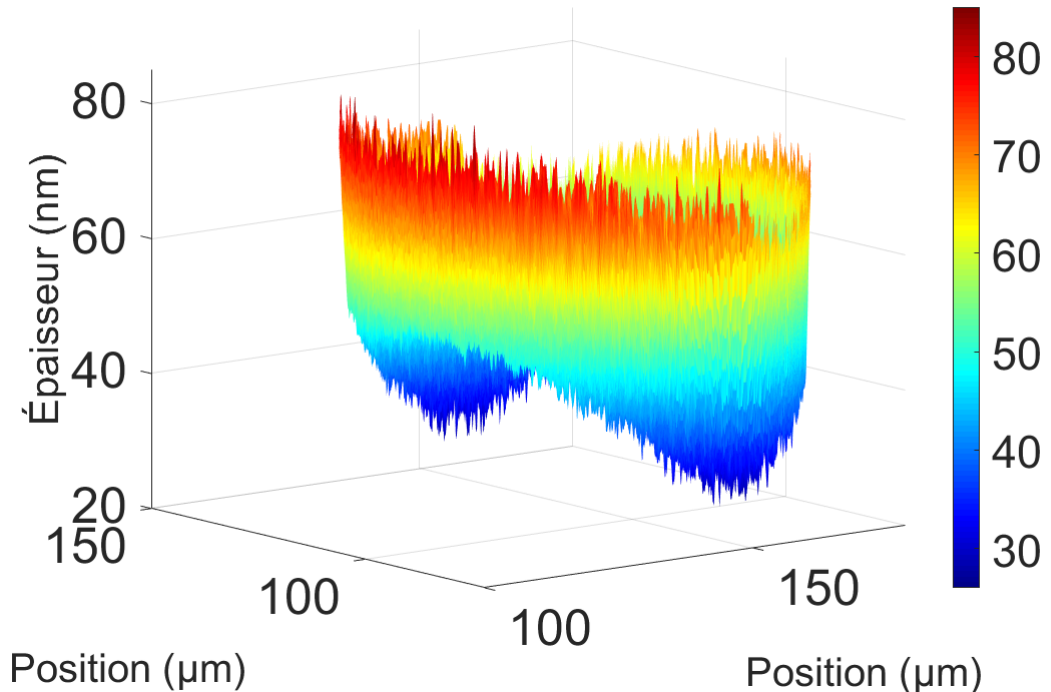


FIGURE 5.3 – Topographie complète du film plat d'une goutte d'huile fluorée poussée par une solution aqueuse de SDS à 2 CMC à  $Q_{entree} = 14 \mu\text{L}/\text{min}$ .

Figure 5.3 montre la reconstruction d'un film de lubrification sous la goutte. On retrouve bien cette forme de catamaran avec les ménisques latéraux qui plongent vers le fond.

## 5.2.2 Problématique au changement de branche et choix de références

Figure 5.4 représente un large panel des gouttes obtenues pour différentes vitesses pour de l'huile fluorée dans une solution de SDS à 2 CMC. Les gouttes vont de droite à gauche. Cette mosaïque nous permet d'observer les changements de niveaux de gris en fonction de la variation de vitesse de la goutte.

Les changements de niveau de gris au centre de la goutte sont la signature des changements de branche. Par exemple pour une vitesse de gouttes  $U_d$  comprise entre 0.202 mm/s et 3.05 mm/s, le niveau de gris central diminue. Débutant par un blanc prononcé (un maximum d'intensité) et se rapprochant d'un minimum. Au-delà de  $U_d \approx 4.49$  mm/s on observe un éclaircissement, puis sur les deux dernières images à nouveau un assombrissement. Ces changements d'intensité sont les témoins de changements de branches. À nouveau, en tentant de résoudre le ménisque avant on sait si l'on se trouve sur une branche paire, ou impaire.

Une branche paire (d'un minimum vers un maximum) donnera un premier extremum blanc sur le ménisque, signifiant que le film plat se trouve sur une branche paire. Le contraire pour les branches impaires. Encore une fois, nous sommes obligés de faire l'hypothèse d'être sur la première branche à

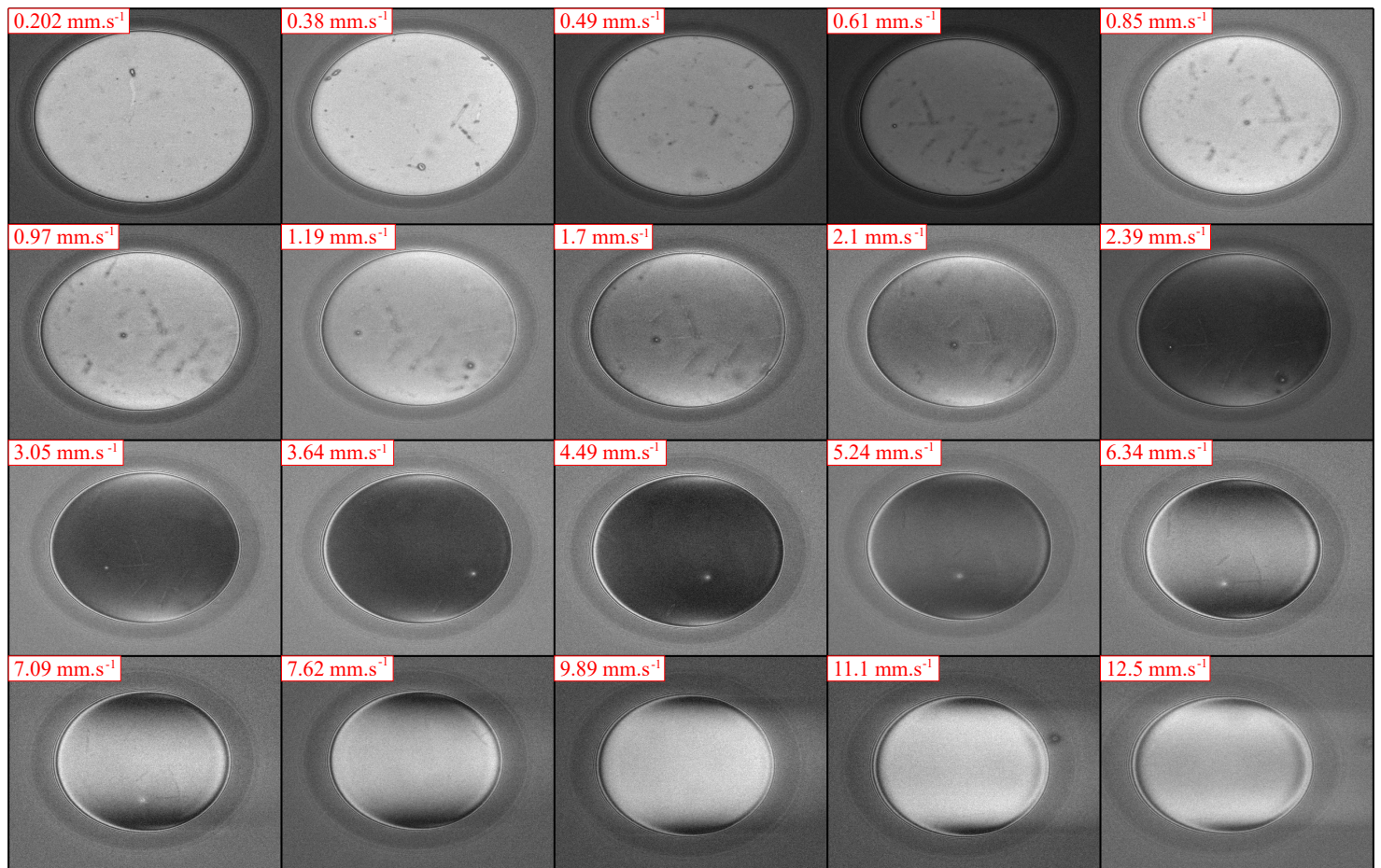


FIGURE 5.4 – Bestiaire de gouttes obtenues pour un microsysteme de taille  $90 \mu\text{m}$ . Gouttes d'huile fluorée poussées par une solution aqueuse de SDS à 2 CMC. Images en RICM avec le filtre vert. De haut en bas, et de gauche à droite on augmente le débit de phase porteuse.

très basses vitesses. Ainsi, de proche en proche nous déduisons avec le critère sur le ménisque avant la branche sur laquelle nous évoluons. Lorsque le niveau de gris s'approche d'un extremum il est compliqué de savoir à quel côté de l'extremum le niveau de gris correspond. C'est à ce moment qu'il est pertinent de changer de longueur d'onde afin de lever cette indétermination. Durant ces travaux le montage polychromatique n'était pas encore opérationnel, on ne pouvait pas changer de longueur d'onde *pendant* l'expérimentation.

La question du choix de la référence à prendre lors de la reconstruction se pose à chaque changement de branche. Nous devons connaître l'extremum précédent pour déterminer où nous nous trouvons sur la branche. On observe des changements de valeur de ces extrema (faibles) lors de l'augmentation de vitesse des gouttes. De plus, au cours de l'expérimentation le temps d'exposition peut être changé ce qui entraîne à nouveau de faibles variations de la valeur du contraste aux extrema. Pour donner un ordre de grandeur, le maximum numéro 2, correspondant au passage de la deuxième à la troisième branche peut varier de 1.2 à 1.15 en contraste suivant si l'on regarde sa valeur sur une goutte allant à  $0.49 \text{ mm/s}$  ou une goutte allant 3 fois plus vite.

Le choix qui nous a paru pertinent est le suivant : lorsque nous passons d'une branche à une autre, nous prenons la valeur de l'extremum mesuré sur la goutte précédente. Par exemple dans le cas du passage de la deuxième à la troisième branche pour le film plat, nous prenons comme référence pour

les gouttes allant plus vite que  $U_d \sim 8\text{mm/s}$ , la valeur du premier maximum obtenu lors de la reconstruction du ménisque avant des gouttes ayant une épaisseur de film plat comprise sur la seconde branche ( $U_d \sim 6\text{mm/s}$ ). L'impact du choix de la référence pour la reconstruction sur l'épaisseur est très important au niveau des changements de branche. Cet impact diminuera dans les prochains travaux du fait du montage polychromatique installé qui permet de garder une bonne résolution aux changements de branche également.

### 5.3 Mesure de l'épaisseur du film plat

Dans cette partie, tous les résultats de mesure d'épaisseur ont été obtenus avec les protocoles et les choix précédents. Nous présentons ici la mesure du film plat (la zone 1) avec une reconstruction de ménisque dynamique avant (zone 2) pour différents nombre capillaires.

#### 5.3.1 Profil de ménisque dynamique

Figure 5.5 donne le profil du ménisque avant pour une goutte poussée par un débit de phase externe de  $22\ \mu\text{L}/\text{min}$ , ce qui donne une vitesse de goutte de  $U_d \sim 2.45\text{mm/s}$ . On retrouve sur cette

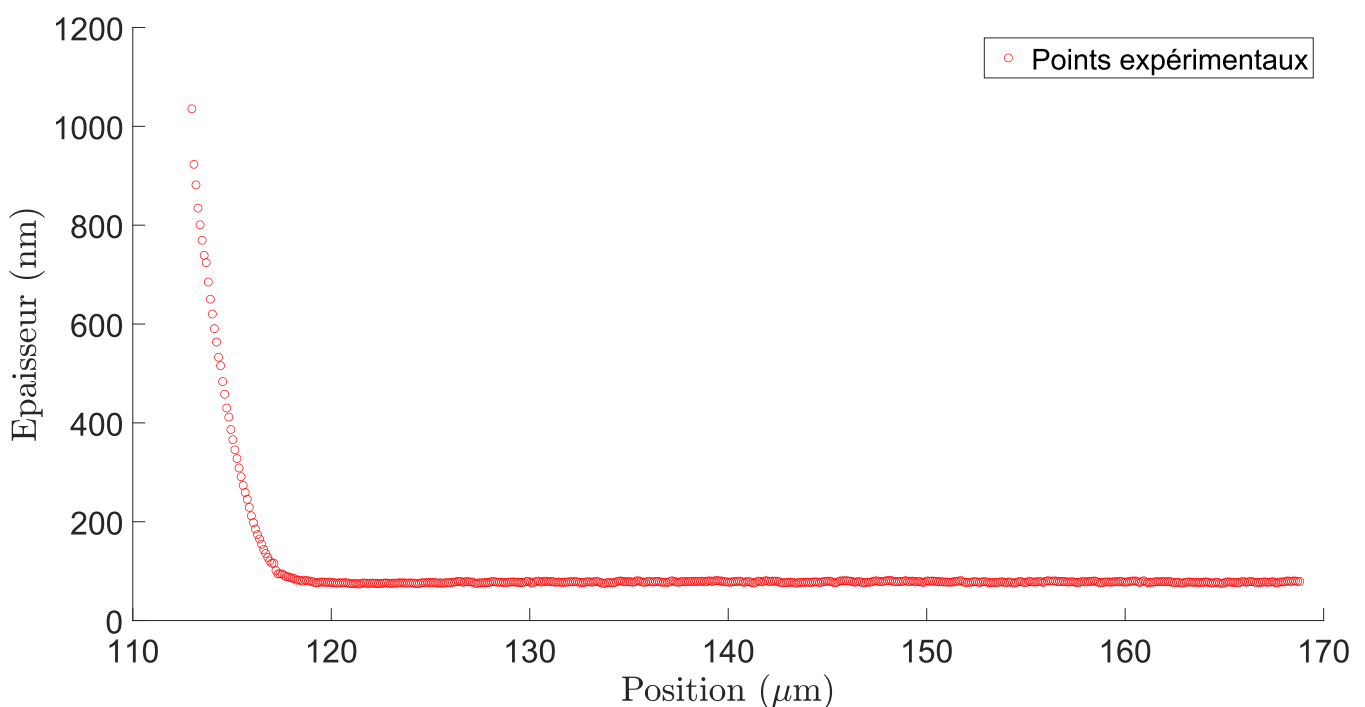


FIGURE 5.5 – Profil de ménisque avant pour une goutte d'huile fluorée poussée par une solution aqueuse de sodium dodecyl sulfate à deux fois la concentration micellaire critique. La vitesse de la goutte est de  $2.45\text{ mm/s}$ .

Figure ce que l'on avait pressenti en observant les images : l'épaisseur du film plat est constante le long de la goutte (en dehors du bump arrière, on y reviendra plus tard dans ce manuscrit). C'est d'ailleurs cette épaisseur de film plat que nous allons tracer pour différents régimes de vitesse de gouttes et pour différents nombres capillaires.

### 5.3.2 Épaisseur en fonction de $U_f$

Dans un premier temps, Figure 5.6 donne l'épaisseur d'une grande partie des gouttes du bestiaire présenté Figure 5.4 en fonction de la vitesse de la phase porteuse. Sur cette Figure, le manque de

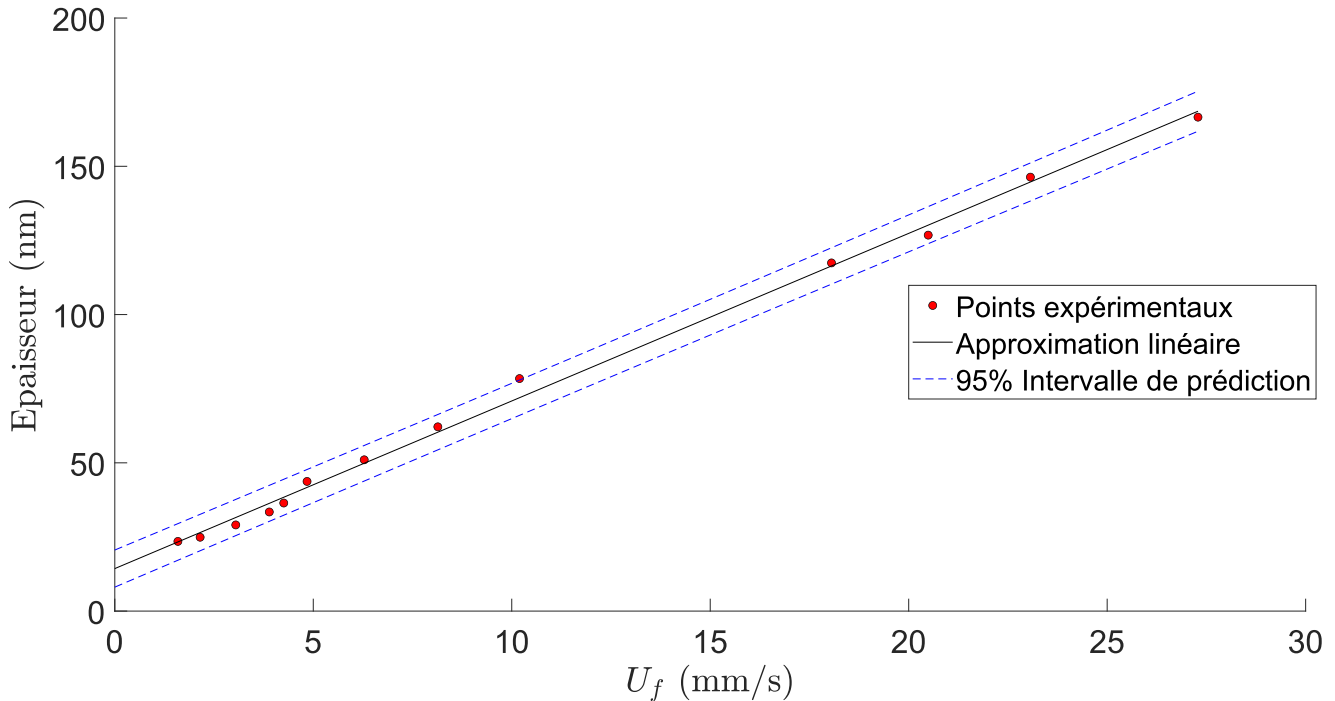


FIGURE 5.6 – Épaisseur du film plat de lubrification en fonction de la vitesse de phase porteuse pour des gouttes d'huile fluorée FC72 dans une solution aqueuse de SDS à 2 CMC. Les points rouges sont les points expérimentaux, la ligne noire continue est une approximation affine faite sur ces points. Les lignes discontinues bleues représentent l'intervalle de tolérance à 5% d'erreur sur l'approximation.

points expérimentaux entre 10 et 15 mm/s de vitesse de phase externe correspond au passage de la branche 1 à la branche 2, là où il est compliqué en éclairage monochromatique de trancher précisément sur quelle branche nous nous trouvons et là où les erreurs sont les plus importantes.

On note tout de même une très belle corrélation affine entre l'épaisseur du film plat et la vitesse de la phase externe. Cela nous permet d'écrire, au moins pour cette physico-chimie, que pour une goutte d'huile fluorée poussée par une solution aqueuse de sodium dodecyl sulfate à deux fois la concentration micellaire critique :

$$h_{\infty} \propto U_f \quad (5.1)$$

### 5.3.3 Épaisseur en fonction du nombre capillaire pour différents éclairages

Figure 5.7 représente l'évolution de l'épaisseur du film plat en fonction du nombre capillaire, c'est-à-dire en fonction de la vitesse de la goutte à viscosité et tension de surface constantes. Sur cette Figure, les points expérimentaux sont tous obtenus à l'aide de 3 microsystèmes différents mais de largeur de jonction  $w = 90 \mu\text{m}$ . Il s'agit donc de trois expérimentations différentes, dans des configurations d'éclairages elles-mêmes différentes. L'idée était de comparer nos résultats dans le bleu et le vert, ainsi que pour notre montage à LED. Les 3 jeux de données sont donc obtenus respectivement



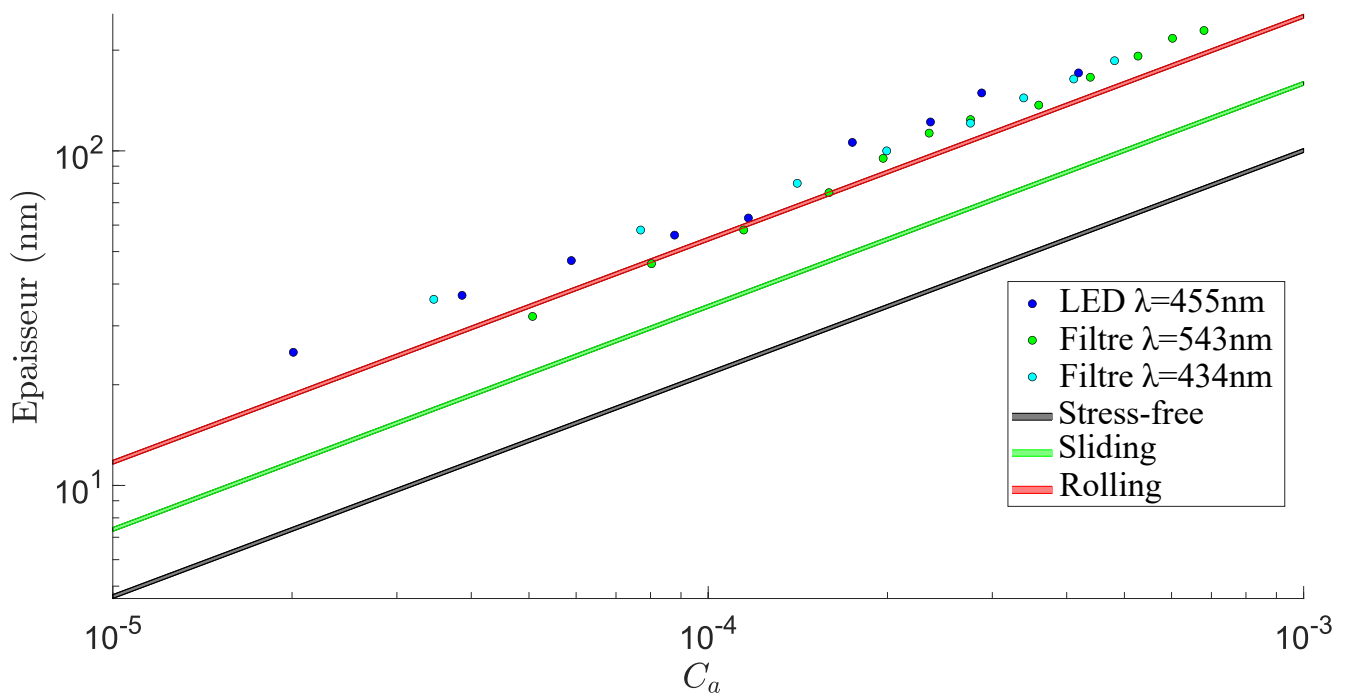


FIGURE 5.7 – Épaisseur du film plat de lubrification en fonction du nombre capillaire  $C_a$ , basé sur  $U_d$  pour des gouttes d’huile fluorée FC72 dans une solution de SDS à 2 CMC. Les points bleus et verts sont les points expérimentaux respectivement obtenus avec la configuration *Montage multi-LED* et donc une LED de longueur d’onde principale  $\lambda = 454$  nm, la configuration lampe à décharge + filtre vert et enfin la configuration lampe à décharge et filtre bleu. Les 3 zones de couleurs représentent les valeurs théoriques obtenues au travers du modèle d’épaississement pour des conditions aux limites de type *Stress-free*, *Sliding* et *Rolling*.

dans la configuration LED à longueur d’onde principale  $\lambda = 455$  nm, dans la configuration lampe à vapeur de mercure avec le filtre vert décrit au chapitre précédent, et enfin dans la configuration lampe à vapeur de mercure avec filtre bleu toujours décrit au chapitre précédent.

À chaque changement de configuration, il a été nécessaire de réitérer la mesure du spectre en sortie d’objectif, potentiellement de changer l’ouverture du diaphragme du microscope car il est parfois nécessaire d’avoir plus de signal au détriment du contraste, il faut donc mesurer l’ouverture numérique à chaque expérience. Enfin, les références pour le premier extremum (correspondant à une épaisseur nulle) ont été refaites pour chacune des configurations.

Dans ce contexte, nous n’avons pas pu faire d’expériences avec le montage multi-led sur des gouttes similaires. Ces expériences montrent toutefois la robustesse de nos mesures.

On obtient une très bonne répétabilité de l’expérience ainsi qu’une bonne cohérence entre les différentes configurations. Pour ce qui est des barres d’erreur, il faudrait calculer l’erreur qu’une incertitude donnée sur l’intensité locale mesurée en chaque nombre capillaire donne comme erreur sur la mesure d’épaisseur. En effet cette erreur est plus grande proche des extrema et plus faible entre. Ce travail n’a pas encore été effectué de manière systématique. Dans le montage final de l’expérimentation, on peut s’arranger pour se trouver toujours loin des extrema à l’aide des 3 longueurs d’ondes.

### 5.3.4 Mesure d'épaisseur de film au niveau du plafond

Pour obtenir une validation supplémentaire de notre système, nous avons mesuré au cours d'une expérience l'épaisseur du film de lubrification présent de l'autre côté de la goutte, i.e. entre la goutte et le plafond de la cellule en PDMS, voir Figure 5.8.

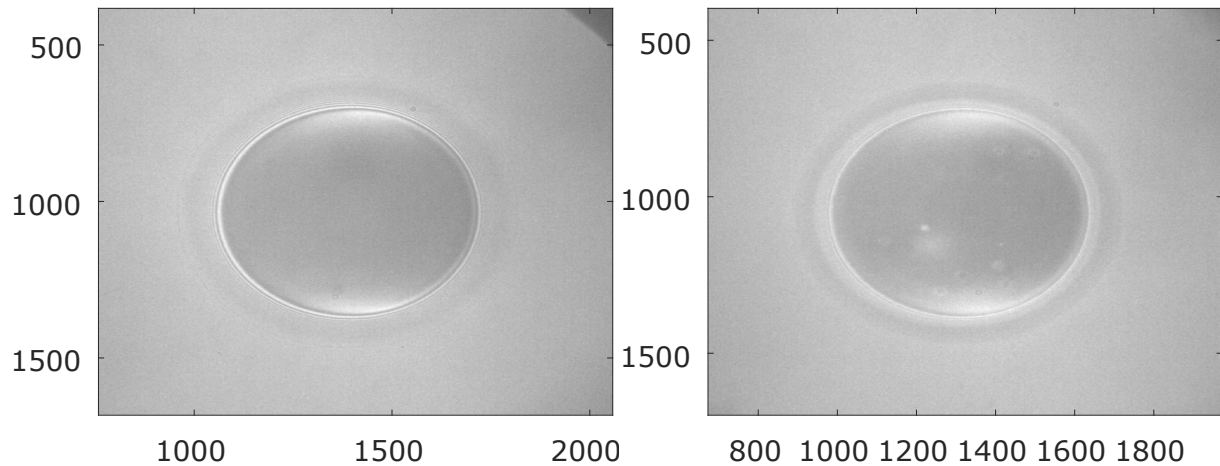


FIGURE 5.8 – Images brutes obtenues au travers du dispositif RICM. Gouttes d'huile fluorée poussées par une solution aqueuse de SDS à 2 CMC. Celle de gauche est obtenue en faisant le focus sur l'interface lamelle/eau. Celle de droite est obtenue en faisant le focus sur le plafond de la cavité à l'interface PDMS/eau.

On observe aisément une perte de netteté au plafond. On n'est clairement plus dans des gammes d'utilisation classiques du dispositif puisque l'on travaille aux limites des distances de travail de l'objectif. Les tâches observées sont dues aux irrégularités du plafond que l'on voit bien ici. Évidemment nous ne pouvons pas observer les franges d'interférence de ce côté-ci de la goutte. On observe de faibles variations d'intensité. Nous avons modifié le modèle optique en prenant en compte cette fois-ci un empilement huile-eau-PDMS et nous obtenons les mesures données en Table 5.3.4.

Débit $Q$ ( $\mu\text{L}/\text{min}$ )	$U_d$ (mm/s)	Épaisseur du film au sol (nm)	Épaisseur du film au plafond (nm)
15.8	1.46	46	47.5
20.78	2.09	58	59
26.01	2.9	75	79
31.22	3.58	95	101

Nous obtenons un excellent accord entre nos mesures de part et d'autre de la goutte. Les écarts mesurés sont dans la barre d'erreur du dispositif. Cela montre tout de même que l'on peut considérer le système comme symétrique de part et d'autre de la goutte semble pertinente.

### 5.3.5 Commentaires.

Deux discussions peuvent être conduites sur ces mesures d'épaisseur de film plat en fonction du nombre capillaire :

- Qualitativement sur la loi de puissance  $h_\infty = f(Ca)$ .
- Quantitativement par comparaison au modèle d'épaississement.

Le premier point apparaît bien en Figure 5.7. On retrouve une évolution de l'épaisseur du film plat en fonction du nombre capillaire qui suit une loi de puissance en  $2/3$ . Si l'on considère une viscosité et une tension de surface constantes avec le nombre capillaire on peut écrire :

$$h_{\infty} \propto U_d^{2/3} \quad (5.2)$$

Nous allons par la suite comparer les observations expérimentales aux modèles existants dans la littérature.

## 5.4 Comparaison des profils

Dans cette section, nous commençons par présenter une partie des modèles théoriques décrits dans la revue écrite par Isabelle Cantat [Can13], modèles prédisant la reconstruction des ménisques dynamiques à l'avant et à l'arrière d'un problème de lubrification associé à une bulle se déplaçant dans un capillaire. Ensuite, nous comparons ce modèle aux données expérimentales.

### 5.4.1 Modèle théorique de la forme des ménisques

Nous travaillons ici, Figure 5.9 dans le référentiel de la bulle. Nous considérons un ménisque liquide se déplaçant à vitesse constante dans la direction  $x$  sur une plaque solide, en régime permanent. Nous nous plaçons sur une zone centrale de la goutte, proche d'une coupe avant arrière passant par le centre ce qui permet de supposer dans cette zone une invariance dans la direction  $z$ . De plus, étant en microfluidique, nous travaillons avec un nombre de Reynolds très faible ( $Re \sim 10^{-1}$ ), nous négligeons les effets inertiels devant les effets visqueux.

Nous nous plaçons dans la zone du ménisque/film plat, une vitesse positive de la plaque  $U > 0$  correspond à une plaque tirée hors d'un bain comme dans le problème de Landau Levich [LL88], à l'extrémité avant de la bulle comme dans le problème de Bretherton. En conservant la notation de Bretherton, il s'agit du ménisque avant. A l'inverse,  $U < 0$  correspond à une plaque plongeant dans un bain, à l'extrémité arrière de la bulle de Bretherton, il s'agit du ménisque arrière.

Ce problème est régi par l'équation de Stokes, en régime de lubrification. Nous désignons la pression dans la phase liquide  $p(x)$ , la vitesse dans la direction  $x$ ,  $v(x, y)$ , et l'épaisseur du film  $h(x)$ . La viscosité du fluide est notée  $\eta$  et la tension superficielle  $\gamma$ . L'équation du mouvement peut alors être écrite comme suit :

$$\frac{\partial^2 v}{\partial y^2} = \frac{1}{\eta} \frac{\partial p}{\partial x} = \frac{\gamma}{\eta} \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} \quad (5.3)$$

En imposant une condition d'égalité de vitesses tangentielles à la paroi,  $v(x, 0) = U_d$  on obtient :

$$v(x, y) = -\frac{\gamma}{\eta} \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} \frac{y^2}{2} + y \frac{\partial v}{\partial y}(x, 0) + U_d \quad (5.4)$$

Enfin, et c'est le coeur de notre problème, il faut imposer une condition à l'interface entre les deux liquides. On impose la continuité de contraintes tangentielles  $\sigma^{int}$  :

$$\frac{\partial \sigma^{int}}{\partial x} = \eta \frac{\partial v}{\partial y}(x, h(x)) \quad (5.5)$$

Ainsi, tout réside dans l'expression de  $\sigma^{int}$ , qui dépend des propriétés physico-chimiques de l'interface. Sans tensioactif  $\sigma^{int} = \gamma = cste$ , et la relation précédente impose  $\frac{\partial v}{\partial y} = 0$  à l'interface, il n'y a pas de contraintes, on retrouve le cas *Stress-free* discuté au premier chapitre.

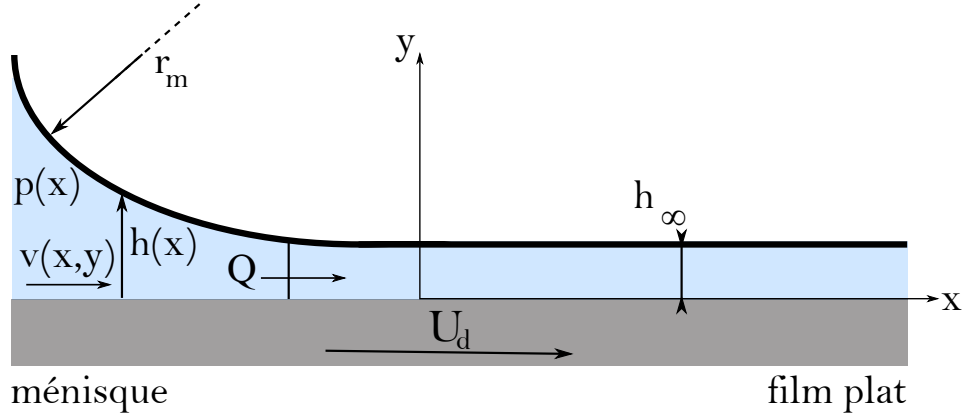


FIGURE 5.9 – Schéma du ménisque d'une des gouttes sur un substrat solide qui se déplace dans la direction  $x$  à la vitesse  $U_d$ . Le profil d'épaisseur est  $h(x)$ , la pression est  $p(x)$ , et la composante  $x$  de la vitesse du ménisque est  $v(x, y)$ . Le rayon de courbure du ménisque tend vers  $r_m$  pour  $x \rightarrow 0$  (côté ménisque) et l'épaisseur du film tend vers  $h_\infty$  pour  $x \rightarrow \infty$  (côté film de lubrification). La vitesse de la plaque  $U > 0$  correspond à un ménisque avant et  $U < 0$  à un ménisque arrière. Adapté de [Can13].

Un autre cas limite, celui d'une interface incompressible, donne une condition de dérivée de vitesse tangentielle nulle à l'interface :  $\frac{\partial v}{\partial x}(x, h(x)) = 0$ . Ceci se traduit par une vitesse  $v(x, h(x))$  constante, imposée par une condition extérieure et qui peut prendre n'importe quelle valeur. Deux cas limites se distinguent le cas où  $v(h) = v(h=0) = U_d$  que l'on appellera cas *Rolling* et le cas  $v(h) = 0$  que l'on appellera *Sliding*.

Pour prendre en compte ces trois conditions aux limites, l'auteure utilise un modèle d'analyse de l'interface et utilise une expression générale de la vitesse qui dépend de deux paramètres  $\lambda$  et  $\mu$ .

$$v = \frac{\gamma}{\eta} \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} (\lambda h y - y^2/2) + U_d (1 - \mu y/h) \quad (5.6)$$

Enfin, la condition sur le film de lubrification qui est plat, d'une épaisseur  $h_\infty$  loin du ménisque (ce que nous retrouvons expérimentalement), est supposée.

Si on appelle  $Q$  le débit par unité de longueur dans la direction  $z$  dans la zone du film de lubrification :  $Q = U_d h_\infty (1 - \mu/2)$ . Par conservation de la masse on obtient :

$$\pm 3\beta C_a (h_\infty - h) = \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} h^3 \quad (5.7)$$

où  $\beta = (2 - \mu)/(3\lambda - 1)$  et  $C_a = \eta U_d \gamma$ . Ici, le signe + désigne le ménisque avant, et le signe moins, le ménisque arrière.

Pour les différentes conditions aux limites évoquées précédemment nous avons respectivement les valeurs suivantes.

- Pour le cas *Stress-free* :  $\lambda = 1, \mu = 0, \beta = 1$
- Pour le cas *Sliding* :  $\lambda = 1/2, \mu = 1, \beta = 2$

— Pour le cas *Rolling* :  $\lambda = 1/2$ ,  $\mu = 0$ ,  $\beta = 4$

Pour résoudre ce jeu d'équations, les quantités adimensionnelles suivantes sont définies.

—  $h = h_\infty H$

—  $x = h_\infty X / (3\beta C_a)^{1/3}$

Ce qui donne une fois implémentées dans l'équation 5.7 :

$$H''' H^3 = \pm(1 - H) \quad (5.8)$$

En variables adimensionnelles les conditions aux limites dans le film plat s'écrivent  $H(\infty) = 1$ ,  $H'(\infty) = 0$  et  $H''(\infty) = 0$ . Enfin, le problème est fermé en faisant raccorder la courbure  $h''$  au rayon de courbure du ménisque statique  $r_m$ . Cette condition s'écrit :

$$h_\infty = r_m (3\beta C_a)^{2/3} H''(-\infty) \quad (5.9)$$

La résolution numérique est bien détaillée dans la review de l'auteur et l'implémentation numérique a été faite par Adrien Gans, post-doctorant dans l'équipe.

Nous avons vu en section 1.3.6 que dans notre gamme de nombre capillaire et de rapport de viscosité des deux phases, les effets dûs à la viscosité de la phase interne peuvent être négligés. Nous allons donc comparer les profils issus de nos expériences à ce modèle de bulle.

#### 5.4.2 Comparaison modèle/expérience

Les épaisseurs de film plat présentées Figure 5.7 étant très proches de celles attendues pour une condition aux limites de type *Rolling*, le modèle théorique pour la reconstruction des ménisques a été implémenté avec le jeu de paramètre  $(\lambda, \mu)$  en accord avec cette observation.

#### Reconstruction du ménisque avant

La reconstruction théorique des ménisques avant nécessite 2 paramètres d'entrée : le nombre capillaire  $C_a$  et la demi-hauteur de la cavité  $H_0$ . Les profils de différents ménisques avants pour différents nombres capillaires  $C_a$  sont montrés Figure 5.10. On constate 2 choses. La première, que l'on avait déjà constaté sur la Figure 5.7, nos mesures sont légèrement au-dessus du *Rolling*. Pour un nombre capillaire faible, ici  $C_a = 2.0 \cdot 10^{-5}$  l'écart s'explique par la présence du régime de pression de disjonction qui n'est pas pris en compte dans le modèle. Ensuite, au fur et à mesure que le nombre capillaire augmente, les mesures se raccordent avec le modèle théorique et ce jusqu'à des épaisseurs de 500 voire 600 nm. Cela conforte l'idée que la condition aux limites de type *rolling* reproduit nos expériences. Cette condition de type interface rigide fixe une vitesse d'interface  $U_{int} = U_d$ , dans le référentiel de la goutte. Nous avons tracé les ménisques arrières théoriques en imposant la condition *Rolling* à l'interface, ils sont discutés dans la section suivante.

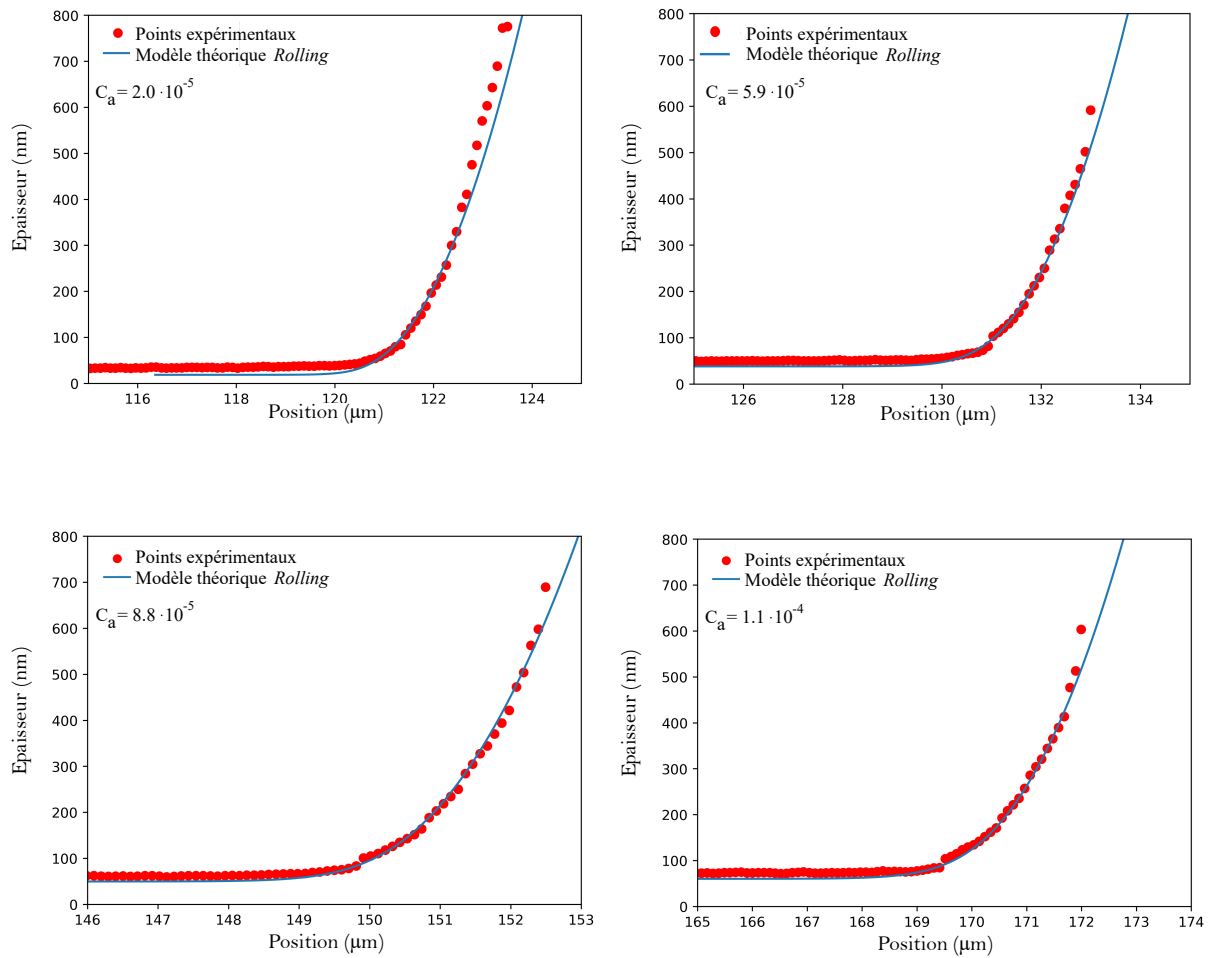


FIGURE 5.10 – Différents profils de ménisques à l’avant de gouttes d’huile fluorée sans une solution de SDS à 2 CMC pour différents nombre capillaire  $C_a$ .

## Reconstruction du ménisque arrière

Les figures 5.11 et 5.12 montrent l'accord entre nos mesures expérimentales de ménisque arrière et le modèle théorique pour des conditions à l'interface de type *Rolling*.

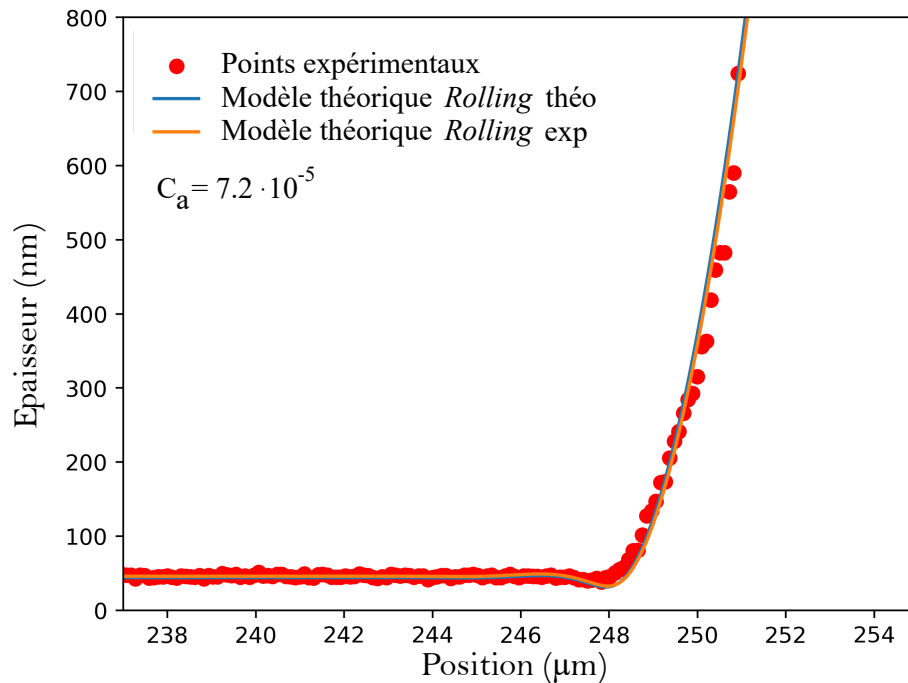


FIGURE 5.11 – Ménisque arrière pour une goutte d'huile fluorée poussée par une solution de SDS à 2 CMC. La différence entre les deux lignes continues orange et bleu est discutée dans le texte.

Pour le ménisque arrière, il est nécessaire de rentrer également l'épaisseur du film plat  $h_\infty$  pour reconstruire le profil théorique. La ligne bleue de la Figure 5.11 représente le profil théorique du ménisque arrière obtenu pour une épaisseur de film plat donnée par la prédiction *Rolling* que l'on peut voir Figure 5.7. La ligne continue orange, quant à elle, est obtenue en prenant la valeur mesurée de l'épaisseur du film plat. On constate une différence faible entre les deux et un très bon accord avec le modèle théorique de nos points expérimentaux. Dans la suite, les profils théoriques obtenus pour les ménisques arrières sont ceux fabriqués à partir de l'épaisseur mesurée  $h_\infty$ .

Pour un nombre capillaire beaucoup plus élevé on obtient le profil suivant Figure 5.12.

On constate un excellent accord entre nos mesures expérimentales et les modèles théoriques pour les dimensions latérales des oscillations. On reconstruit de manière très nette la zone d'épaississement et le raccord à la courbure. Nous avons plus de difficultés à reconstruire le plongeon du croissant. Plusieurs hypothèses sont envisagées :

- Résolution latérale de notre système optique insuffisante,
- Variations locales trop fortes et trop abruptes de niveaux de gris,
- Manque d'un ingrédient dans le modèle théorique (en particulier la pression de disjonction).

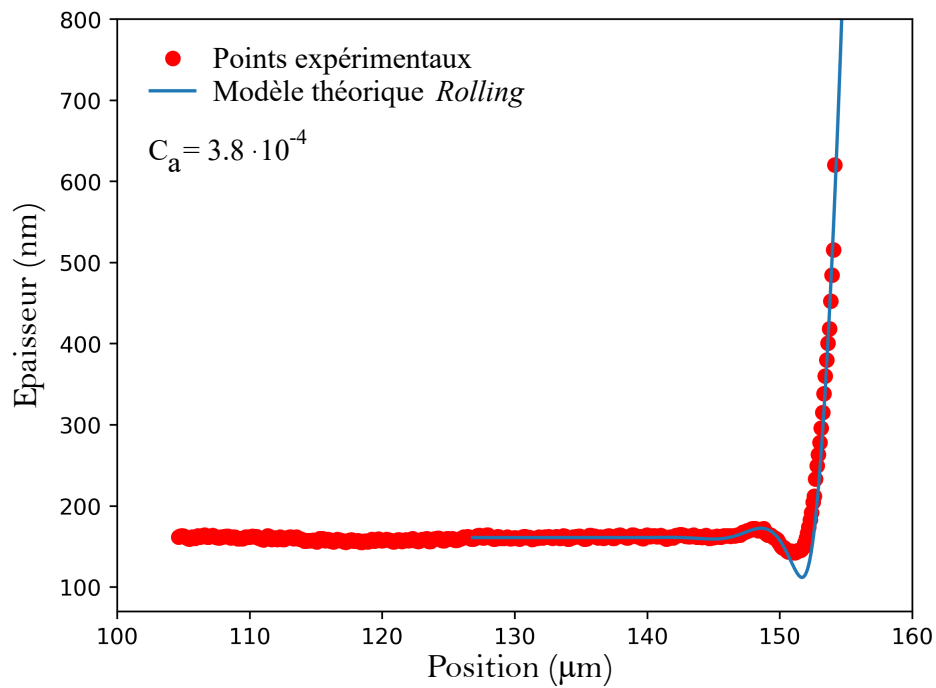


FIGURE 5.12 – Ménisque arrière pour une goutte d’huile fluorée poussée par une solution de SDS à 2 CMC.

### 5.4.3 Comparaison C10-Sulfate & C12-Sulfate

La Figure 5.13 reprend les données obtenues Figure 5.7 mais en rajoutant celles des expériences avec le C10-Sulfate. On ne constate pas de changements notables. L’épaississement du film plat, suit une loi de puissance  $C_a^{2/3}$  tout comme le C12-Sulfate. Et les valeurs tendent toujours vers une épaisseur correspondant à une condition à l’interface de type *Rolling*.



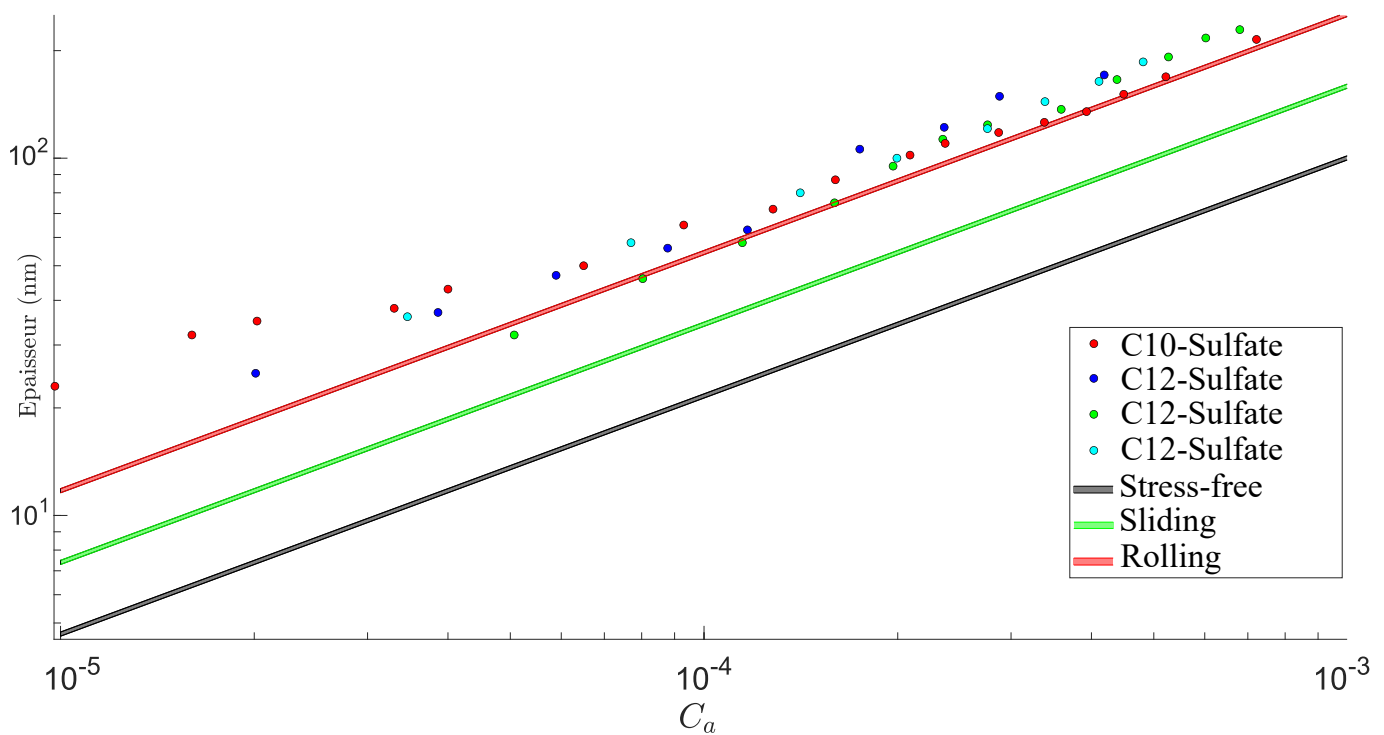


FIGURE 5.13 – Épaisseur du film plat en fonction du nombre capillaire. Pour des gouttes d’huiles fluo-  
 rée poussées soit par une solution aqueuse de C12-Sulfate à 2CMC soit de C10-Sulfate à 2CMC. Les  
 points bleus et vert sont les points expérimentaux. Respectivement obtenus avec configuration *Mon-  
 tage multi-LED* et donc une LED de longueur d’onde principale  $\lambda = 454$  nm, en configuration lampe  
 à décharge + filtre vert et enfin lampe à décharge et filtre bleu. Les points rouges sont les mesures  
 obtenues pour des gouttes poussées par une solution de C10-Sulfate. Les 3 zones de couleurs repré-  
 sentent les valeurs théoriques obtenues au travers du modèle d’épaississement pour des conditions  
 aux limites de type *Stress-free*, *Sliding* et *Rolling*.

La Figure 5.14 montre deux profils avant-arrière d'épaisseur, passant par le centre de la goutte, du film de lubrification. L'un correspond à une expérience C10-Sulfate, l'autre C12-Sulfate. Le nombre capillaire est sensiblement équivalent et vaut  $C_a \approx 4 \cdot 10^{-4}$ .

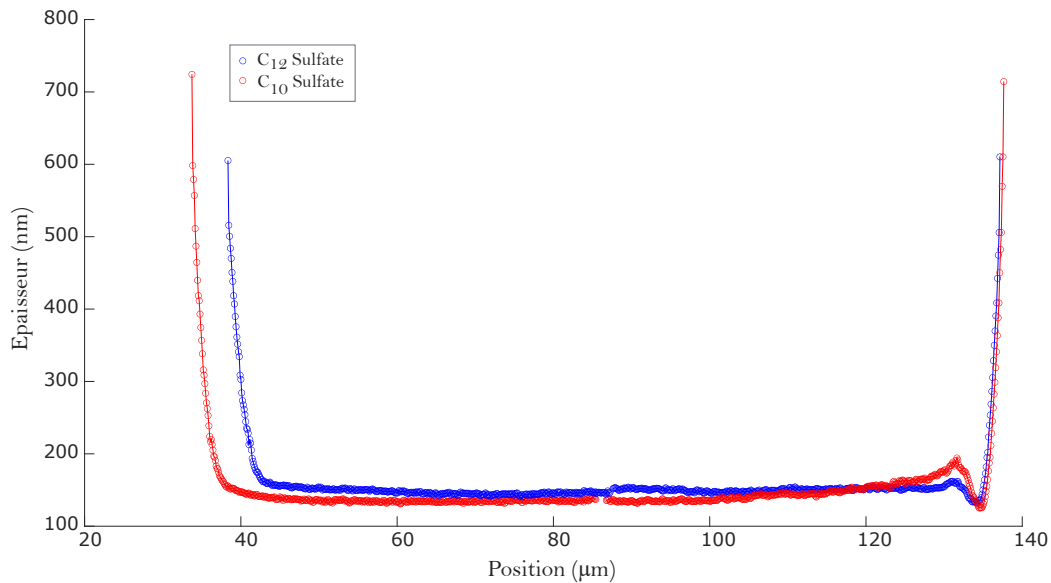


FIGURE 5.14 – Profils d'épaisseur de films de lubrification présents sous une goutte. L'avant de la goutte est à gauche, l'arrière à droite.

On retrouve que l'épaisseur du film plat est semblable pour les deux tensioactifs. La différence se trouve juste avant le *bump* arrière prédit par Bretherton où l'on observe pour le C10-Sulfate un épaissement qui s'étend sur une vingtaine de microns avant d'avoir la forme caractéristique du *bump*.

Nous avons tracé l'évolution de ce profil arrière en fonction du nombre capillaire pour les deux tensioactifs. Ce sont les figures 5.16 et 5.15.

L'observation faite plus haut se confirme : il y a un épaissement notable du film de lubrification avant l'oscillation arrière pour les tensioactifs C<sub>10</sub>-Sulfate, alors que l'épaissement n'est pas présent sur les C<sub>12</sub>-Sulfate.

## 5.5 Conclusion

Nous avons observé que pour les deux longueurs de chaîne carbonée C<sub>10</sub> et C<sub>12</sub>, la loi de puissance de l'épaisseur du film plat en fonction du nombre capillaire est identique. En revanche, la reconstruction complète des profils montre une disparité au niveau du *bump* arrière, avec notamment une zone d'épaississement pour le C<sub>10</sub>.

La différence de mobilité entre ces deux tensioactifs est probablement la signature de mécanismes de transport de tensioactifs aux interfaces différents dont les différences de profils sont la signature. Nous proposons au chapitre suivant un modèle permettant de comprendre l'inversion de la tendance en rayon de la mobilité des gouttes en fonction du tensioactif utilisé.

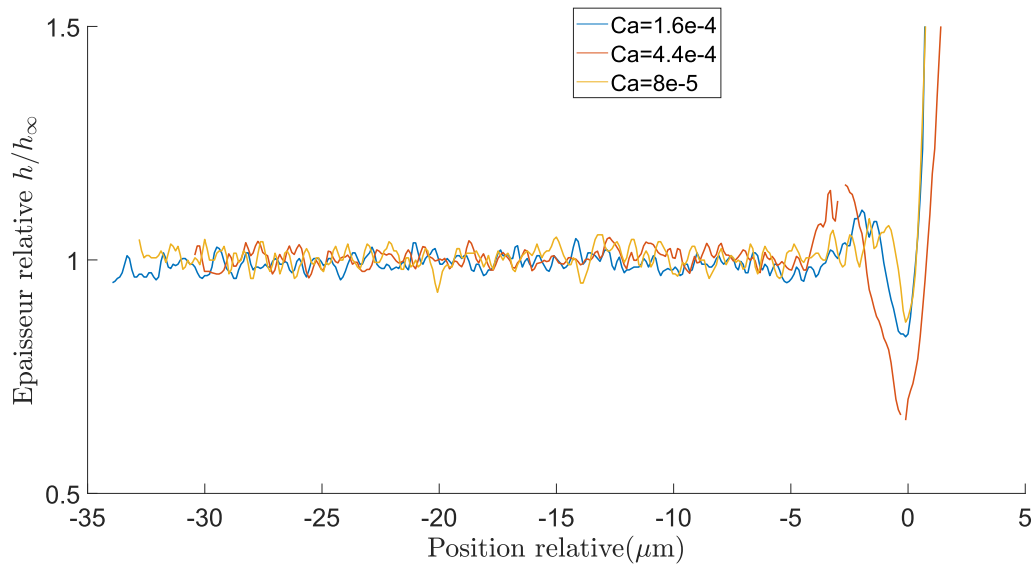


FIGURE 5.15 – Profil arrière d'épaisseur relative d'une goutte d'huile fluorée dans une solution aqueuse de  $C_{12}$ -Sulfate à 2 CMC pour 3 nombres capillaire. Les profils sont recentrés au niveau du minimum de l'oscillation arrière.

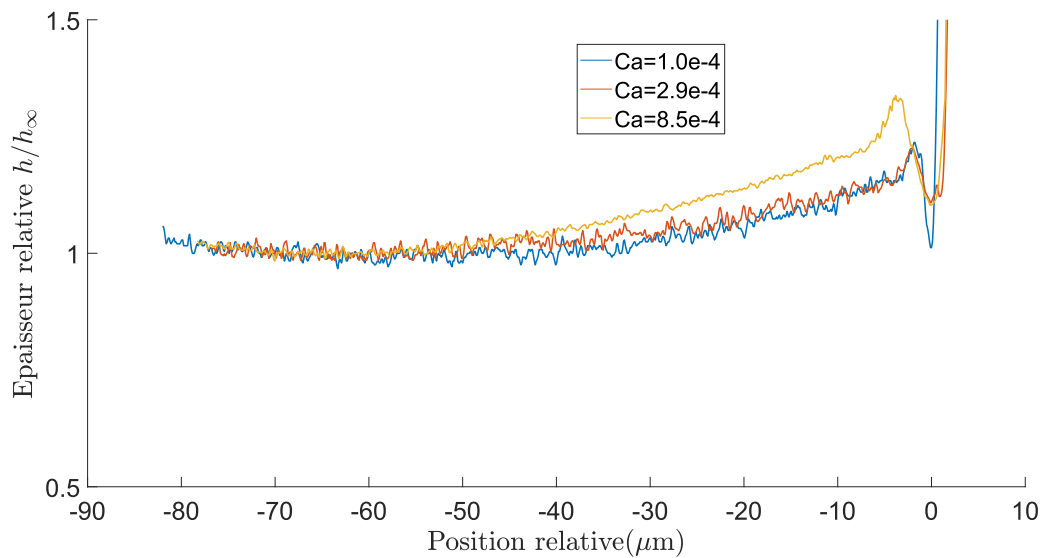


FIGURE 5.16 – Profil arrière d'épaisseur relative d'une goutte d'huile fluorée dans une solution aqueuse de  $C_{10}$ -Sulfate à 2 CMC pour 3 nombres capillaire. Les profils sont recentrés au niveau du minimum de l'oscillation arrière. On observe un épaissement du film vers l'arrière de la goutte.

### Pour résumer

- Notre dispositif RICM nous permet de reconstruire les profils d'épaisseur de film de lubrification pour des gouttes allant jusqu'à des vitesses  $U_d \sim 2$  cm/s.
- Par des arguments physiques nous pouvons reconstruire la topographie entière du film sous la goutte.
- L'épaisseur du film plat sous la goutte suit, pour nos solutions, une relation linéaire avec la vitesse de phase porteuse.
- On montre que l'épaisseur du film plat sous la goutte suit, pour nos solutions, suit une loi de puissance  $2/3$  avec le nombre capillaire  $Ca$
- Nos mesures montrent que le système est bel et bien symétrique haut/bas et que les deux films de lubrification au sol et au plafond sont sensiblement identiques.
- Le rayon de la goutte, dans notre gamme d'observation, ne joue aucun rôle sur l'épaisseur de film plat.
- La reconstruction des ménisques dynamiques avant et arrière sont très bien reproduits dès lors que le régime de disjonction est quitté par le modèle théorique si on lui donne des conditions aux limites de type *Rolling*.
- On observe une différence de comportement dans le ménisque arrière pour des tensioactifs différents, peut être la différence de comportement de la mobilité de la goutte trouve sa réponse ici.
- L'épaississement mesuré Figure 5.16 est incompatible avec une vitesse uniforme à l'interface. Il se fait dans une zone de faible pression de Laplace et peut donc être analysé avec les résultats du paragraphe 1.6, Chapitre 1.



**Discussion et idée de modèle** Ces résultats sont très récents. Néanmoins, l'idée que nous avons eu au regard des résultats montrés ci-dessus a été de considérer les écoulements latéraux.

En effet, les gouttes sont dans une cellule de Hele-Shaw et les gouttes vont moins vite que la phase externe. C'est tout le propos des premiers chapitres où nous montrons que la mobilité d'une goutte d'huile fluorée, même si dépendante de la chimie de la solution, varie autour de  $\beta = 0.3$ . Dès lors, la phase externe allant plus vite que la goutte, elle peut générer un flux d'interface, par continuité de la vitesse tangentielle, qui revient vers l'avant advectant potentiellement des tensioactifs de l'arrière vers l'avant. Nous discutons de cette hypothèse dans la section suivante.

Durant la rédaction de ce manuscrit un travail théorique mené avec Isabelle Cantat et Adrien Gans a abouti à un modèle qui prend en compte un effet Marangoni entre l'avant et l'arrière. Cette différence localisée de tension de surface, dans le modèle, résulte d'une compétition entre le flux net de surfactants qui s'adsorbent à l'interface à l'avant de la goutte et ceux advectés par le flux d'interface sur les côtés provenant de l'arrière. Il y aurait alors une différence entre les tensioactifs qui mettent plus ou moins de temps à s'adsorber/se désorber, entraînant une différence de tension de surface entre l'avant et l'arrière de la goutte, résultant en une rigidification de l'interface et ainsi un épaissement du film.

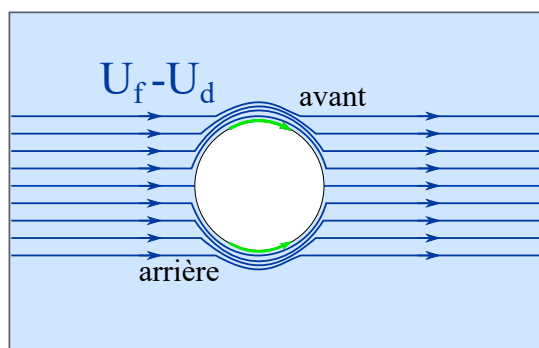


FIGURE 6.1 – Schéma représentant une goutte vue du dessus et les lignes de courant dans la phase porteuse. On se place dans le référentiel de la goutte, et le fluide, loin de la goutte se déplace donc à une vitesse  $U_f - U_d$  qui est positive. Les flèches vertes à l'interface représentent le flux d'interface sur les côtés qui par continuité de la contrainte tangentielle, est advecté à l'avant.

### 6.0.1 Différence de pression

On repart du calcul effectué au premier chapitre. La goutte avance grâce à un gradient de pression, situé entre l'arrière de la goutte et l'avant. En s'appuyant sur le schéma représenté Figure 6.2, nous

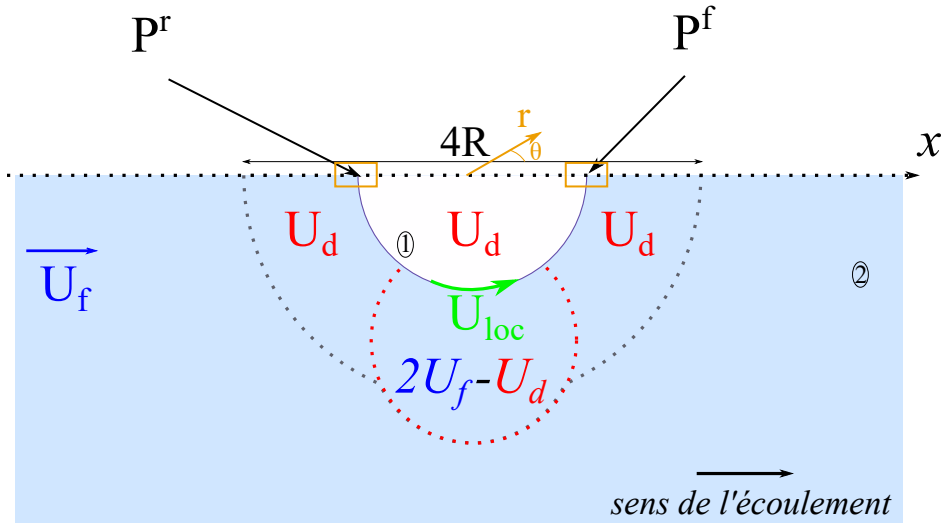


FIGURE 6.2 – Schéma représentant la moitié de la goutte évoluant dans la cellule de Hele-Shaw, représentée du dessus. En blanc la goutte, en pointillées sont représentées les différentes zones d'influences de la goutte sur l'écoulement de la phase externe. 1 est la phase interne, la goutte, 2 est le fluide extérieur.

allons écrire de plusieurs manières le gradient de pression entre l'arrière  $P^r$  et l'avant de la goutte  $P^f$ .

Le long de l'axe  $\vec{x}$  nous avons :

$$P_2^r - P_2^f = P_2^r - P_1^r + P_1^r - P_1^f + P_1^f - P_2^f \quad (6.1)$$

Ce qui mène, tout calcul fait, à l'équation 1.35 déterminée dans l'état de l'art.

$$\frac{\eta_2 R}{2H^2} \left[ -2U_f + \left( 1 + \frac{\eta_1}{\eta_2} \right) U_d \right] = -\frac{1}{H} (\partial\gamma^f - \partial\gamma^r) - \frac{\gamma_0}{H^2} (\partial H^r - \partial H^f) \quad (6.2)$$

On a maintenant une relation entre le gradient de pression et la différence de tension de surface entre l'avant et l'arrière de la goutte. Contrairement au premier chapitre, nous n'allons cette fois-ci plus supposer une tension de surface constante le long de l'interface : nous gardons les termes en  $\partial\gamma^f - \partial\gamma^r$  et nous nous intéressons à ceux-ci.

### 6.0.2 Bilan de surfactant

L'idée ici est d'écrire un bilan de surfactants en considérant par exemple à l'avant, à la fois les tensioactifs qui s'adsorbent passant du volume à l'interface et à la fois les tensioactifs advectés par le flux d'interface ramené de l'arrière par le fluide porteur (encore une fois, la goutte est moins rapide que la phase porteuse).

On pose la relation entre la tension de surface  $\gamma$ , la tension de surface à l'équilibre  $\gamma_0$ , les excès de surface  $\Gamma$  et l'élasticité de Gibbs  $E$ .

$$\gamma = \gamma_0 - \frac{E}{\Gamma_0} (\Gamma - \Gamma_0) \quad (6.3)$$

On définit également  $\tau$ , un temps caractéristique de transfert des surfactants vers l'interface. Dans lequel est inclus à la fois le temps de sorption du tensioactif, mais également le potentiel temps de diffusion du volume vers la proche interface. On s'attend à ce que ce temps, phénoménologique, soit plus grand pour les surfactants à longue chaîne carbonée. On peut alors écrire le flux entrant de surfactant :

$$\phi = \frac{\Gamma - \Gamma_0}{\tau}$$

Il faut maintenant faire le bilan des surfactants convectés à l'interface (on néglige la diffusion interfaciale). À l'avant, ce bilan s'écrit en soustrayant aux interfaces arrivant des côtes, l'interface qui va vers l'arrière via les deux films plats (supérieur et inférieur). Ces deux flux d'interface,  $\Psi_{côtés}$  et  $\Psi_{films}$  s'expriment respectivement dans le référentiel de la goutte :

$$\begin{cases} \Psi_{côtés} & 2H\alpha(U_{loc} - U_d) \\ \Psi_{films} & 4RU_d \end{cases}$$

Le bilan de surfactant peut donc s'écrire dans la limite  $\Gamma_0$  proche de  $\Gamma$  :

$$\Gamma_0(2\alpha(U_{loc} - U_d)H - 4RU_d) - \frac{\Gamma - \Gamma_0}{\tau}RH = 0 \quad (6.4)$$

Où  $U_{loc}$  est la vitesse de l'interface dans le référentiel du laboratoire et  $\alpha$  est un paramètre tenant compte de la géométrie de l'interface ( $\alpha = \pi$  dans une approximation cylindrique). En remplaçant le terme  $\Gamma - \Gamma_0$  et en supposant que les surfactants s'adsorbent et se désorbent à des vitesses similaires, on peut écrire :

$$\gamma_f - \gamma_r = 2\frac{E\tau}{RH}[4RU_d - 2\alpha(U_{loc} - U_d)H] \quad (6.5)$$

En reprenant les notations vues précédemment :

$$\gamma_f - \gamma_r = \gamma_o + \partial\gamma^f - (\gamma_o + \partial\gamma^r) = \partial\gamma^f - \partial\gamma^r \quad (6.6)$$

On peut donc remplacer  $\gamma_f - \gamma_r$  dans 6.2. En faisant apparaître le nombre capillaire à la place de  $\gamma_o$  pour retrouver les résultats de la littérature dans on obtient :

$$\frac{\gamma_o}{H^2}(\partial H^r - \partial H^f) = \frac{\eta_2 U_d}{H^2 C_a}(\partial H^r - \partial H^f) \quad (6.7)$$

$$U_d \left( 1 + \frac{\eta_1}{\eta_2} + \frac{2}{RC_a}(\partial H^r - \partial H^f) \right) = 2U_f - \frac{4E\tau}{\eta_2 R^2}(4RU_d - 2\alpha(U_{loc} - U_d)H) \quad (6.8)$$

Il nous faut maintenant déterminer la vitesse de l'interface  $U_{loc}$ . Nous allons donc supposer un écoulement engendré par un effet Marangoni entre l'arrière et l'avant de la goutte.

### 6.0.3 Marangoni sur les côtés de la goutte

En supposant un écoulement Marangoni sur les côtés de la goutte, on peut écrire :

$$\eta_2 \frac{R}{H}(U_{loc} - (2U_f - U_d)) = \tilde{\beta}(\gamma_f - \gamma_r) \quad (6.9)$$



Où  $\tilde{\beta}$  est un paramètre d'ajustement. On peut donc exprimer la vitesse de l'interface  $U_{loc}$  en fonction des variables connues du problème :

$$U_{loc} - U_d = \frac{\tilde{\beta}H}{\eta_2 R} (\gamma_f - \gamma_r) + 2(U_f - U_d) \quad (6.10)$$

En injectant 6.10 dans 6.8, puis en remplaçant  $\gamma_f - \gamma_r$  par son expression dans 6.5, on peut en tirer une expression de la mobilité :

$$\frac{U_d}{U_f} = \frac{2 + (\tilde{\beta} + 2) \frac{8E\tau\alpha H}{\eta_2 R^2}}{\left(1 + \frac{\eta_1}{\eta_2} + \frac{2}{RC_a} (\partial H^r - \partial H^f)\right) \left(1 + \frac{4E\tau\alpha\tilde{\beta}H}{\eta_2 R^2}\right) + \frac{16E\tau}{\eta_2 R} \left(1 + \alpha \frac{H}{R}\right)} \quad (6.11)$$

Plusieurs paramètres de cette expression sont inconnus, ou non-mesurables. Cependant, il est possible de distinguer les deux limites  $\tau \rightarrow 0$  et  $\tau \rightarrow \infty$ .

#### 6.0.4 Cas où $\tau \rightarrow 0$

Tout d'abord, la limite  $\tau \rightarrow 0$  nous permet de retomber sur le modèle de Dangla *et al.*, ce qui correspond bien à une grande solubilité des surfactants impliquant une tension de surface constante le long de l'interface. Le terme impliquant les variations de courbures est connu dans les cas typiques de *Rolling* et *Stress-free* : on retombe sur ce qui a été montré au Chapitre 1, équation 1.40.

$$U_d = \frac{2U_f}{1 + \frac{\eta_1}{\eta_2} + \beta_1 \frac{2H_o}{R} C_a^{-1/3}} \quad (6.12)$$

#### 6.0.5 Cas où $\tau \rightarrow \infty$

La limite  $\tau \rightarrow \infty$  nous donne la relation suivante :

$$\frac{U_d}{U_f} = \frac{2(\tilde{\beta} + 2)}{\tilde{\beta} \left(1 + \frac{\eta_1}{\eta_2} - \frac{2}{RC_a} (\partial H^r - \partial H^f)\right) + 4 \left(1 + \frac{R}{\alpha H}\right)} \quad (6.13)$$

Le terme en  $(\partial H^r - \partial H^f)$  est indépendant du rayon de la goutte. Il traduit les frottements visqueux aux parois localisé dans les ménisques il ne doit pas dépendre de  $R$ . Ainsi, dans le cas de tensioactifs qui sont peu solubles,  $\tau \rightarrow \infty$ , notre modèle montre un terme au dénominateur qui croit avec le rayon, et l'un qui croit à la fois avec le rayon et le nombre capillaire. À haut capillaire c'est ce dernier qui prend le dessus, et on observe théoriquement une inversion de la dépendance en rayon.

**Essai d'ajustement de courbe** Pour pouvoir boucler le travail sur ce modèle, il nous faudrait obtenir une expression pour le terme en  $(\partial H^r - \partial H^f)$ . Par manque de temps ce travail n'a pas encore été effectué, mais c'est l'une des perspectives proches.

Cependant, nous savons que ce terme doit être indépendant de  $R$  et nous faisons l'hypothèse qu'il croit avec le nombre capillaire. Pour pouvoir obtenir au moins une tendance graphique nous allons injecter dans l'équation 6.13 la même forme que précédemment, c'est-à-dire de la forme  $2H_o C_a^{2/3}$ . Ce qui, une fois injecté donne l'expression ci-dessous :

$$\frac{U_d}{U_f} = \frac{2(\tilde{\beta} + 2)}{\tilde{\beta} \left( 1 + \frac{\eta_1}{\eta_2} + \beta_1 \frac{2H_o}{R} C_a^{-1/3} \right) + 4 \left( 1 + \frac{R}{\alpha H_o} \right)} \quad (6.14)$$

Avec  $\beta_1$  paramètre d'ajustement évidemment différent du cas  $\tau \rightarrow 0$ .

### 6.0.6 Comparaison modèle - expérimentations

A priori  $\tau$  varie quand on passe d'une chimie à une autre : le temps caractéristique dépend du tensioactif utilisé. Nous allons donc tracer nos courbes de mobilités obtenues au chapitre 2, auxquelles nous allons superposer nos modèle pour ces deux cas.

*C<sub>10</sub>-Sulfate* Le *C<sub>10</sub>-Sulfate* est un tensioactif très soluble dans l'eau. Le modèle qui lui conviendrait le mieux est le cas  $\tau \rightarrow 0$ . Dans ce cas, on retombe sur le modèle *Stress-free*.

On obtient Figure 6.3, avec  $\beta_1 \approx 1.75$  dans l'équation 6.12 pour les deux rayons.

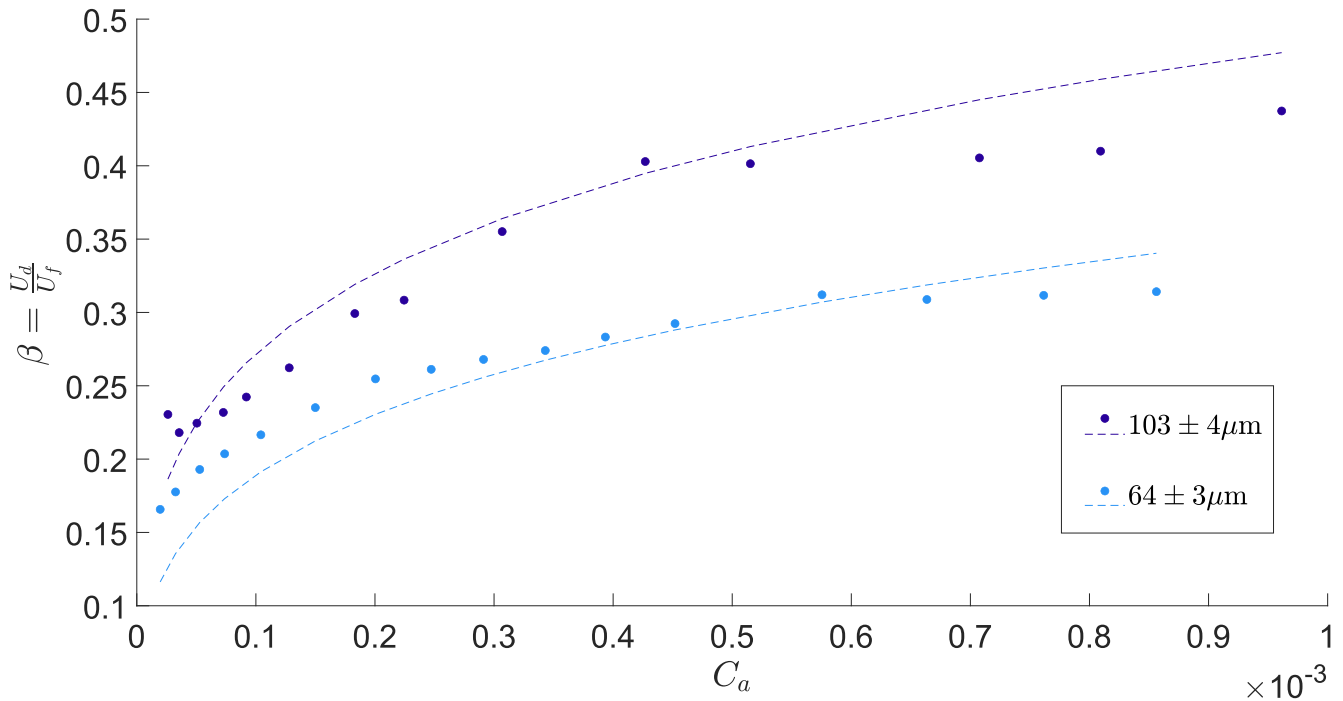


FIGURE 6.3 – Mobilité en fonction du nombre capillaire d'une goutte d'huile fluorée poussée par une solution aqueuse contenant du C10-Sulfate. Les points sont issus des données expérimentales. Les lignes en traits discontinues sont les tracés du modèle ajustés. La légende indique le rayon moyen de chaque couleur.

On observe plutôt un bon accord quantitatif. Notamment dans le régime capillaire. On obtient surtout la bonne dépendance en nombre capillaire  $C_a$  et la croissance de la mobilité avec le rayon de la goutte est bien observée.

*C<sub>12</sub>-Sulfate* A priori le *C<sub>12</sub>-Sulfate* est un tensioactif qui est moins soluble dans l'eau que le *C<sub>10</sub>-Sulfate*. L'idée est d'alors utiliser le cas  $\tau \rightarrow \infty$  du modèle. On obtient Figure 6.4 avec deux variables d'ajustement  $\beta_1$  et  $\tilde{\beta}$ . Variables qui a priori ne dépendent pas du rayon. Nous les imposons

donc égales pour chaque rayon et les valeurs trouvées pour obtenir la figure 6.4 sont respectivement :  $\beta_1 \approx 1.15$  et  $\tilde{\beta} \approx 1.68$  dans l'équation 6.14.

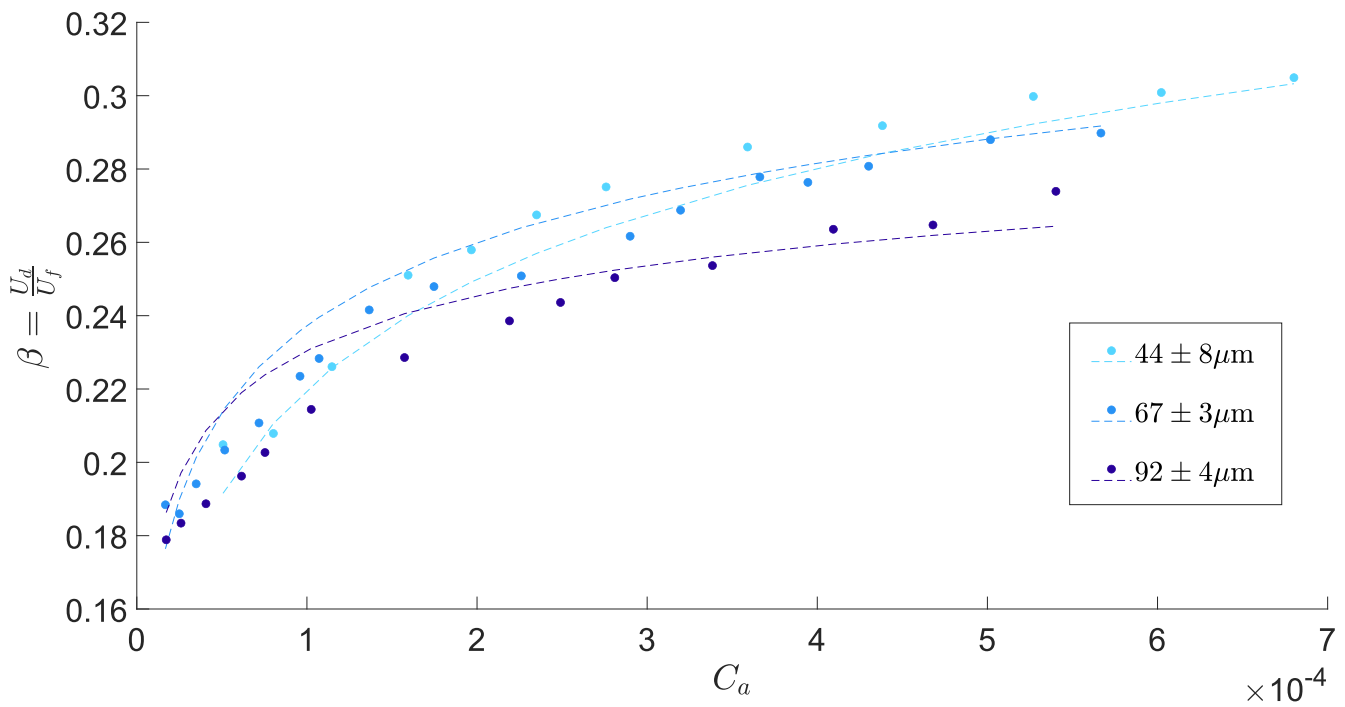


FIGURE 6.4 – Mobilité en fonction du nombre capillaire d’une goutte d’huile fluorée poussée par une solution aqueuse contenant du C12-Sulfate. Les points sont issus des données expérimentales. Les lignes discontinues sont les tracés du modèle ajustés. La légende indique le rayon moyen de chaque couleur.

- En se focalisant sur le graphe 6.4 nous constatons un accord plus que correct avec notre modèle et nos données expérimentales. Les points à bas nombres capillaires sont moins bien capturés que la croissance globale et une piste pour expliquer ceci est notre **hypothèse** de prendre  $\tau \rightarrow \infty$ . En effet plus le nombre capillaire devient faible, moins cette hypothèse est valide.
- Les tracés du modèle se croisent dans le graphe. Et ce croisement, même si plus difficilement visible expérimentalement, semble avoir lieu dans nos expérimentations. Notre modèle prédit se croisement du fait des deux termes qui dépendent du rayon. L'un faisant décroître la mobilité, l'autre la faisant croître. Ce dernier est pondéré par le nombre capillaire ce qui expliquerait ce temps de retard avant de devenir prépondérant.
- Enfin, ce modèle prédit une saturation avec le nombre capillaire de la mobilité. Cette saturation demande d'autres campagnes d'expérimentations à de plus hauts nombres capillaires ce qui sort quelque peu de cette étude. Nous laissons cela pour la suite.

Dans l'ensemble nous pensons que ce modèle bien qu'imparfait capte l'essentiel des phénomènes mis en jeu dans ce système. La prise en compte des écoulements latéraux et des inhomogénéités de tension de surface que cela peut engendrer sont données dans ce modèle et nous reconstruisons cette inversion de la dépendance en rayon. Néanmoins nous devons nous contenter de deux cas limites théoriques  $\tau \rightarrow 0$  et  $\tau \rightarrow \infty$ . Cette limite nous est imposée par notre méconnaissance de tous les paramètres physico-chimiques mis en jeu. La solution de prendre  $\tau \rightarrow \infty$  permet de s'affranchir de cette limite et de n'avoir que deux paramètres ajustables.



## CONCLUSION

Dans ces travaux nous nous sommes intéressés à la dynamique de gouttes pancakes dans des cellules de Hele-Shaw. Nous avons observé des gouttes d'huile peu visqueuses poussées par des solutions aqueuses dans lesquelles nous changions les tensioactifs. La question posée est simple : quelle est la vitesse de la goutte pour une vitesse de phase porteuse donnée?

Dans le chapitre 2 nous nous sommes focalisés sur caractéristiques et l'espace des paramètres atteignables par le dispositif expérimental : que pouvons-nous faire varier ? La vitesse est-elle constante dans la cavité ? Avons-nous un canal déformé ? Toutes ces questions ont permis de poser le cadre de notre étude.

Dans le chapitre 3 nous rapportons les résultats obtenus de la campagne d'expérimentations dans laquelle nous mesurons conjointement la vitesse de la phase porteuse et la vitesse de la goutte en faisant varier le rayon des gouttes et ce, pour différents tensioactifs. Un résultat phare et inédit de cette thèse est la mise en évidence d'un changement de comportement en fonction de la nature du tensioactif. En effet, à notre connaissance, la littérature tant expérimentale que théorique prédisait une croissance de la vitesse de la goutte avec le rayon pour une vitesse de phase porteuse donnée. Une occurrence d'un comportement différent avait été montrée par Benjamin Reichert dans sa thèse. Ici, une étude systématique a permis de montrer que le paramètre pilotant le passage d'un *plus grand, plus vite* à un *plus grand, moins vite* est la longueur de chaîne carbonée du tensioactif dilué en solution.

Au chapitre 4, le montage d'un dispositif expérimental de mesure d'épaisseur par interférométrie est présenté. On y explique les choix de conception dans le cadre d'observation de gouttes rapides et on y caractérise ses performances. La reconstruction d'un ménisque statique d'une goutte stationnaire dans une cellule de Hele-Shaw est également présentée.

Enfin, au chapitre 5 nous présentons les résultats obtenus après avoir utilisé notre dispositif RICM sur les gouttes observées dans les chapitres précédents. Nous sommes capables de reconstruire précisément la topographie de films de lubrifications présents sous les gouttes, pour une grande gamme de vitesse de gouttes. Un second résultat phare de cette thèse est la mise en évidence d'une distinction topographique, d'épaisseur au sein du film de lubrification, entre les deux familles de tensioactifs.

Pour les tensioactifs faisant partis des *plus grand, plus vite* on observe un épaissement dans le film plat à l'arrière de la goutte, non présent pour les tensioactifs *plus grand, moins vite*. Cet épaissement est la signature d'une modification de la contrainte à l'interface.

Enfin, au chapitre 6, nous proposons une modélisation inédite, en ne considérant plus seulement les écoulements présents dans les films de lubrifications mais également les écoulements latéraux autour d'une goutte navigant dans une cellule de Hele-Shaw. Cette modélisation bien que très récente, ouvre un panel d'applications important et plusieurs points méritent que les travaux continuent.

Il est nécessaire de mener un travail théorique important pour proposer une expression de la correction de courbure  $\partial H^r - \partial H^f$ . Travail réalisé en couplage avec l'expérimentation, car l'outil RICM développé spécialement pour l'observation de gouttes est un excellent moyen complémentaire pour observer ces variations.

Également un autre travail expérimental est nécessaire pour lever en partie des interrogations sur les limites en nombre capillaire de ce modèle : par exemple en utilisant des tensioactifs encore moins solubles comme des protéines, pour rendre l'approximation  $\tau \rightarrow \infty$  d'autant plus vraie.

On peut imaginer à moyen-long terme, si ces deux points sont validés, effectuer une rétroaction dans ce travail. C'est-à-dire, une fois le modèle validé, on peut imaginer remonter aux propriétés physico-chimiques des tensioactifs. Ne plus les considérer comme des données du problème, mais comme des données extraites de nos mesures. Il serait alors possible, en couplant l'observation en transmission (mesure de la mobilité) ainsi que l'observation au travers du dispositif interférométrique (mesure du profil d'épaisseur), de déterminer des propriétés interfaciales des tensioactifs au travers de modèles de transports : comme leur faculté à s'adsorber, leur pouvoir surfactant ou encore leurs temps de résidence à l'interface ou de diffusion.

On dépasse alors le domaine de l'observation de gouttes en microfluidique, où la question était :

**Quelle est la vitesse de la goutte pour un débit de phase porteuse donné?**

Pour finalement tendre vers un outil utilisable dans un domaine moins restreint et s'ouvrir à une caractérisation d'espèces chimiques utilisables plus généralement, notamment dans le domaine des mousses ou des émulsions.

## BIBLIOGRAPHIE

- [ABS03] Shelley L Anna, Nathalie Bontoux, and Howard A Stone. Formation of dispersions using “flow focusing” in microchannels. *Applied physics letters*, 82(3) :364–366, 2003.
- [BF90] D Burgess and MR Foster. Analysis of the boundary conditions for a hele–shaw bubble. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, 2(7) :1105–1117, 1990.
- [BGD10] Charles N Baroud, Francois Gallaire, and Rémi Dangla. Dynamics of microfluidic droplets. *Lab on a Chip*, 10(16) :2032–2045, 2010.
- [BR92] V Bergeron and CJ Radke. Equilibrium measurements of oscillatory disjoining pressures in aqueous foam films. *Langmuir*, 8(12) :3020–3026, 1992.
- [Bre61] Francis Patton Bretherton. The motion of long bubbles in tubes. *Journal of Fluid Mechanics*, 10(2) :166–188, 1961.
- [BSL94] A. Bonfillon, F. Sicoli, and D. Langevin. Dynamic surface tension of ionic surfactant solutions. *Journal of Colloid and Interface Science*, 168(2) :497–504, 1994.
- [Can13] Isabelle Cantat. Liquid meniscus friction on a wet plate : Bubbles, lamellae, and foams. *Physics of Fluids*, 25(3) :031303, 2013.
- [CD12] Isabelle Cantat and Benjamin Dollet. Liquid films with high surface modulus moving in tubes : dynamic wetting film and jumpy motion. *Soft Matter*, 8(30) :7790–7796, 2012.
- [Cha15] Lorene Champougny. *Génération et rupture de films liquides minces*. PhD thesis, Université Paris Saclay (COMUE), 2015.
- [Che86] Jing-Den Chen. Measuring the film thickness surrounding a bubble inside a capillary. *Journal of Colloid and Interface Science*, 109(2) :341–349, 1986.
- [CMS97] B Cuenot, J Magnaudet, and B Spennato. The effects of slightly soluble surfactants on the flow around a spherical bubble. *Journal of fluid mechanics*, 339 :25–53, 1997.
- [Cur64] ASG Curtis. The mechanism of adhesion of cells to glass : a study by interference reflection microscopy. *The Journal of cell biology*, 20(2) :199–215, 1964.
- [Dan12a] Rémi Dangla. *2D droplet microfluidics driven by confinement gradients*. Theses, Ecole Polytechnique X, October 2012.
- [Dan12b] Rémi Dangla. *2D droplet microfluidics driven by confinement gradients*. PhD thesis, Ecole Polytechnique X, 2012.
- [Dav87] Stephen H Davis. Thermocapillary instabilities. *Annual Review of Fluid Mechanics*, pages 403–435, 1987.



- [Der43] BVCR Derjaguin. Thickness of liquid layer adhering to walls of vessels on their emptying and the theory of photo-and motion-picture film coating. In *CR (Dokl.) Acad. Sci. URSS*, volume 39, pages 13–16, 1943.
- [dGBWQ] PG de Gennes, F Brochard-Wyart, and D Gouttes Quéré. *Bulles, perles et ondes ; belin* : Paris, 2002. *Google Scholar* There is no corresponding record for this reference.
- [DL41] B Derjaguin and LJAPU Landau. The theory of stability of highly charged lyophobic sols and coalescence of highly charged particles in electrolyte solutions. *Acta Physicochim. URSS*, 14(633-52) :58, 1941.
- [DM07] Masahiko Daimon and Akira Masumura. Measurement of the refractive index of distilled water from the near-infrared region to the ultraviolet region. *Applied optics*, 46 :3811–20, 07 2007.
- [DO36] B Derjaguin and E Obuchov. Ultramicrometric analysis of solvate layer and elementary expansion effects. *Acta Physicochimica URSS*, 5(1), 1936.
- [DSGL05] Nikolai D Denkov, Vivek Subramanian, Daniel Gurovich, and Alex Lips. Wall slip and viscous dissipation in sheared foams : Effect of surface mobility. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 263(1-3) :129–145, 2005.
- [DSR89] Robert H Davis, Jeffrey A Schonberg, and John M Rallison. The lubrication force between two viscous drops. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, 1(1) :77–81, 1989.
- [ED00] J Eastoe and JS Dalton. Dynamic surface tension and adsorption mechanisms of surfactants at the air–water interface. *Advances in colloid and interface science*, 85(2-3) :103–144, 2000.
- [FJ92a] J.P. Fang and P. Joos. The dynamic surface tension of sds— dodecanol mixtures : 1. the submicellarsystems. *Colloids and Surfaces*, 65(2) :113–120, 1992.
- [FJ92b] J.P. Fang and P. Joos. The dynamic surface tension of sds—dodecanol mixtures 2. micellar sds—dodecanol mixtures. *Colloids and Surfaces*, 65(2) :121–129, 1992.
- [FP00] TJ Filler and ET Peuker. Reflection contrast microscopy (rcm) : a forgotten technique? *The Journal of Pathology : A Journal of the Pathological Society of Great Britain and Ireland*, 190(5) :635–638, 2000.
- [Fre68] Augustin Jean Fresnel. *Œuvres complètes d'Augustin Fresnel : Théorie de la lumière*, volume 2. Imprimerie impériale, 1868.
- [Fuj02] Teruo Fujii. Pdms-based microfluidic devices for biomedical applications. *Microelectronic Engineering*, 61 :907–914, 2002.
- [GGD<sup>+</sup>04] Piotr Garstecki, Irina Gitlin, Willow DiLuzio, George M Whitesides, Eugenia Kumacheva, and Howard A Stone. Formation of monodisperse bubbles in a microfluidic flow-focusing device. *Applied Physics Letters*, 85(13) :2649–2651, 2004.
- [GMLB14] Francois Gallaire, Philippe Meliga, Patrice Laure, and Charles N Baroud. Marangoni induced force on a drop in a hele shaw cell. *Physics of Fluids*, 26(6) :062105, 2014.

- [GRRM11] Cyprien Gay, Pierre Rognon, Douglas Reinelt, and François Molino. Rapid plateau border size variations expected in three simple experiments on 2d liquid foams. *The European Physical Journal E*, 34(1) :1–11, 2011.
- [HJR04] SR Hodges, OE Jensen, and JM Rallison. The motion of a viscous drop through a cylindrical tube. *Journal of fluid mechanics*, 501 :279–301, 2004.
- [HJTV16] A Huerre, M-C Jullien, O Theodoly, and M-P Valignat. Absolute 3d reconstruction of thin films topography in microfluidic channels by interference reflection microscopy. *Lab on a Chip*, 16(5) :911–916, 2016.
- [HMJ14] Axel Huerre, Vincent Miralles, and Marie-Caroline Jullien. Bubbles and foams in microfluidics. *Soft matter*, 10(36) :6888–6902, 2014.
- [HS98] Henry Selby Hele-Shaw. Flow of water. *Nature*, 58(1509) :520–520, 1898.
- [HTL<sup>+</sup>15] Axel Huerre, Olivier Theodoly, Alexander M Leshansky, Marie-Pierre Valignat, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien. Droplets in microchannels : dynamical properties of the lubrication film. *Physical review letters*, 115(6) :064501, 2015.
- [Hue15] Axel Huerre. *Migration de gouttes en microfluidique : caractérisation et applications*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2015.
- [HVM<sup>+</sup>17] Axel Huerre, Marie-Pierre Valignat, AC Maggs, Olivier Theodoly, and Marie-Caroline Jullien. Laplace pressure based disjoining pressure isotherm in non symmetric conditions. *Applied Physics Letters*, 111(22) :221601, 2017.
- [KGM14] Evert Klaseboer, Raghendra Gupta, and Rogerio Manica. An extended bretherton model for long taylor bubbles at moderate capillary numbers. *Physics of Fluids*, 26(3) :032107, 2014.
- [KJBR18] Ludovic Keiser, Khalil Jaafar, José Bico, and Etienne Reyssat. Dynamics of non-wetting drops confined in a hele-shaw cell. *Journal of Fluid Mechanics*, 845 :245–262, 2018.
- [KSH88] Anne R Kopf-Sill and GM Homay. Bubble motion in a hele-shaw cell. *The Physics of fluids*, 31(1) :18–26, 1988.
- [Lap99] Pierre Simon Laplace. *Traité de mécanique céleste*, volume 1. de l’Imprimerie de Crapelet, 1799.
- [LAR95] Chantal LARPENT. *Tensioactifs*. Ed. Techniques Ingénieur, 1995.
- [LFPJ16] Yue Ling, Jose-Maria Fullana, Stéphane Popinet, and Christophe Josserand. Droplet migration in a hele-shaw cell : Effect of the lubrication film on the droplet dynamics. *Physics of Fluids*, 28(6) :062001, 2016.
- [LGB12] Sungyon Lee, François Gallaire, and Charles N Baroud. Interface-induced recirculation within a stationary microfluidic drop. *Soft Matter*, 8(41) :10750–10758, 2012.
- [LL88] Levich Landau and B Levich. Dragging of a liquid by a moving plate. In *Dynamics of curved fronts*, pages 141–153. Elsevier, 1988.

- [LS09] Laurent Limozin and Kheya Sengupta. Quantitative reflection interference contrast microscopy (ricm) in soft matter and cell adhesion. *ChemPhysChem*, 10(16) :2752–2768, 2009.
- [Mad18] Marc J Madou. *Fundamentals of microfabrication : the science of miniaturization*. CRC press, 2018.
- [Man19] Alexandre Mansur. *Dynamique de goutte en microfluidique dans un système confiné*. PhD thesis, Paris Sciences et Lettres (ComUE), 2019.
- [MHMJ13] Vincent Miralles, Axel Huerre, Florent Malloggi, and Marie-Caroline Jullien. A review of heating and temperature control in microfluidic systems : techniques and applications. *Diagnostics*, 3(1) :33–67, 2013.
- [MK72] Masaji Miura and Michiko Kodama. The second cmc of the aqueous solution of sodium dodecyl sulfate. i. conductivity. *Bulletin of the Chemical Society of Japan*, 45(2) :428–431, 1972.
- [MM87] Albert A Michelson and Edward W Morley. On the relative motion of the earth and of the luminiferous ether. *Sidereal Messenger*, vol. 6, pp. 306-310, 6 :306–310, 1887.
- [MP96] SRK Maruvada and C-W Park. Retarded motion of bubbles in hele–shaw cells. *Physics of fluids*, 8(12) :3229–3233, 1996.
- [MR09] Philippe Marmottant and Jan-Paul Raven. Microfluidics with foams. *Soft Matter*, 5(18) :3385–3388, 2009.
- [MRD<sup>+</sup>08] A Cervantes Martinez, Emmanuelle Rio, Giles Delon, Arnaud Saint-Jalmes, Dominique Langevin, and Bernard P Binks. On the origin of the remarkable stability of aqueous foams stabilised by nanoparticles : link with microscopic surface properties. *Soft matter*, 4(7) :1531–1535, 2008.
- [MS20] Harishankar Manikantan and Todd M Squires. Surfactant dynamics : hidden variables controlling fluid flows. *Journal of fluid mechanics*, 892, 2020.
- [Nav26] Claude Louis Marie Henri Navier. *Résumé des leçons données à l'école royale des ponts et chaussées sur l'application de la mécanique à l'établissement des constructions et des machines*. Didot, 1826.
- [NW89] AD Nikolov and DT Wasan. Ordered micelle structuring in thin films formed from anionic surfactant solutions : I. experimental. *Journal of colloid and interface science*, 133(1) :1–12, 1989.
- [PD94] SS Park and Douglas J Durian. Viscous and elastic fingering instabilities in foam. *Physical review letters*, 72(21) :3347, 1994.
- [PH84] C-W Park and GM Homsy. Two-phase displacement in hele shaw cells : theory. *Journal of Fluid Mechanics*, 139 :291–308, 1984.
- [PMY94] Chang-Won Park, SRK Maruvada, and Do-Young Yoon. The influence of surfactant on the bubble motion in hele–shaw cells. *Physics of Fluids*, 6(10) :3267–3275, 1994.

- [PVBT13] Pascal Preira, Marie-Pierre Valignat, José Bico, and Olivier Théodoly. Single cell rheometry with a microfluidic constriction : Quantitative control of friction and fluid leaks between cell and channel walls. *Biomicrofluidics*, 7(2) :024111, 2013.
- [QdR98] David Quéré and Alain de Ryck. Le mouillage dynamique des fibres. In *Annales de physique*, volume 23, pages 1–149. EDP Sciences, 1998.
- [RC90] J Ratulowski and H-C Chang. Marangoni effects of trace impurities on the motion of long gas bubbles in capillaries. *Journal of Fluid Mechanics*, 210 :303–328, 1990.
- [RCJ19] Benjamin Reichert, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien. Predicting droplet velocity in a hele-shaw cell. *Physical Review Fluids*, 4(11) :113602, 2019.
- [Rei17] Benjamin Reichert. *Dynamique d'une goutte 2D dans une cellule de Hele-Shaw*. PhD thesis, Paris Sciences et Lettres (ComUE), 2017.
- [RHT<sup>+</sup>18] Benjamin Reichert, Axel Huerre, Olivier Theodoly, Marie-Pierre Valignat, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien. Topography of the lubrication film under a pancake droplet travelling in a hele-shaw cell. *Journal of Fluid Mechanics*, 850 :708–732, 2018.
- [Rio13] Emmanuelle Rio. *Stabilité des mousses : quelques expériences montrant l'influence de la rhéologie de surface*. PhD thesis, Université Paris Sud-Paris XI, 2013.
- [RKP<sup>+</sup>20] Aysha S Rafique, Sepideh Khodaparast, Andreas S Poulos, William N Sharratt, Eric SJ Robles, and Joao T Cabral. Micellar structure and transformations in sodium alkylbenzenesulfonate (nalas) aqueous solutions : effects of concentration, temperature, and salt. *Soft Matter*, 16(33) :7835–7844, 2020.
- [RS93] Joachim Rädler and Erich Sackmann. Imaging optical thicknesses and separation distances of phospholipid vesicles at solid surfaces. *Journal de Physique II*, 3(5) :727–748, 1993.
- [RTR<sup>+</sup>11] David Rabaud, Pierre Thibault, Jan-Paul Raven, Olivier Hugon, Eric Lacot, and Philippe Marmottant. Manipulation of confined bubbles in a thin microchannel : Drag and acoustic Bjerknes forces. *Physics of Fluids*, 23(4) :042003, 2011.
- [S<sup>+</sup>51] George Gabriel Stokes et al. On the effect of the internal friction of fluids on the motion of pendulums. 1851.
- [SBB95] KJ Stebe and D Barthes-Biesel. Marangoni effects of adsorption—desorption controlled surfactants on the leading end of an infinitely long bubble in a capillary. *Journal of Fluid Mechanics*, 286 :25–48, 1995.
- [SBJ<sup>+</sup>12] Dragan Z. Stupar, Jovan S. Bajić, Ana V. Joža, Bojan M. Dakić, Miloš P. Slankamenac, Miloš B. Živanov, and Edvard Cibula. Remote monitoring of water salinity by using side-polished fiber-optic u-shaped sensor. In *2012 15th International Power Electronics and Motion Control Conference (EPE/PEMC)*, pages LS4c.4–1–LS4c.4–5, 2012.
- [SCJ11] Bertrand Selva, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien. Temperature-induced migration of a bubble in a soft microcavity. *Physics of fluids*, 23(5) :052002, 2011.

- [SGMS02] Amy Q Shen, Blake Gleason, Gareth H McKinley, and Howard A Stone. Fiber coating with surfactant solutions. *Physics of Fluids*, 14(11) :4055–4068, 2002.
- [SLRT14] Bingqing Shen, Marie Leman, Mathilde Reyssat, and Patrick Tabeling. Dynamics of a small number of droplets in microfluidic hele–shaw cells. *Experiments in fluids*, 55(5) :1–10, 2014.
- [SN01] Michael F Schatz and G Paul Neitzel. Experiments on thermocapillary instabilities. *Annual review of fluid mechanics*, 33(1) :93–127, 2001.
- [ST09] Edson J Soares and Roney L Thompson. Flow regimes for the immiscible liquid–liquid displacement in capillary tubes with complete wetting of the displaced liquid. *Journal of Fluid Mechanics*, 641 :63–84, 2009.
- [Tan86] Saleh Tanveer. The effect of surface tension on the shape of a hele–shaw cell bubble. *The Physics of fluids*, 29(11) :3537–3548, 1986.
- [TDS88] Gary F Teletzke, H Ted Davis, and LE Scriven. Wetting hydrodynamics. *Revue de Physique Appliquee*, 23(6) :989–1007, 1988.
- [TRAQ01] Todd Thorsen, Richard W Roberts, Frances H Arnold, and Stephen R Quake. Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device. *Physical review letters*, 86(18) :4163, 2001.
- [TS59] Geoffrey Taylor and PG Saffman. A note on the motion of bubbles in a hele-shaw cell and porous medium. *The Quarterly Journal of Mechanics and Applied Mathematics*, 12(3) :265–279, 1959.
- [VBTP88] I Velde, J Bonnet, HJ Tanke, and JS Ploem. Reflection contrast microscopy. *Histochemistry*, 89(2) :141–150, 1988.
- [VO55] Evert Johannes Willem Verwey and J Th G Overbeek. Theory of the stability of lyophobic colloids. *Journal of Colloid Science*, 10(2) :224–225, 1955.
- [Wic97] Walter Wick. *A drop of water : A book of science and wonder*. Scholastic New York, NY, 1997.
- [WPM55] RJ Williams, JN Phillips, and KJ Mysels. The critical micelle concentration of sodium lauryl sulphate at 25 c. *Transactions of the Faraday Society*, 51 :728–737, 1955.
- [XNS<sup>+</sup>05] Shengqing Xu, Zhihong Nie, Minseok Seo, Patrick Lewis, Eugenia Kumacheva, Howard A Stone, Piotr Garstecki, Douglas B Weibel, Irina Gitlin, and George M Whitesides. Generation of monodisperse particles by using microfluidics : control over size, shape, and composition. *Angewandte Chemie*, 117(5) :734–738, 2005.
- [ZG16] Lailai Zhu and François Gallaire. A pancake droplet translating in a hele-shaw cell : lubrication film and flow field. *Journal of Fluid Mechanics*, 798 :955–969, 2016.
- [ZM14] Jun Zhang and Yonggang Meng. Stick–slip friction of stainless steel in sodium dodecyl sulfate aqueous solution in the boundary lubrication regime. *Tribology Letters*, 56, 12 2014.

[ZWLX12] Zhi-Qiang Zhu, Yang Wang, Qiu-Sheng Liu, and Jing-Chang Xie. Influence of bond number on behaviors of liquid drops deposited onto solid substrates. *Microgravity Science and Technology*, 24(3) :181–188, 2012.



---

**Titre : Rôle de la chimie des surfactants dans la dynamique de gouttes confinées dans une cavité microfluidique.**

**Mots clés :** gouttes, surfactants, interférométrie, physico-chimie, microfluidique, Hele-Shaw

**Résumé :** La dynamique de gouttes en milieu confiné, dans une cellule de Hele-Shaw est une problématique ancienne. Il a été montré que cette dynamique dépend des conditions à l'interface entre la goutte et la phase externe qui la pousse. Nous venons, au travers d'une double expérimentation, à la fois mesurer les deux vitesses du problème : à savoir la vitesse de la goutte et la vitesse de la phase porteuse, et à la fois, à l'aide d'un dispositif interférométrique, mesurer l'épaisseur des films de lubrifications. Cette première mesure nous a permis de mettre en évidence une inversion de la dépendance de la vitesse de la goutte avec son rayon, ainsi que le paramètre pertinent pilotant cette inversion.

La seconde mesure, celle d'épaisseur des films, montre également la signature d'un effet interfaciale observé dans le film de lubrification en fonction de ce paramètre.

Enfin, un modèle prenant en compte la géométrie 3D d'une cellule de Hele-Shaw et considérant les écoulements latéraux présents sur les côtés de la goutte est présenté. Ce modèle présente un accord saisissant avec nos données expérimentales, ce qui nous conforte dans l'idée que ces écoulements sont responsables des deux effets observés expérimentalement : inversion de la dépendance en rayon et épaissement localisé.

---

**Title : Role of surfactant chemistry in the dynamics of confined droplets in a microfluidic cell.**

**Keywords :** droplets, surfactants, interferometry, physico-chemistry, microfluidic, Hele-Shaw

**Résumé :** The dynamics of drops in a confined environment in a Hele-Shaw cell is an old problem. It has been shown that these dynamics depend on the conditions at the interface between the drop and the external phase that pushes it. We have come, through a double experimentation, to measure both velocities of the problem: namely the velocity of the drop and the velocity of the carrier phase, and at the same time, using an interferometric device, to measure the thickness of the lubrication films. This first measurement allowed us to highlight an inversion of the dependence of the velocity of the drop on its radius, as well as the relevant parameter driving this inversion.

The second measurement, that of film thickness, also shows the signature of an interfacial effect observed in the lubrication film as a function of this parameter.

Finally, a model taking into account the 3D geometry of a Hele-Shaw cell and considering the lateral flows present on the sides of the drop is presented. This model shows a striking agreement with our experimental data, which confirms that these flows are responsible for the two effects observed experimentally: inversion of the radius dependence and localized thickening.