



HAL
open science

Formation et destruction de mousse en écoulement dans un milieu confiné

Mattéo Clerget

► **To cite this version:**

Mattéo Clerget. Formation et destruction de mousse en écoulement dans un milieu confiné. Matière Molle [cond-mat.soft]. Sorbonne Université, 2023. Français. NNT : 2023SORUS493 . tel-04443913

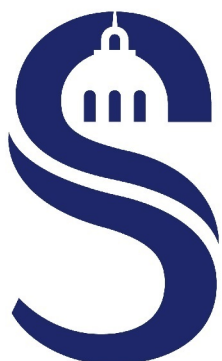
HAL Id: tel-04443913

<https://theses.hal.science/tel-04443913>

Submitted on 7 Feb 2024

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.



**SORBONNE
UNIVERSITÉ**



THÈSE DE DOCTORAT

Formation et destruction de mousse en écoulement dans un milieu confiné

Soutenue par

Mattéo Clerget

Le 03 novembre 2023

École doctorale n°397

**Physique et Chimie des
Matériaux**

Spécialité

Physique

Préparée au

SIMM UMR7615

Composition du jury :

Dominique LANGEVIN Directrice de recherche	<i>Présidente du jury Examinatrice</i>
Hugues BODIGUEL Professeur des Universités, LRP	<i>Rapporteur</i>
Benjamin DOLLET Chargé de recherche, LIPhy	<i>Rapporteur</i>
Frédéric RISSO Directeur de recherche, IMFT	<i>Examineur</i>
Alexandra KLIMENKO Ingénieure de recherche, TotalEnergies	<i>Invitée</i>
Pascal PANIZZA Professeur des Universités, IPR	<i>Directeur de thèse</i>
François LEQUEUX Directeur de recherche, ESPCI	<i>Directeur de thèse</i>

Remerciements

Je remercie en premier lieu mon directeur de thèse et mentor Pascal Panizza, qui avant même de me proposer de le suivre dans sa nouvelle aventure dans le Béarn pour faire une thèse avec lui, m'avait déjà permis de réaliser dans son équipe à Rennes mes deux premiers stages de recherche. Ces derniers m'avaient déjà fortement donné envie de continuer -au moins un peu- dans cette voie. Je n'oublie pas à ce propos tout ce que m'a appris à mes débuts pendant ces stages Laurent Courbin, que je remercie beaucoup également.

Merci ensuite à mon directeur de thèse François Lequeux, qui allie une gentillesse et un esprit hors du commun qui n'ont cessé de m'impressionner .

Merci à ma troisième encadrante de thèse, Alexandra Klimenko, qui en plus d'être la boss que tout le monde rêverait d'avoir, a le don admirable de toujours pousser les autres à mener leurs raisonnements jusqu'au bout et à interroger leurs hypothèses, grâce à ses questions sans concession. Merci évidemment à son compère Maurice Bourrel, puits sans fond de connaissances qui a toujours LA suggestion pertinente.

Merci à Nicolas Passade-Boupat de m'avoir accueilli dans son service et à Enric Santanach-Carreras de m'avoir accueilli dans son laboratoire, et bien sûr de m'avoir appris beaucoup de choses sur la microfluidique sous toutes ses formes. Merci à mes collègues Guillaume (désolé pour tous les bavardages!), Guenaelle, Mélanie et Mathias qui m'ont tous appris quelque chose ou aidé durant ce travail. De même, je remercie Arnaud Saint-Jalmes pour l'initiation au Bubble Pressure et Thierry Colin pour son aide sur la modélisation numérique.

Merci beaucoup à mes stagiaires Vivaswan et Xiaochuan, et à Alexia, pour tout le travail qu'ils ont accompli et pour leur sympathie. C'est toujours très enrichissant de rencontrer des gens venant d'horizons différents.

Merci Quan, Duala, Nathalie, Andrei (et bientôt Thomas), mes collègues thésards, d'avoir chacun partagé un bout de cette aventure avec moi. Bonne chance pour la suite!

Pour remonter plus loin, merci aux professeurs qui m'ont donné ou ont entretenu chez moi le

goût de la physique et de la chimie : M. Weber, M. Dubillard, M. Nouet,...

Merci à ma famille, notamment à mes parents et à mon parrain Pascal pour s'être toujours intéressé à tout ce que j'entreprenais, et pour m'avoir soutenu. Et bien sûr les frères et soeur !

Pour finir, merci à ma moitié Mathilde, de partager ma vie.

Résumé

L'injection de mousse en milieu poreux est une technique très prometteuse pour de nombreuses applications comme le stockage de dioxyde de carbone, la dépollution des sols ou la récupération assistée du pétrole. L'écoulement de cette mousse en milieu confiné met en jeu différents processus de formation ou de destruction des bulles qui la composent. La compréhension des mécanismes physiques de ces processus est nécessaire à l'amélioration du procédé, notamment au travers de l'optimisation de la formulation de la phase liquide.

Notre approche consiste à découpler ces différents phénomènes, grâce à des dispositifs modèles d'écoulement à deux dimensions, à l'échelle de la micro- ou milli-fluidique. Leur transparence nous permet de visualiser la structure de la mousse en écoulement et de faire le lien avec ses propriétés macroscopiques. Différents tensioactifs et additifs sont systématiquement testés afin d'étudier la capacité de nos dispositifs à les discriminer, et les résultats obtenus sont systématiquement comparés aux résultats obtenus en milieu poreux.

Notre première expérience, qui étudie la formation de bulles lors du passage du co-écoulement gaz/liquide dans un pore microfluidique, met en évidence un phénomène d'hystérèse de formation expliqué par un processus de rétroaction hydrodynamique amorcé par l'écoulement en aval. Nous mettons également en évidence grâce à des simulations numériques l'existence d'une limite à la qualité de la mousse pouvant être formée, liée uniquement à la géométrie du pore. Différents tensioactifs sont étudiés, et ces résultats sont comparés à des mesures à la fois en volume et en milieu poreux à trois dimensions.

Notre seconde expérience étudie l'influence de l'ajout d'un additif sur cette formation, notamment au travers des effets Marangoni que celui-ci génère. Un modèle théorique simple est développé pour prendre en compte ces effets.

Nous décrivons enfin un montage de millifluidique permettant d'observer et d'étudier la destruction de mousse par coalescence de bulles. Nous montrons que les résultats diffèrent drastiquement en fonction des tensioactifs et additifs utilisés.

Mots clés : Mousse, écoulement, milieu poreux, microfluidique, millifluidique, hystérèse, instabilité hydrodynamique

Abstract

Foam injection into porous media is a highly promising technique for a wide range of applications, including carbon dioxide storage, soil remediation, and enhanced oil recovery. The flow of this foam in a confined environment brings into play different processes of formation or destruction of the bubbles of which it is composed. Understanding the physical mechanisms of these processes is essential to improve this technique, in particular by optimizing the formulation of the liquid phase.

Our approach is to decouple these different phenomena, using two-dimensional flow model devices, at the micro- or milli-fluidic scale. Their transparency allows us to visualize the structure of the flowing foam and to relate it to its macroscopic properties. Various surfactants and additives are systematically tested to investigate the ability of our devices to screen them, and the results obtained are systematically compared with those obtained in porous media.

Our first experiment, which studies the formation of bubbles during the passage of a gas/liquid co-flow in a microfluidic pore, highlights a formation hysteresis phenomenon explained by a hydrodynamic feedback process initiated by the downstream flow. Using numerical simulations, we also demonstrate the existence of a limit to the quality of foam that can be formed, linked solely to the pore geometry. Different surfactants are investigated, and these results are compared with measurements both in volume and in three-dimensional porous media.

Our second experiment studies the influence of an additive on this formation, in particular through the Marangoni effect it generates. A simple theoretical model is developed to account for these effects.

Finally, we describe a millifluidic setup for observing and studying foam destruction by bubble coalescence. We show that the results vary drastically depending on the surfactants and additives used.

Keywords : Foam, flow, porous medium, microfluidic, millifluidic, hysteresis, hydrodynamic instability

Table des matières

Remerciements	i
Résumé	iii
Abstract	v
Table des matières	vi
Liste des figures	x
Acronymes et anglicismes	xviii
1 Introduction générale	1
1 Introduction à l'écoulement de mousse en milieu confiné	2
1.1 Les milieux poreux et l'industrie	2
1.2 Avantages de l'utilisation d'une mousse en milieu poreux	2
1.3 Structure microscopique de la mousse en milieu poreux	4
1.4 Mécanismes de formation et de destruction de mousse en milieu poreux	5
2 Problématique de la thèse - explication de notre approche	9
2 Étude microfluidique de la formation de mousse à travers un pore unique	12
1 Introduction	14
2 Expérience avec un tensioactif classique	15
2.1 Aspects expérimentaux	15
2.1.1 Déroulement de l'expérience	16
2.1.2 Analyse du régime de production de mousse - variation de géométrie	20
2.1.3 Analyse du régime de production de mousse - variation de pression	24
2.2 Modèle et analyse numérique	26
2.2.1 Description du modèle	26
2.2.2 Analyse des résultats numériques et comparaison avec les expériences en régime jet	30
2.2.3 Limite géométrique du débit fractionnaire de gaz	32
2.2.4 Explication du phénomène de bistabilité - réaction hydrodynamique	35
2.2.5 Pertinence du modèle pour l'étude de l'écoulement de mousse en milieu poreux	38
2.3 Conclusion	40

3	Étude de l'influence de l'ajout d'un additif anti-mousse sur le cycle d'hystérèse . . .	41
3.1	Aspects expérimentaux	41
3.2	Résultats et analyses	42
4	Étude de l'influence du changement de tensioactif	45
4.1	Aspects expérimentaux	45
4.2	Résultats et analyses	47
5	Comparaison des tensioactifs en volume et en milieu poreux modèle	49
5.1	Moussabilité en volume	49
5.2	Milieu poreux modèle	51
6	Résumé et conclusion du chapitre	56
3	Instabilité due à un effet Marangoni d'un jet de gaz confiné dans un canal microfluidique	58
1	Aspects expérimentaux	59
1.1	Motivation	59
1.2	Matériel et méthode	59
1.2.1	Dispositif microfluidique	59
1.2.2	Solutions de butanol	60
1.3	Résultats et analyse	64
1.3.1	Expérience avec et sans butanol	64
1.3.2	Variation de la quantité de butanol	70
2	Modélisation théorique	74
2.1	Explication qualitative	75
2.2	Modèle de l'instabilité	79
2.2.1	Hypothèses	79
2.2.2	Analyse linéaire	82
2.3	Analyse du modèle, comparaison avec les expériences	87
2.3.1	Analyse du modèle	87
2.3.2	Comparaison avec l'expérience utilisant la solution contenant 7% de butanol	91
2.3.3	Comparaison aux expériences avec des solutions contenant différents % de butanol	93
3	Résumé et conclusion du chapitre	96
4	Étude millifluidique de la stabilité d'une mousse et criblage de tensioactifs	97
1	Introduction	98
2	Aspects expérimentaux	98
2.1	Matériel et méthode	98
2.2	Échec du premier montage	100
2.3	Résultats et analyses	101
2.3.1	Expériences avec la solution T0	101
2.3.2	Influence de l'ajout de butanol à la phase liquide	110
2.3.3	Comparaison entre différents tensioactifs	118
3	Résumé et conclusion du chapitre	123
Annexes		126
1	Annexe : Modèle de l'instabilité avec champ de vitesse bidirectionnel	126
2	Annexe : Article publié dans Physics of Fluids	129
Conclusion générale et perspectives		141

1	Conclusions de l'étude	141
2	Ouverture et perspectives	143
	Liste des publications	145
	Bibliographie	146

Liste des figures

1.1	Illustration du phénomène de blocage de bulles (en bleu) et de diversion de l'écoulement (flèches) vers des zones de plus faibles perméabilités. Les pores sont représentés en blanc et le solide en noir.	3
1.2	Illustration du phénomène de digitation visqueuse (adapté des simulations numériques de [2]).	3
1.3	Évolution de la viscosité apparente d'une mousse injectée dans un milieu poreux en fonction de son débit fractionnaire de gaz (adapté de [9]). Cette courbe présente un maximum de viscosité pour un débit fractionnaire critique appelée f_g^*	4
1.4	Illustration d'une mousse dans un milieu poreux présentant une phase gazeuse continue (adapté de [11]).	5
1.5	Illustration d'une mousse dans un milieu poreux présentant une phase gazeuse discontinue, de texture grossière (gauche) ou fine (droite) (adapté de [11]).	5
1.6	Illustrations des trois principaux mécanismes de formation d'une bulle en milieu poreux (adapté de [14]).	6
1.7	Illustrations du profil d'un pore dans un milieu poreux (adapté de [16]).	7
1.8	Schéma représentant l'équilibre local des pressions dans un film (adapté de [21]).	7
1.9	Changement de la pression capillaire dans le cas d'un débit fractionnaire de gaz faible (haut) ou élevé (bas) (tiré de [5]).	8
1.10	Évolution de la pression capillaire avec le débit fractionnaire de gaz injecté dans un milieu poreux. Une fois P_c^* atteinte, la coalescence commence à survenir et la mousse devient plus grossière (tiré de [22]).	9
2.1	Formation de bulles de différentes tailles ou de jets, selon les paramètres d'injection.	14
2.2	Représentation extrêmement schématique de l'analyse de stabilité d'un jet de gaz $2D$ ou $3D$. R et r sont les deux rayons de courbure de ce jet (tiré de [31]).	15
2.3	Schéma $2D$ vu du dessus de la puce microfluidique, et définition des paramètres d'injection et des paramètres géométriques : débit de liquide Q_w et de gaz Q_g , pression du gaz à l'entrée P_g et à la sortie P_0 , perte de charge ΔP mesurée sur une longueur L_p , longueur L_m et largeur W_m du canal principal, longueur L_c et largeur W_c de la constriction, largeur du jet dans le canal principal d_m et dans la constriction d_c , et volume des bulles Ω	15
2.4	Pour la puce avec $W_c = 200 \mu m$, variation de perte de charge (gauche) et de débit de gaz (droite) mesurés sur une longueur $L_p = 1.7 cm$ du canal principal, en maintenant la pression $P_g = 1.3 bar$ fixée et en augmentant (rose) ou diminuant (bleu) le débit de liquide Q_w	17

2.5	Pour la puce avec $W_c = 200 \mu m$ et $P_g = 1.3$ bar, images du co-écoulement dans la constriction pour différentes valeurs de débit de liquide Q_w (en $\mu l/min$), en le diminuant (bleu) ou l'augmentant (rose).	17
2.6	Variation de perte de charge mesurée sur une longueur $L_p = 1.7$ cm du canal principal, en augmentant (rose) ou diminuant (bleu) le débit d'eau Q_w , pour l'expérience à $W_c = 250 \mu m$ et 1.3 bar (gauche) et l'expérience à $W_c = 200 \mu m$ et $P_g = 1.4$ bar (droite).	18
2.7	Variation du rapport de la largeur du jet sur la hauteur du canal d_m ou c/H dans le canal principal (orange) et dans la constriction (violet) avec Q_w , pour l'expérience avec $P_g = 1.3$ bar et la constriction de largeur $W_c = 200 \mu m$.	19
2.8	Variation du rapport de la largeur du jet dans la constriction sur la hauteur du canal $\frac{d_c}{H}$ avec Q_w , pour les 3 expériences : $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 200 \mu m$ (■), $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 250 \mu m$ (■), et $P_g = 1.4$ et $W_c = 200 \mu m$ (●).	20
2.9	Images de la mousse générée pour différents Q_w à pression $P_g = 1.3$ bar fixée, pour différentes largeurs de constriction (le reste du design étant strictement identique) $W_c = 100, 200$ ou $250 \mu m$. L'absence d'image pour un Q_w faible indique que le régime jet est atteint.	21
2.10	Images de la mousse générée pour différents f_g à pression $P_g = 1.3$ bar fixée, pour différentes tailles de constriction (le reste du design étant strictement identique) $W_c = 100, 200$ ou $250 \mu m$. L'absence d'image pour un Q_w faible indique que le régime jet est atteint (fond gris).	22
2.11	Évolution du volume des bulles avec Q_w (gauche) ou f_g (droite) pour les expériences avec $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 100$ (■), 200 (■) ou 250 (■) μm .	23
2.12	Évolution de la fréquence de production des bulles avec Q_w pour les expériences avec $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 100$ (■), 200 (■) ou 250 (■) μm .	23
2.13	Images de la mousse générée pour différents Q_w à une pression $P_g = 1.2, 1.3$ ou 1.4 bar, pour une largeur de constriction de $W_c = 200 \mu m$. L'absence d'image pour un Q_w faible indique que le régime jet est atteint dans cette gamme de débits.	24
2.14	Images de la mousse générée pour différents f_g à une pression $P_g = 1.2, 1.3$ ou 1.4 bar, pour une largeur de constriction de $W_c = 200 \mu m$. L'absence d'image pour un Q_w faible indique que le régime jet est atteint dans cette gamme de débits (fond gris).	25
2.15	Évolution du volume des bulles avec Q_w (gauche) ou f_g (droite) pour les expériences avec $W_c = 200 \mu m$ et pour $P_g = 1.2$ (▲), 1.3 (■) ou 1.4 (●) bar.	25
2.16	Évolution de la fréquence de production des bulles avec Q_w pour les expériences avec $W_c = 200 \mu m$ et pour $P_g = 1.2$ (▲), 1.3 (■) ou 1.4 (●) bar.	26
2.17	Haut : schéma en perspective du jet de gaz dans le canal, dans le cas 3D (gauche) et 2D (droite). Bas : schéma du profil du jet de gaz dans le plan (y, z) . \vec{e}_x est la direction de l'écoulement.	27
2.18	Gauche : variation de $\frac{d}{H}$ avec Q_w , calculée numériquement en utilisant une hauteur $H = 76 \mu m$ et une largeur du canal $W_c = 200 \mu m$, mais différentes valeurs de Q_g : 200 (○), 500 (○), 1000 (○) et 2000 (○) $\mu L/min$. Droite : variation de $\frac{d}{H}$ avec $q = \frac{Q_g}{Q_w}$, calculée numériquement en utilisant une hauteur $H = 76 \mu m$ et une largeur du canal $W_c = 200 \mu m$, avec les mêmes symboles qu'à gauche. q^{theo} est la valeur de q pour laquelle $d = H$.	30

2.19	Variation de $\frac{d}{H}$ avec $q = \frac{Q_g}{Q_w}$, calculée numériquement (lignes continues) en utilisant la même hauteur $H = 76 \mu m$, mais différentes valeurs de largeur du canal W_c : 100 (violet), 150 (rose), 200 (rouge) ou 250 (vert) μm . Valeurs obtenues numériquement pour les expériences avec $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 200 \mu m$ (■), $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 250 \mu m$ (■), et $P_g = 1.4$ bar et $W_c = 200 \mu m$ (●). Les lignes s'arrêtent au point correspondant à $d = W_c$	31
2.20	Variation de f_g^{theo} avec le rapport $\frac{W_c}{H}$ caractérisant le rapport d'aspect du canal rectangulaire de production de bulles, calculé pour $H = 76 \mu m$	33
2.21	Gauche : variation de f_g lors de la phase à Q_w décroissant, pour 3 expériences avec le même $P_g = 1.3$ bar mais 3 différents W_c : 100 μm (■), 200 μm (■) et 250 μm (■). Droite : variation de f_g lors de la phase à Q_w décroissant, pour 3 expériences avec le même $W_c = 200 \mu m$ mais 3 différents P_g : 1.2 bar (▲), 1.3 bar (■) et 1.4 bar (●).	34
2.22	Variation de f_g^{theo} (ligne noire) et f_g^* mesurée pour nos 5 expériences (en utilisant les mêmes couleurs et symboles que pour la figure 2.21) avec le rapport $\frac{W_c}{H}$ caractérisant le rapport d'aspect du canal rectangulaire de production de bulles.	35
2.23	Gauche : variation de $\frac{d}{H}$ avec $\frac{dP}{dx}$, calculée numériquement en utilisant la même hauteur $H = 76 \mu m$ et largeur du canal $W_c = 200 \mu m$, mais différentes valeurs de Q_g : 200 (○), 500 (○), 1000 (○) et 2000 (○) $\mu L/min$. Droite : variation de $\frac{d}{H}$ avec $(\frac{dP}{dx}) \frac{H^4}{\eta_w Q_w}$, calculée numériquement en utilisant la même hauteur $H = 76 \mu m$ et largeur du canal $W_c = 200 \mu m$, et les même Q_g que la figure de gauche. α^{theo} est la valeur pour laquelle $d = H$	36
2.24	Variation de $\frac{d}{H}$ avec $(\frac{dP}{dx}) \frac{H^4}{\eta_w Q_w}$, calculée numériquement en utilisant la même hauteur $H = 76 \mu m$, mais différentes valeurs pour la largeur du canal W_c : 100 (violet), 150 (rose), 200 (rouge) ou 250 (vert) μm	37
2.25	Gauche : évolution de la viscosité effective à différents f_g dans la phase à Q_w décroissant (bleu) ou croissant (rose) pour l'expérience avec $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 200 \mu m$. Droite : évolution de la viscosité effective à différents f_g dans la phase à Q_w décroissant pour 3 expériences avec la même valeur de $P_g = 1.3$ bar mais 3 différentes valeurs de W_c : 100 μm (■), 200 μm (■) et 250 μm (■).	39
2.26	Pour l'expérience conduite avec 0% de butanol, variation de pression mesurée sur une longueur $L_p = 1.7 cm$ du canal principal, en maintenant la pression $P_g = 1.3$ bar fixée et en augmentant (rose) ou diminuant (bleu) le débit de liquide Q_w	42
2.27	Pour l'expérience conduite avec 7% de butanol, variation de pression mesurée sur une longueur $L_p = 1.7 cm$ du canal principal, en maintenant la pression $P_g = 1.3$ bar fixée et en augmentant (rose) ou diminuant (bleu) le débit de liquide Q_w	43
2.28	Comparaison de l'allure des bulles à différents Q_w pour différentes expériences. N.B. : la fréquence de production des bulles et leur vitesse sont environ deux fois plus élevées dans l'expérience avec 7% de butanol que dans celle avec 0% de butanol.	44
2.29	Présentation des différents tensioactifs utilisés	46
2.30	Variation de perte de charge mesurée sur une longueur $L_p = 1.7 cm$ du canal principal, en maintenant la pression $P_g = 1.3$ bar fixée et en augmentant (rose) ou diminuant (bleu) le débit de liquide Q_w , pour l'expérience conduite avec des solutions d'AOS C1 (gauche), d'AOS C5 (milieu) et d'IOS S2 (droite).	47
2.31	Variation du rapport de la largeur du jet dans la constriction sur la hauteur du canal $\frac{d_c}{H}$ avec Q_w , pour les expériences avec AOS C1 (□), AOS C5 (triangle vide) et IOS S2 (triangle plein).	48
2.32	Photographies du montage d'étude de moussabilité en volume : carrousel de mous-sage (gauche) et suivi de la hauteur de mousse (droite).	49

2.33	Photographies de la hauteur de mousse générée à $t = 0$ pour des solutions aqueuses préparées avec les différents tensioactifs : <i>Tween 20</i> , IOS S2 (P S2), AOS C5 (P C5) et AOS C1 (P C1E).	50
2.34	Résultats du test de moussage.	50
2.35	Photographies du slim-tube utilisé (haut), photographie des billes utilisées (gauche) et détail de leurs caractéristiques (droite).	52
2.36	Schéma du montage d'étude en milieu poreux 3D modèle.	52
2.37	Variation de la viscosité apparente générée par la mousse avec f_g dans la phase à Q_w décroissant (bleu) et croissant (rose) pour l'expérience dans ST20 avec <i>Tween 20</i> et sans (gauche) ou avec (droite) butanol.	53
2.38	Comparaison de la variation de viscosité apparente générée par la mousse avec f_g dans la phase à Q_w décroissant pour les expériences dans ST20 avec <i>Tween 20</i> à 1% en masse (+) et de l'IOS S2 à 0.25% en masse (Δ).	54
2.39	Comparaison de l'évolution de la viscosité apparente générée par la mousse avec f_g dans la phase à Q_w décroissant pour les expériences avec <i>Tween 20</i> à 1% en masse dans ST1 (\diamond), ST8 (\times) et ST20 (+).	55
2.40	Évolution de la mobilité absolue du gaz avec la perméabilité dans une expérience d'injection de mousse très sèche en milieu poreux (adapté de [22]).	56
3.1	Formule topologique du butan-1-ol	59
3.2	Schéma 2D vu du dessus de la puce microfluidique. Encarts : images du pousse-seringue et du contrôleur de pression utilisés. Encart : vue rapprochée de la jonction.	59
3.3	Évolution de la tension de surface air/solutions eau pure + 10 g/L <i>Tween 20</i> + 1 g/L NaCl + 0 (bleu) ou 6 (noir) % de butanol en fonction de l'âge de l'interface. Les mesures sont effectuées avec l'appareil Tracker (Teclis).	61
3.4	Évolution de la tension de surface air/solutions eau pure + 1g/L NaCl + x% de butanol en fonction du temps. Les mesures sont effectuées avec l'appareil Tracker (Teclis).	61
3.5	Schéma du principe de la méthode de la pression de bulle maximale (selon Krüss, Allemagne)	62
3.6	Évolution de la tension de surface air/solutions d'eau pure + 10 g/L <i>Tween 20</i> + 1 g/L NaCl + 0 % (\blacksquare) et 7 % en masse (\bullet) de butanol sur l'intervalle 1 ms – 2000 ms en utilisant le MBPT. Les valeurs pour un temps inférieur à 10 ms pour la solution à 7 wt % de butanol ne peuvent être obtenues à cause de limitations techniques de l'appareil.	63
3.7	Évolution de la tension de surface de solutions d'eau pure + 10 g/L <i>Tween 20</i> + 1 g/L NaCl + 1 % (\bullet), 3 % (\bullet) ou 7 % (\bullet) en masse de butanol sur l'intervalle 1 ms – 2000 ms en utilisant le MBPT. Les valeurs pour un temps inférieur à 10 ms pour la solution à 7 % en masse de butanol ne peuvent être obtenues à cause de limitations techniques de l'appareil.	64
3.8	A) Images de l'écoulement biphasique observé dans le canal principal pour différentes valeurs de Q_w , pour le liquide sans butanol. La ligne pointillée verticale sépare le domaine d'observation d'un jet de gaz de celui de bulles. B) Variation du rapport largeur de jet d sur hauteur du canal H en fonction de Q_w . La ligne horizontale sépare la zone d'existence d'un jet 2D-confiné de celle d'un jet 3D-non confiné. Encarts : schéma vu en coupe du jet dans le canal principal.	65

3.9	A) Images de l'écoulement biphasique dans le canal principal pour différentes valeurs de Q_w pour le liquide avec butanol. La ligne pointillée verticale sépare le domaine d'observation d'un jet de gaz de celui de bulles. Les cercles verts indiquent les déformations du jet qui se propagent à vitesse constante. B) Variation du rapport largeur de jet $\langle d \rangle$ sur hauteur du canal H en fonction de Q_w . La ligne horizontale sépare la zone d'existence d'un jet $2D$ -confiné de celle d'un jet $3D$ -non confiné. Encarts : schéma vu en coupe du jet dans le canal principal.	66
3.10	Exemple d'utilisation des fonctions du logiciel ImageJ sur une vidéo.	67
3.11	Évolution de l'amplitude d'une déformation, $\Delta d = d_{max} - d_{min}$ en fonction de x (en cm), pour 3 différentes valeurs de Q_w . Encarts : image des déformations du jet observées à différentes positions x le long de la direction de l'écoulement pour $Q_w = 50 \mu L/min$. Les lignes continues sont uniquement des guides visuels.	68
3.12	Variation des valeurs saturées de d_{min} (\bullet), d_{max} (\blacklozenge) et $\Delta d = d_{max} - d_{min}$ (\blacksquare) avec Q_w , mesurées à $x = 1 cm$. Ces grandeurs sont définies sur la figure 3.11, et comme sur celle-ci les couleurs rouge, vert et bleu correspondent respectivement aux mesures effectuées pour $Q_w = 50, 80$ et $110 \mu L/min$. Les lignes continues sont uniquement des guides visuels.	68
3.13	A) Représentation du profil d'épaisseur de liquide $\zeta = \frac{W-d}{2}$ observé le long de la direction x à différents temps t , pour une valeur de $Q_w = 50 \mu L/min$. B) Variations temporelles de la largeur du jet à 4 positions x différentes, pour une valeur de $Q_w = 50 \mu L/min$	69
3.14	Variation en fonction de Q_w de la fréquence de production moyenne f (\blacktriangle) et de la vitesse (\blacksquare) des déformations périodiques en régime permanent. Évolution de la vitesse moyenne du liquide V_ℓ (\square) avec Q_w . Comme sur la figure 3.11, les couleurs rouge, vert et bleu correspondent respectivement aux mesures effectuées pour $Q_w = 50, 80$ et $110 \mu L/min$. Les lignes continues sont uniquement des guides visuels.	70
3.15	Images du jet observé pour différentes valeurs de Q_w et différents pourcentages de butanol ajouté au liquide (0%, 1%, 2% ou 3%). Ces images sont des simples captures d'écran pour les régimes où le jet présente une largeur constante ainsi que pour le régime bulle, mais sont des représentations spatio-temporelles lorsque le jet présente des déformations se propageant.	71
3.16	Images du jet observé pour différentes valeurs de Q_w et différents pourcentages de butanol ajouté au liquide (4%, 5%, 6%). Ces images sont des simples captures d'écran pour les régimes où le jet présente une largeur constante ainsi que pour le régime bulle, mais sont des représentations spatio-temporelles lorsque le jet présente des déformations se propageant.	72
3.17	Variation du rapport largeur de jet d (quand elle est constante) sur hauteur du canal H en fonction de Q_w , pour 4 quantités de butanol différentes : 0% (\bullet), 1% (\bullet), 2% (\bullet) et 3% (\bullet). La ligne horizontale sépare la zone de jet $2D$ -confiné du jet $3D$ -non confiné.	73
3.18	Variation du rapport largeur de jet d (en régime J) sur hauteur du canal H en fonction de Q_w , pour 3 quantités de butanol différentes : 4% (\blacksquare), 5% (\blacksquare) et 6% (\blacksquare). La ligne horizontale sépare la zone de jet $2D$ -confiné du jet $3D$ -non confiné.	73
3.19	Schéma $3D$ d'un jet $2D$ -confiné dans la jonction microfluidique, pour lequel une perturbation de l'épaisseur de la couche liquide à mi-hauteur du canal varie selon x selon $\zeta(x) = \bar{\zeta} + \delta\zeta e^{ikx}$ dans la jonction microfluidique, et définition des paramètres géométriques. Encart : vue en coupe d'une section du canal principal.	74
3.20	Définition des deux rayons de courbure d'un jet $3D$ -non confiné.	75

3.21	Définition des grandeurs de l'état perturbé ou non du jet 3D	76
3.22	Influence du changement de courbure sur la pression et donc sur l'écoulement résultant de liquide. $P_2 > P_1$ d'où l'écoulement de liquide illustré par les flèches.	77
3.23	Schéma du profil de vitesse parabolique dans le cas où $b = 0$ et $b \neq 0$. Dans le premier cas, il n'y a pas de gradient de tension interfaciale à l'interface et donc pas d'effet Marangoni.	80
3.24	Partie haute : équation décrivant les deux termes contribuant à δP . Milieu : représentation des variations selon x à un instant donné de l'interface et de la variation de pression engendrée, ainsi que de l'écoulement de liquide résultant (flèches bleues). Bas : représentation de la variation selon x à un instant donné de la tension de surface et des variations de pression résultantes. Les deux ondes étant en phase, la perturbation peut croître.	86
3.25	$R_e(S)$ en fonction de q pour S_{10} l'onde de densité de tensioactif (pointillés rouges) et S_{20} l'onde capillaire (trait plein) pour des valeurs de $C_m = 10^{-4}$ et $X = 0.4$ (bleu), $C_m = 10^{-2}$ et $X = 0.4$ (orange), $C_m = 10^{-4}$ et $X = 0.01$ (vert).	87
3.26	$R_e(S)$ en fonction de q pour S_+ l'onde de densité de tensioactif (pointillés rouges) et S_- l'onde capillaire (trait bleu plein) pour des valeurs arbitraires de $C_a = 10^{-2}$, $C_m = 10^{-4}$, $X = 0.4$ et $E_g = 0.2$	88
3.27	Diagrammes de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$, calculés numériquement pour $C_m = 4.6 \cdot 10^{-4}$ (ce qui correspond à $\tau = 6 \cdot 10^{-3}$ s) et quatre E_g différents. Les régions représentées en bleu sont les domaines instables et celles représentées en rouge sont les domaines stables.	89
3.28	Diagrammes de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$, calculés numériquement pour $E_g = 1.8$ et quatre valeurs différentes de C_m (et donc de τ). Les régions représentées en bleu sont les domaines instables et celles représentées en rouge sont les domaines stables.	90
3.29	Diagrammes de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$, calculés numériquement pour $C_m = 4.6 \cdot 10^{-4}$ et donc $\tau = 6 \cdot 10^{-3}$ et quatre valeurs différentes de E_g . Les régions représentées en bleu sont les domaines instables et celles représentées en rouge sont les domaines stables. Les points blancs correspondent aux conditions expérimentales de nos observations menées sur la solution contenant 7% de butanol, pour toutes les valeurs de Q_w en régime J (i.e. entre 10 et 140 $\mu L/min$) (voir figure 3.9)	92
3.30	Diagramme dans le plan $[\log(E_g), \log(\tau)]$ calculé numériquement, représentant les zones où les prédictions du modèle sont compatibles (vert) ou incompatibles (violet) avec les résultats expérimentaux obtenus sur la solution contenant 7% de butanol	93
3.31	Diagramme de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$, calculé numériquement pour $E_g = 1.8$ et $C_m = 0.001052$ (donc $\tau = 2.10^{-3}$). Les régions représentées en bleu sont les domaines instables et celles représentées en rouge sont les domaines stables. Les points correspondent aux conditions expérimentales de nos observations avec la solution contenant 4% de butanol, en noir pour les valeurs en régime J et en blanc pour les valeurs en régime P (voir Fig.3.16)	94
3.32	Diagramme dans le plan $[\log(E_g), \log(\tau)]$ calculé numériquement, représentant les zones où les prédictions du modèle sont compatibles (vert) ou incompatibles (violet) avec les résultats expérimentaux obtenus avec une solution contenant 4% de butanol.	95
3.33	Valeur de la longueur d'onde du mode le plus instable prévue par le modèle (■) et valeur expérimentale de la longueur d'onde observée (●).	96

4.1	Schéma 2D du montage de millifluidique. La position le long du tube est notée x . Cet axe a son origine au niveau de la jonction en T.	99
4.2	Descriptions des différentes solutions utilisées.	99
4.3	Évolution temporelle du débit de gaz Q_g lors d'une expérience test. t représente le temps. Les oscillations observées entre 2 et 3 h sont observées uniquement en présence des flacons tampons dans le montage, alors que les valeurs du débit de liquide et de la surpression de gaz imposés sont maintenus à des valeurs fixes. . .	101
4.4	Images de la mousse stationnaire observée à différentes positions x le long de l'écoulement, pour différents débits de liquide Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0.	101
4.5	Évolution avec la position le long du tube, x , de la vitesse moyenne V des bulles, de la surface moyenne S des bulles, de la fréquence moyenne de passage f des bulles et du débit fractionnaire local de gaz f_g de la mousse, pour l'expérience utilisant la solution T0 et pour l'état stationnaire à $Q_w = 3 \text{ mL/min}$ (●) et $Q_w = 1.2 \text{ mL/min}$ (■).	102
4.6	Évolution du débit de gaz injecté Q_g et du débit fractionnaire de gaz injecté f_g avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0.	104
4.7	Gauche : évolution de la vitesse moyenne des bulles à $x = 0.8 \text{ m}$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0. Droite : évolution de la surface moyenne des bulles (axe en échelle logarithmique) à $x = 0.8 \text{ m}$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0.	105
4.8	Évolution de la fréquence moyenne de génération (mesurée à $x = 0.8 \text{ m}$) des bulles avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0.	105
4.9	Distributions des surfaces de bulles pour les états stationnaires à $Q_w = 3 \text{ mL/min}$ et à $Q_w = 1.2 \text{ mL/min}$, au début ($x = 0.8 \text{ m}$) et à la fin ($x = 4.8 \text{ m}$) du tube, pour l'expérience utilisant la solution T0.	106
4.10	Distribution des surfaces des bulles pour les états stationnaires à $Q_w = 0.9 \text{ mL/min}$ et à $Q_w = 0.4 \text{ mL/min}$, au début ($x = 0.8 \text{ m}$) et à la fin ($x = 4.8 \text{ m}$) du tube, pour l'expérience utilisant la solution T0.	107
4.11	Évolution du rapport entre le nombre de bulles N détectées à différentes positions le long du tube et le nombre N_0 de bulles détectées au début ($x = 0.8 \text{ m}$) du tube, pour $Q_w = 3$ (noir), 0.9 (bleu), 0.4 (vert) et 0.2 (rouge) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T0.	108
4.12	Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles à différentes positions x le long du tube, pour $Q_w = 3$ (noir), 1.2 (bleu), 1 (vert), 0.6 (rose) et 0.2 (rouge) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T0.	109
4.13	Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles au début ($x = 0.8 \text{ m}$) du tube avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0.	110
4.14	Évolution du débit de gaz injecté Q_g et du débit fractionnaire de gaz injecté f_g avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T1.	111
4.15	Évolution du débit de gaz injecté Q_g et du débit fractionnaire de gaz injecté f_g avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T3.	112
4.16	Gauche : Évolution de la vitesse moyenne des bulles à $x = 0.8 \text{ m}$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T1. Droite : évolution de la surface moyenne des bulles (axe en échelle logarithmique) à $x = 0.8 \text{ m}$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T1.	112
4.17	Gauche : Évolution de la vitesse moyenne des bulles à $x = 0.8 \text{ m}$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T3. Droite : évolution de la surface moyenne des bulles à $x = 0.8 \text{ m}$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T3.	113

4.18	Évolution de la fréquence moyenne de génération (mesurée à $x = 0.8 m$) des bulles avec Q_w , pour les expériences utilisant la solution T1 (gauche) et T3 (droite). . .	113
4.19	Évolution du rapport entre le nombre N de bulles détectées à la position x le long du tube et le nombre N_0 de bulles détectées au début ($x = 0.8 m$) de celui-ci, pour $Q_w = 4$ (noir), 1.5 (bleu), 1 (vert), 0.4 (rouge) et 0.3 (violet) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T1.	114
4.20	Évolution du rapport entre le nombre N de bulles détectées à la position x le long du tube et le nombre N_0 de bulles détectées au début ($x = 0.8 m$) du tube, pour $Q_w = 1.5$ (noir), 0.5 (bleu), 0.25 (rouge) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T3.	115
4.21	Gauche : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles à différentes positions x le long du tube, pour $Q_w = 3$ (noir), 2 (bleu), 1.6 (vert), 0.5 (rose) et 0.3 (rouge) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T1. Droite : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles au début ($x = 0.8 m$) du tube avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T1.	116
4.22	Gauche : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles à différentes positions x le long du tube, pour $Q_w = 9$ (noir), 5.5 (bleu), 4 (vert), 2.5 (rose), 0.5 (rouge) et 0.25 (violet) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T3. Droite : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles au début ($x = 0.8 m$) du tube avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T3. . .	117
4.23	Évolution du débit de gaz injecté Q_q et du débit fractionnaire de gaz injecté f_g avec Q_w , pour les expériences utilisant la solution avec 0 (rose), 0.5 (cyan), 1 (bleu), 1.5 (vert), 2 (rouge) et 3 (noir) % de butanol.	118
4.24	Évolution du débit de gaz injecté Q_q et du débit fractionnaire de gaz injecté f_g avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution II.	119
4.25	Évolution du débit de gaz injecté Q_q et du débit fractionnaire de gaz injecté à l'entrée du tube f_g avec Q_w , pour les expériences menées avec les solutions T0 (bleu), T3 (noir) et II (vert).	120
4.26	Gauche : Évolution de la vitesse moyenne des bulles à $x = 0.8 m$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0. Droite : évolution de la surface moyenne des bulles (axe en échelle logarithmique) à $x = 0.8 m$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution II.	120
4.27	Évolution de la fréquence moyenne de génération (mesurée à $x = 0.8 m$) des bulles avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution II.	121
4.28	Évolution du rapport entre le nombre N de bulles détectées au long du tube et le nombre N_0 de bulles détectées au début ($x = 0.8 m$) du tube, pour $Q_w = 5$ (noir), 0.5 (bleu), 0.1 (rouge) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution II.	122
4.29	Gauche : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles à différentes positions x le long du tube, pour $Q_w = 5$ (noir), 2.5 (bleu), 1.5 (vert), 1 (rose) et 0.5 (rouge) et 0.1 (violet) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution II. Droite : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles au début ($x = 0.8 m$) du tube avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution II.	123
4.30	Valeurs de f_{pre} (●), f_{post} (○) et f_{coal} (■) pour nos 4 expériences.	124
5.31	Comparaison entre les modèles uni- (bleu) et bi-directionnel (rouge) pour des valeurs arbitraires de $C_a = 7.10^{-3}$, $C_m = 10^{-4}$, $E_g = 0.88$ et $X = 0.01$	129
6.32	Photographie de différents dispositifs de sollicitation de lamelles à l'échelle millifluidique. Les flèches bleues indiquent le sens de l'écoulement.	144

Acronymes et anglicismes

CMC *Concentration Micellaire Critique*

EOR *Enhanced Oil Recovery* (Récupération assistée du pétrole)

MBPT *Maximum Bubble Pressure Tensiometer* (Tensiomètre à pression de bulle maximale)

Chapitre 1

Introduction générale

Objectifs

Dans ce premier chapitre d'introduction, nous résumons rapidement les notions nécessaires à l'étude des écoulements de mousse en milieu poreux, et nous détaillons l'approche que nous avons retenue pour ce travail et les raisons de celle-ci.

Sommaire

1	Introduction à l'écoulement de mousse en milieu confiné	2
1.1	Les milieux poreux et l'industrie	2
1.2	Avantages de l'utilisation d'une mousse en milieu poreux	2
1.3	Structure microscopique de la mousse en milieu poreux	4
1.4	Mécanismes de formation et de destruction de mousse en milieu poreux	5
2	Problématique de la thèse - explication de notre approche	9

1 Introduction à l'écoulement de mousse en milieu confiné

1.1 Les milieux poreux et l'industrie

Un milieu poreux est un matériau composé à la fois de zones solides et de zones vides, appelées pores. Il est caractérisé par sa porosité qui est la proportion de son volume total occupée par ces pores (à une échelle mésoscopique). Les milieux poreux dans lesquels sont injecté des mousses sont principalement rocheux, et peuvent présenter des porosités variant entre 0.1% pour du granite à 40% pour du sable ou du gravier. Une autre grandeur utilisée pour les décrire est la perméabilité κ , qui quantifie la capacité d'un milieu poreux à laisser s'écouler un fluide. Cette dernière vaut $10^{-3} \text{ cm}^2 = 10^5 \text{ Darcy}$ pour du gravier et $10^{-15} \text{ cm}^2 = 10^{-7} \text{ Darcy}$ pour du granite [1].

L'injection de mousse dans un milieu poreux est une technique utilisée principalement dans trois cas. Le premier cas est la récupération assistée du pétrole (EOR en anglais). En effet, la proportion de pétrole récupéré initialement, simplement sous l'effet de la pression régnant dans le milieu lors d'un forage, est de l'ordre de 20 à 40% [2]. L'augmentation de la pression dans le milieu par injection d'eau ne permet pas de dépasser 70 % de récupération. L'enjeu des techniques d'EOR, comme l'injection de solution de polymères ou de tensioactifs, est d'augmenter cette valeur. Le second cas d'utilisation de l'injection de mousse dans un milieu poreux est la dépollution (ou remédiation) de sols contaminés, par exemple par des métaux ou des composés radioactifs [3]. Le troisième cas est le stockage de CO_2 dans des formations géologiques [4].

1.2 Avantages de l'utilisation d'une mousse en milieu poreux

Voyons maintenant quels avantages présente l'injection d'une mousse dans un milieu poreux, comparé à l'injection d'un fluide (liquide ou gaz) simple.

Le premier problème qui se pose lors de l'injection d'un fluide dans un milieu poreux est que ces milieux poreux ne présentent pas toujours une perméabilité uniforme : ils sont en réalité constitués de zones plus ou moins perméables (avec parfois même des fractures). Or, un fluide simple va avoir tendance à s'écouler préférentiellement dans les zones les plus perméables (on parle alors de chemins préférentiels [5]), ce qui ne va pas permettre de balayer tout le milieu poreux. Ce n'est pas le cas d'une mousse, qui a la propriété de bloquer les zones de fortes perméabilités [6], et ainsi de favoriser l'exploration des chemins de faibles perméabilités (voir figure 1.1).

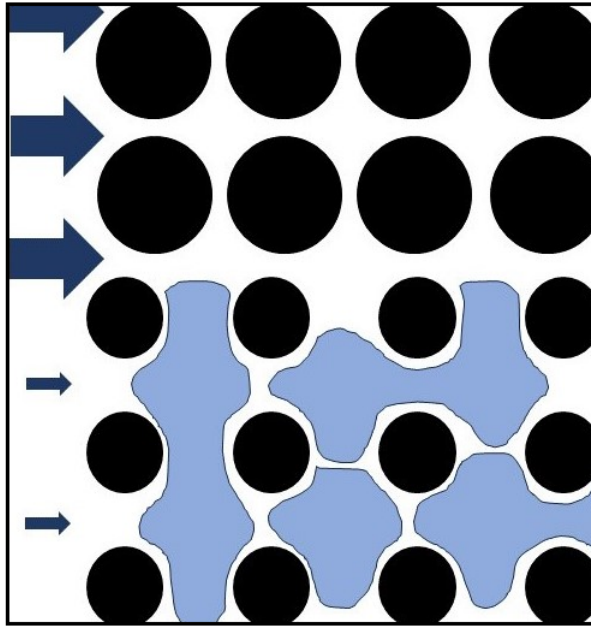


FIGURE 1.1 – Illustration du phénomène de blocage de bulles (en bleu) et de diversion de l'écoulement (flèches) vers des zones de plus faibles perméabilités. Les pores sont représentés en blanc et le solide en noir.

Le second problème rencontré lorsque l'on souhaite déplacer du pétrole piégé dans un pore avec un fluide simple de faible viscosité est le phénomène parasite de digitation visqueuse (voir figure 1.2). Ce phénomène provient d'une instabilité de Saffman-Taylor [7] et a comme conséquence néfaste de diminuer le taux de récupération du pétrole.

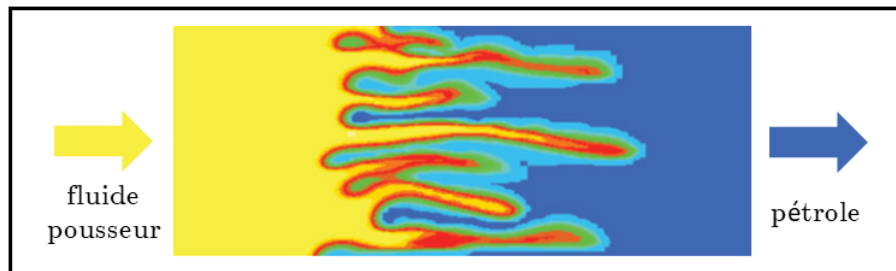


FIGURE 1.2 – Illustration du phénomène de digitation visqueuse (adapté des simulations numériques de [2]).

L'utilisation d'une mousse comme fluide pousseur permet de s'affranchir de ce problème, car celle-ci possède une viscosité dite viscosité apparente bien plus élevée que celle d'un fluide simple, ce qui permet de supprimer l'apparition de cette instabilité.

La viscosité apparente - ou effective- μ_{app} d'une mousse en écoulement peut être évaluée en mesurant la perte de charge générée par celui-ci. En effet, elle est liée au rapport entre la mesure de cette perte de charge ΔP_{mousse} générée par son écoulement et la mesure de la perte de charge ΔP_{eau} générée par un écoulement d'eau : $\mu_{app} = \mu_{eau} \frac{\Delta P_{mousse}}{\Delta P_{eau}}$ [8].

Cette viscosité apparente évolue en fonction de la proportion de gaz et de liquide qui compose la mousse en écoulement (cf. figure 1.3). Cette composition est caractérisée, à partir du débit de gaz injecté Q_g et de liquide injecté Q_w , par le débit fractionnaire de gaz $f_g = \frac{Q_g}{Q_g + Q_w}$.

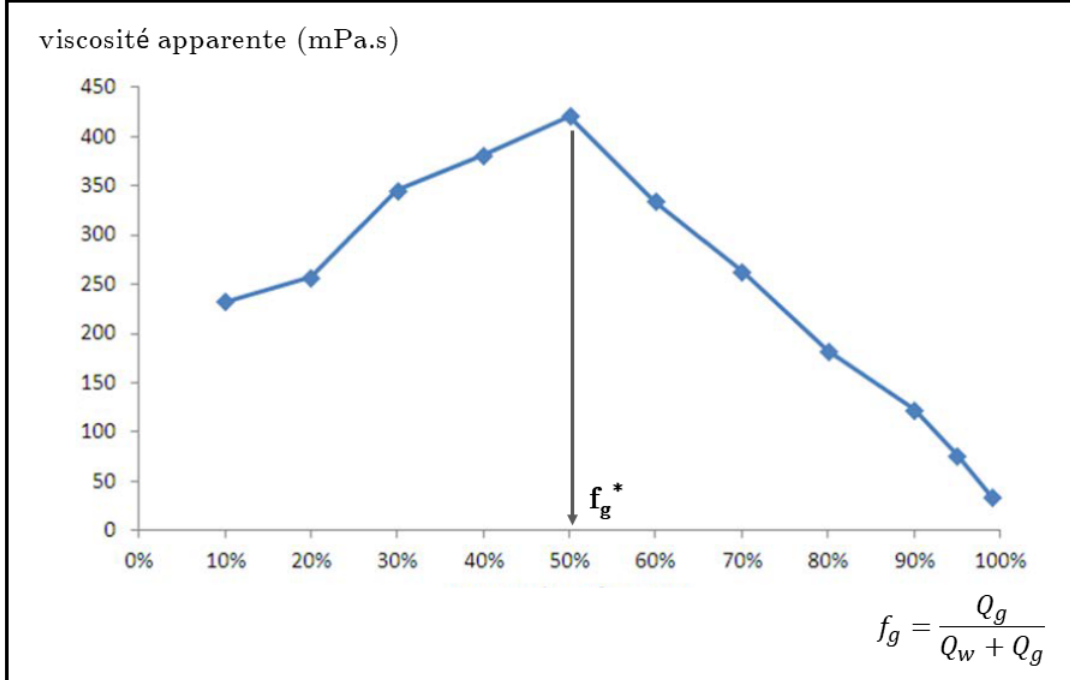


FIGURE 1.3 – Évolution de la viscosité apparente d'une mousse injectée dans un milieu poreux en fonction de son débit fractionnaire de gaz (adapté de [9]). Cette courbe présente un maximum de viscosité pour un débit fractionnaire critique appelée f_g^* .

La viscosité de la mousse en écoulement est de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de fois celle de l'eau (cf. figure 1.3). De plus, elle est d'abord croissante avec le débit fractionnaire de gaz injecté f_g , avant d'atteindre un maximum à $f_g = f_g^*$ et de diminuer fortement par la suite. Ce type de comportement lors de l'injection de mousse en milieu poreux est typique et est très souvent observé [9, 10].

Notons que le principal avantage d'une mousse étant qu'elle est en grande partie composée de gaz (le plus souvent de l'air -donc peu coûteux- pour l'EOR, et du CO_2 dans le cas du stockage de carbone), il est intéressant que la valeur de f_g^* soit la plus élevée possible.

1.3 Structure microscopique de la mousse en milieu poreux

La valeur macroscopique de la viscosité apparente d'une mousse en écoulement est directement reliée à sa structure microscopique, et notamment au caractère continu ou discontinu de la phase gazeuse [11]. En effet, la présence d'un chemin continu de gaz à une échelle macroscopique va lui permettre de s'écouler sans mettre en mouvement les bulles présentes ailleurs dans le milieu poreux, la viscosité apparente de la mousse dans le milieu poreux macroscopique va donc être faible. L'apparition de tels chemins continus peut donc expliquer la chute de viscosité apparente

observée pour des valeurs de f_g supérieures à f_g^* .

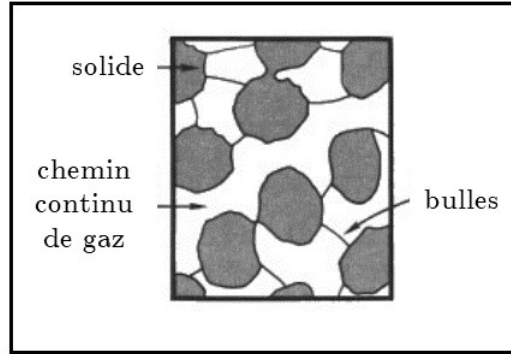


FIGURE 1.4 – Illustration d'une mousse dans un milieu poreux présentant une phase gazeuse continue (adapté de [11]).

Dans le cas où la phase gazeuse est discontinue, c'est à dire constituée uniquement de bulles - et donc, quand celles-ci ont une taille supérieure à celle des pores, constituée de lamelles de liquide séparant ces bulles-, deux textures de mousses sont alors communément distinguées : la mousse de texture dite "grossière" (coarse en anglais) et la mousse de texture dite "fine".

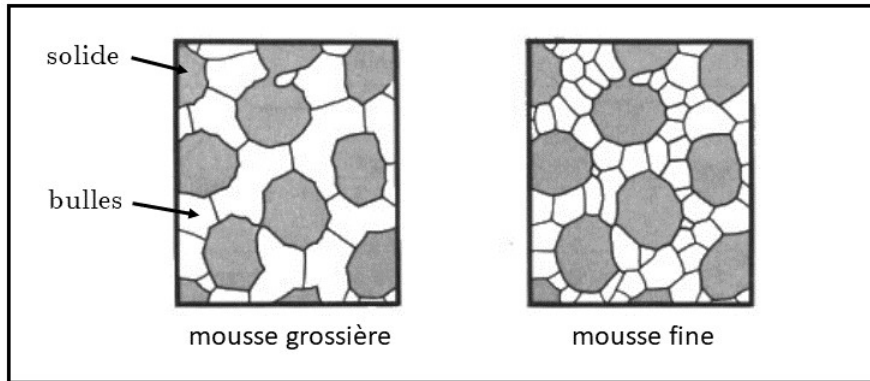


FIGURE 1.5 – Illustration d'une mousse dans un milieu poreux présentant une phase gazeuse discontinue, de texture grossière (gauche) ou fine (droite) (adapté de [11]).

La viscosité apparente étant proportionnelle à la densité de lamelles perpendiculaires à l'écoulement par unité de longueur [12, 6], cette texture va influencer sur les propriétés de la mousse en écoulement. Dans le cas d'une mousse à texture grossière, sa viscosité apparente sera peu élevée, et cette mousse sera dite "faible" (weak foam en anglais). Dans le cas d'une mousse à texture fine, sa viscosité apparente sera élevée, et cette mousse sera dite "forte" (strong foam en anglais) [13].

1.4 Mécanismes de formation et de destruction de mousse en milieu poreux

La mousse peut soit être pré-formée avant son injection dans le milieu poreux, soit se former directement dans celui-ci après co-injection de gaz et de liquide. Dans les deux cas cependant,

sa texture évolue lors de son écoulement. Différents mécanismes peuvent expliquer la formation de nouvelles bulles ou la destruction de celles-ci.

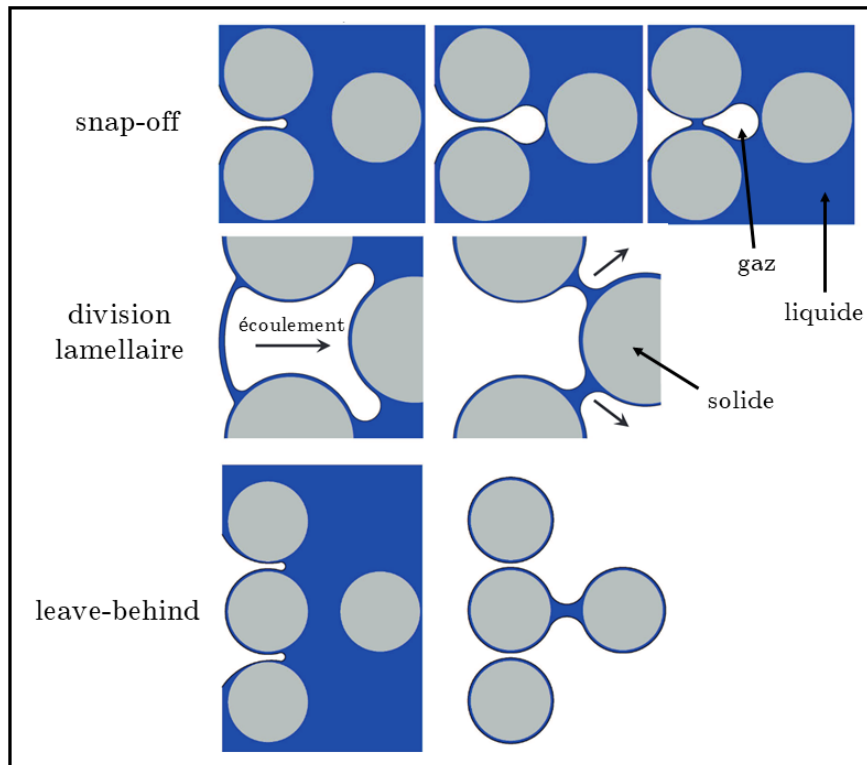


FIGURE 1.6 – Illustrations des trois principaux mécanismes de formation d’une bulle en milieu poreux (adapté de [14]).

Les mécanismes élémentaires de formation de bulles en milieu poreux sont le snap-off, la division lamellaire et le leave-behind (voir figure 1.6). Le mécanisme de formation principal expliquant la forte viscosité effective des mousses en milieu poreux est le snap-off. Pour cette raison, de nombreux modèles numériques ne considèrent que celui-ci dans leur modélisation [15]. De nombreuses études ont été menées sur ce mécanisme, et il a notamment été montré que le seuil de pore (la partie mince) devait être au moins deux fois moins large que le pore en lui-même pour permettre la création d’une nouvelle bulle, et que les bulles générées étaient de l’ordre de grandeur de la taille des pores [16]. Les études académiques utilisent généralement des pores modèles dont la section est carrée ou circulaire [17, 18], cependant la géométrie réelle des pores est plus complexe (voir figure 1.7).

Le principal mécanisme de destruction d’une mousse en milieu poreux est la coalescence de bulles. Ce phénomène peut survenir lorsque la mousse est très sèche et constituée essentiellement de gaz séparé de minces lamelles de liquide, qui peuvent devenir instables si leur épaisseur est trop faible. Ces lamelles sont constituées de deux interfaces peuplées de molécules de tensioactif. Selon la théorie DLVO, si les forces de van der Waals, attractives, tendent à rapprocher les interfaces et donc à amincir et ultimement déstabiliser la lamelle, les interactions électrostatiques et stériques,

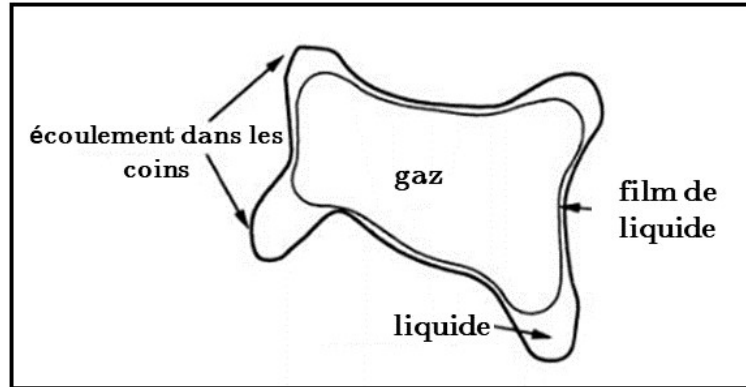


FIGURE 1.7 – Illustrations du profil d'un pore dans un milieu poreux (adapté de [16]).

répulsives, tendent elles à les éloigner, et donc à stabiliser la lamelle [19, 20]. La somme de ces différentes contributions est nommée pression de disjonction Π_d . Pour qu'un film soit stable, cette dernière doit compenser la différence entre la pression dans le gaz P_g et la pression dans le liquide P_l , appelée pression capillaire P_c et qui est donnée par la loi de Laplace : $P_g - P_l = P_c = 2\frac{\gamma}{R}$ avec R le rayon de courbure moyen des bords de Plateau (voir figure 1.8).

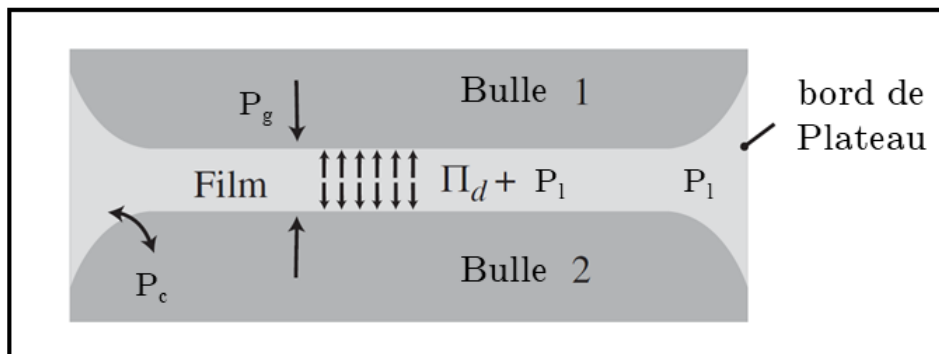


FIGURE 1.8 – Schéma représentant l'équilibre local des pressions dans un film (adapté de [21]).

La stabilité de la lamelle est donc conditionnée par l'égalité $P_c = \Pi_d$. Si la pression capillaire augmente suffisamment, la pression de disjonction peut ne plus suffire à la compenser et le film rompt [22]. Il existe donc une pression capillaire "critique" P_c^* , qui dépend du type et de la concentration des molécules de tensioactif (puisque Π_d en dépend). Notons qu'en milieu poreux la situation est encore plus complexe, et d'autres paramètres comme la perméabilité du milieu ou la présence de pétrole résiduel peuvent jouer un rôle. Le caractère dynamique de la mousse en écoulement, en opposition à cette vision statique de la lamelle, joue aussi un grand rôle.

Or, la pression capillaire de la mousse en milieu poreux augmente avec le débit fractionnaire de gaz injecté, en raison des changements de rayons de courbure :

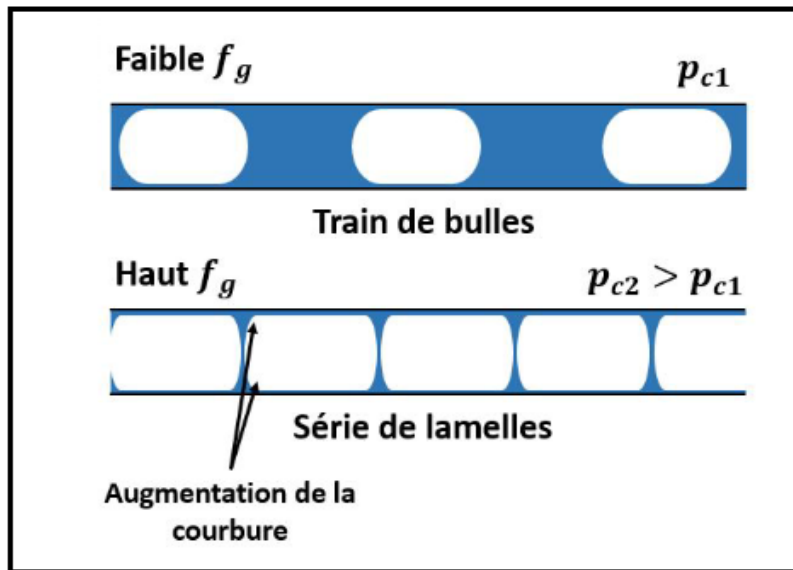


FIGURE 1.9 – Changement de la pression capillaire dans le cas d’un débit fractionnaire de gaz faible (haut) ou élevé (bas) (tiré de [5]).

L’augmentation progressive de la pression capillaire lors de l’assèchement de la mousse injectée peut l’amener à dépasser la valeur critique P_c^* , pour une valeur critique de f_g^* (voir figure 1.10). Plusieurs lamelles vont alors se détruire par coalescence et la mousse va devenir plus grossière, ce qui va donner lieu à une redistribution du liquide dans les bords de Plateau et à une stabilisation de la pression capillaire proche de sa valeur limite [22, 23]. Ainsi, pour des valeurs de débits fractionnaires de gaz $f_g > f_g^*$, la texture de la mousse évolue fortement au cours de son écoulement.

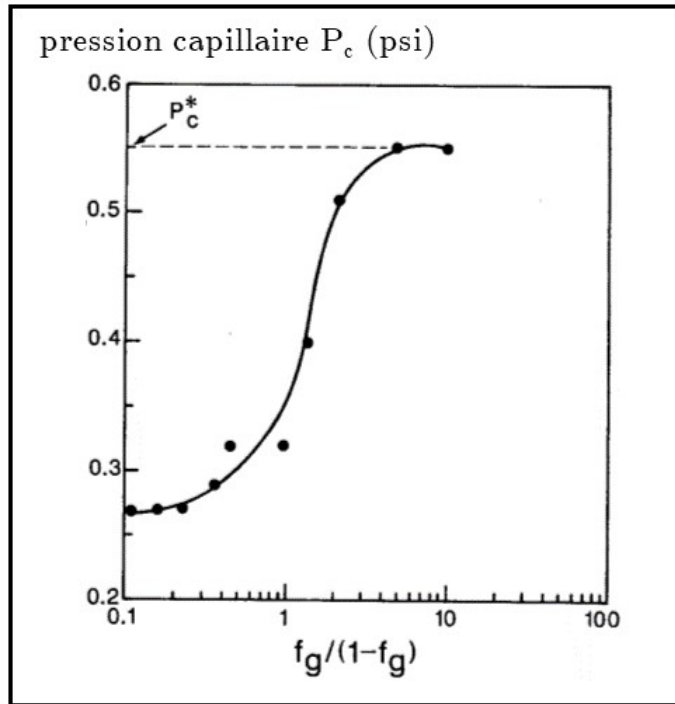


FIGURE 1.10 – Évolution de la pression capillaire avec le débit fractionnaire de gaz injecté dans un milieu poreux. Une fois P_c^* atteinte, la coalescence commence à survenir et la mousse devient plus grossière (tiré de [22]).

2 Problématique de la thèse - explication de notre approche

Comme nous l'avons vu, la compréhension des écoulements de mousse en milieu poreux nécessite de faire le lien entre les processus élémentaires survenant à l'échelle d'une bulle (formation de bulles par snap-off, destruction de bulles par coalescence, etc.) et les propriétés macroscopiques de la mousse. De plus, de nombreux paramètres influencent ces processus : les propriétés du milieu poreux (perméabilité, mouillabilité, forme des pores, etc.), la présence d'autres phases comme du pétrole résiduel, et la physico-chimie des solutions utilisées.

Cette complexité rend difficile l'optimisation des conditions d'utilisation d'une mousse en milieu poreux. Plusieurs approches peuvent être envisagées comme l'utilisation de milieux poreux $2D$ modèles transparents permettant de corréler les mesures macroscopiques de perte de charge à la texture in situ de la mousse [5], le développement de modèles numériques complexes [24, 25], ou l'étude détaillée et simplifiée d'un seul des mécanismes élémentaires mis en jeu [26, 27].

C'est cette dernière approche que nous avons choisie de suivre, afin de découpler au maximum les effets strictement dûs au milieu poreux et l'influence de la physico-chimie, qui nous intéresse en premier lieu. En effet, l'un des objectifs de ce travail, dans le cadre de la collaboration industrielle avec TotalEnergies, est le développement d'un test de laboratoire haut débit permettant de cribler de manière rapide et robuste le comportement en milieu poreux de mousses formées à

partir de différents tensioactifs et présentant diverses compositions. Ce type d'approche a déjà été récemment tenté, avec un certain succès, avec des expériences menées en volume comme des tests de moussabilité [10, 28].

Nous avons fait le choix de situer nos expériences non pas en volume mais en milieu confiné, sans toutefois aller jusqu'à modéliser un milieu poreux, en raison de la complexité qui survient immédiatement et qui rend difficile la compréhension des mécanismes physiques de base mis en jeu.

Le premier critère primordial pour la mise au point de nos dispositifs expérimentaux est de pouvoir observer in situ la mousse en écoulement, afin de pouvoir corréler directement les mesures de pertes de charges à la microstructure de la mousse sous écoulement. Pour répondre à ce cahier des charges, nous avons choisi de travailler avec des puces microfluidiques 2D fabriquées en poly(diméthyl)siloxane (PDMS), un polymère transparent, ou avec des dispositifs millifluidiques 1D constitués d'un assemblage de tubes cylindriques transparents.

Le second critère du cahier des charges, concernait l'étude systématique de l'influence de la physico-chimie, c'est à dire des tensioactifs et additifs utilisés, sur le transport et la stabilité des mousses en milieux confinés. Nous avons fait le choix de sélectionner un tensioactif "modèle" et "académique", le *Tween* 20, aux propriétés bien connues mais qui n'est pas utilisé dans l'industrie pour des applications sur des milieu poreux réels. Nous avons également sélectionné un additif anti-mousse simple, le butan-1-ol, afin de pouvoir contrôler la stabilité de nos systèmes. Nous avons également étudié différents tensioactifs commerciaux réellement utilisés dans l'industrie, notamment pour des applications d'EOR, car connus pour générer des mousses très efficaces en milieu poreux. Pour tous les tensioactifs étudiés, nous avons choisi de travailler avec des concentrations bien supérieures à leur concentration micellaire critique (CMC). Ce choix a été fait afin de s'assurer du mouillage optimal de la phase liquide, mais également et surtout afin de travailler avec un réservoir infini de molécules de tensioactifs et donc de s'affranchir des effets de déplétion.

Ce manuscrit est divisé en trois parties :

- Le chapitre 2 s'intéresse au phénomène de formation ou d'absence de formation d'une mousse lors du passage du co-écoulement de gaz et de liquide dans un pore modèle 2D. L'influence de la géométrie du pore en question est explorée, suivie de l'étude de l'influence éventuelle de la physico-chimie. Enfin, nous comparons nos résultats à ceux obtenus en milieu poreux 3D.
- Le chapitre 3 étudie l'influence sur ce même système de l'ajout d'une molécule ayant la propriété de générer des effets Marangoni.
- Enfin, le chapitre 4 décrit un montage permettant d'étudier le phénomène de coalescence d'une

mousse $1D$ lors de son écoulement, et les premiers résultats obtenus avec celui-ci.

Chapitre 2

Étude microfluidique de la formation de mousse à travers un pore unique

Objectifs

Nous étudions la formation de mousse à l'échelle d'un pore unique. Pour ce faire, nous utilisons un modèle très simplifié de pore unique, à savoir une géométrie microfluidique de pincement hydrodynamique (flow-focusing). Nos expériences consistent à co-injecter le gaz et le liquide, respectivement à pression et débit imposés. Nous faisons varier le débit de liquide injecté à une pression de gaz constante et étudions la nature de l'écoulement biphasique produit (formation ou non de mousse) en couplant observations microscopiques et mesure de perte de charge pour différentes formulations utilisées. Nous comparons ensuite les enseignements tirés avec les résultats obtenus en milieu poreux.

Sommaire

1	Introduction	14
2	Expérience avec un tensioactif classique	15
	2.1 Aspects expérimentaux	15
	2.2 Modèle et analyse numérique	26
	2.3 Conclusion	40
3	Étude de l'influence de l'ajout d'un additif anti-mousse sur le cycle d'hystérèse	41
	3.1 Aspects expérimentaux	41
	3.2 Résultats et analyses	42
4	Étude de l'influence du changement de tensioactif	45
	4.1 Aspects expérimentaux	45
	4.2 Résultats et analyses	47
5	Comparaison des tensioactifs en volume et en milieu poreux modèle	49
	5.1 Moussabilité en volume	49
	5.2 Milieu poreux modèle	51

6	Résumé et conclusion du chapitre	56
---	--	----

1 Introduction

La géométrie de pincement hydrodynamique (ou flow-focusing) est l'une des techniques microfluidiques les plus utilisées pour générer et étudier des gouttes ou bulles mono-disperses [29]. Dans notre cas, nous utilisons des canaux microfluidiques de section rectangulaire (typiquement de hauteur $75 \mu\text{m}$ et de largeur $400 \mu\text{m}$) fabriqués en poly(diméthyl)siloxane (PDMS), un polymère thermo-réticulable par des techniques standards de lithographie douce. Ces dispositifs transparents permettent de visualiser la nature de l'écoulement biphasique et de corrélérer ces observations à des mesures de perte de charge.

Lors de la co-injection de gaz et de liquide, la formation de bulles (qui peuvent être de toutes tailles) ou d'un jet continu de gaz dépend des paramètres d'écoulement, à savoir les débits d'injection du liquide et du gaz et donc du débit fractionnaire de liquide :



FIGURE 2.1 – Formation de bulles de différentes tailles ou de jets, selon les paramètres d'injection.

Nous pouvons nous demander pourquoi, étant donné la géométrie d'injection, nous n'obtenons pas toujours un simple jet de largeur variable. L'explication théorique a été donnée dans deux articles scientifiques [30, 31] qui ont montré, à l'aide d'une analyse de stabilité linéaire, que tous les jets ne sont pas stables. Très simplement, les jets de gaz dits " $2D$ ", c'est à dire ceux dont la largeur est supérieure à la hauteur du canal microfluidique, sont toujours stables, tandis que les jets dits " $3D$ ", c'est à dire ceux dont le rayon est inférieur à la hauteur du canal microfluidique, sont toujours instables en raison de l'instabilité de Rayleigh-Plateau. Ces jets ne vont donc pas exister et nous allons assister à la place à la formation périodique de bulles monodisperses.

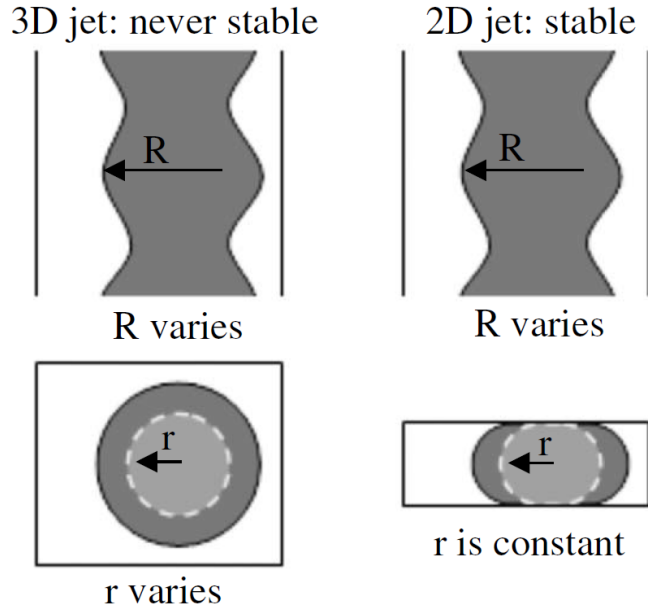


FIGURE 2.2 – Représentation extrêmement schématique de l’analyse de stabilité d’un jet de gaz 2D ou 3D. R et r sont les deux rayons de courbure de ce jet (tiré de [31]).

2 Expérience avec un tensioactif classique

2.1 Aspects expérimentaux

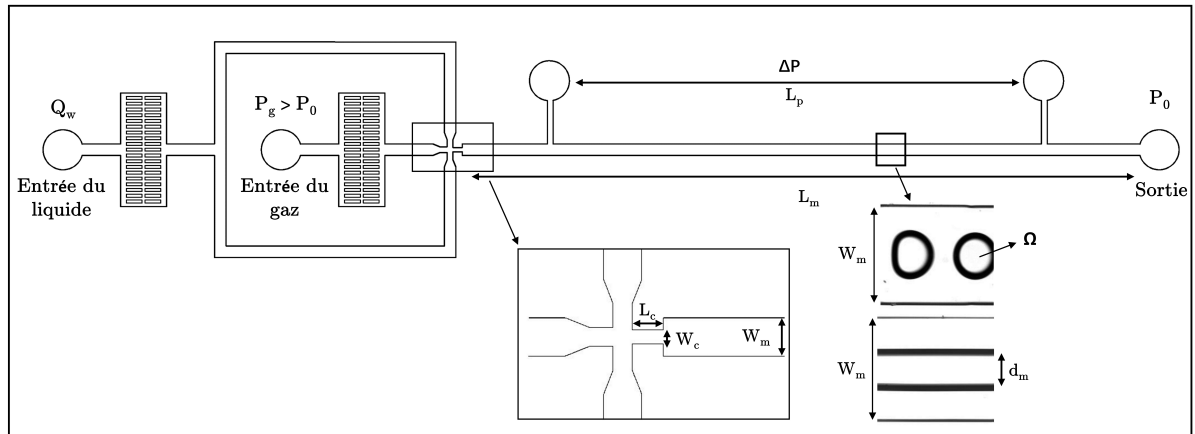


FIGURE 2.3 – Schéma 2D vu du dessus de la puce microfluidique, et définition des paramètres d’injection et des paramètres géométriques : débit de liquide Q_w et de gaz Q_g , pression du gaz à l’entrée P_g et à la sortie P_0 , perte de charge ΔP mesurée sur une longueur L_p , longueur L_m et largeur W_m du canal principal, longueur L_c et largeur W_c de la constriction, largeur du jet dans le canal principal d_m et dans la constriction d_c , et volume des bulles Ω .

Nous utilisons une puce microfluidique de PDMS (Sylgard 184 Silicone Elastomer, Dow Corning) fabriquée avec des techniques de lithographie douce utilisant des moules en résine *SU-8*, en suivant le protocole classiquement utilisé [32, 29]. Le traitement au plasma ainsi que l'ajout du tensioactif *Tween 20* permettent de s'assurer que les parois soient suffisamment hydrophiles le temps de l'expérience (de l'ordre de quelques heures), la puce étant renouvelée tous les jours. Un co-écoulement gaz-liquide est formé à une jonction en flow-focusing [33] (voir figure 2.3), immédiatement suivie d'une constriction. Le liquide est introduit par les deux canaux latéraux, à un débit imposé par un pousse-seringue *Nexus 3000* (Chemyx, EUA). Le gaz (diazote N_2) est quant à lui injecté par le canal central, à une pression $P_g = P_0 + \delta P$ imposée par un contrôleur de pression *OB1 MK3+* (Elvesys, France) relié à un réservoir d'azote pressurisé. La sortie du canal est à pression atmosphérique P_0 . Le liquide est de l'eau déminéralisée à laquelle nous ajoutons 1 g/L de NaCl (Sigma Aldrich) et 10 g/L (1% en masse) de *Tween 20* (Fisher Scientific). Les expériences sont menées à température ambiante. Les deux fluides passent chacun par un dispositif de filtration intégré au design de la puce destiné à piéger les éventuelles poussières. Nous mesurons la viscosité de la solution $\mu_l = 0.96 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ avec l'appareil *Rheometer Low shear 400* (Lamy rheology) et sa tension de surface $\gamma_w = 33.6 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$ avec le tensiomètre TRACKER (TECLIS, France) qui utilise la méthode de la goutte pendante. La viscosité du diazote est de $\eta_g = 0.0177 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ à $T = 23^\circ\text{C}$.

Le canal principal a une hauteur de $H = 76 \mu\text{m}$, une largeur de $W = 400 \mu\text{m}$ et une longueur de $L = 2.4 \text{ cm}$, tandis que la constriction possède la même hauteur $H = 76 \mu\text{m}$, une longueur de $L_c = 600 \mu\text{m}$, mais une largeur W_c qui vaut selon les expériences 100, 200 ou 250 μm . La puce est placée sous un microscope inversé *DM IL LED* (Leica, Allemagne) sur lequel est monté un objectif 5–10x, connecté à une caméra rapide *FASTCAM Mini AX100* (Photron, Japon). Nous filmons à une vitesse de 20000 images par seconde et le champ de vision est de $600 \times 1200 \mu\text{m}^2$. Nous mesurons également la perte de charge dans le canal principal grâce à deux capteurs de pression *MPS1* (Elvesys, France), écartés de $L_p = 1.7 \text{ cm}$, ainsi que le débit de gaz avec 2 débitmètres à gaz *El-Flow Select F-111B* et *F-110C* (Bronkhorst, USA) montés en série qui permettent de mesurer des débits entre 10 et 10 000 $\mu\text{L}/\text{min}$. Nous déduisons de cette mesure le débit fractionnaire de gaz $f_g = \frac{Q_g}{Q_g + Q_w}$.

2.1.1 Déroulement de l'expérience

L'expérience consiste à faire varier Q_w de manière cyclique tout en maintenant P_g constant, à une valeur de 1.3 ou 1.4 bar selon les expériences : nous l'augmentons progressivement (avec un pas de quelques $\mu\text{L}/\text{min}$ à quelques dizaines de $\mu\text{L}/\text{min}$) de $Q_w = 10 \mu\text{L}/\text{min}$ à plusieurs centaines de $\mu\text{L}/\text{min}$, puis nous le diminuons progressivement de la même manière. Pour chaque valeur de Q_w , nous attendons le temps nécessaire (généralement entre 2 et 10 minutes) pour que l'état stationnaire soit atteint, puis nous enregistrons 2 vidéos d'une durée de 500 ms, l'une au niveau de la constriction et l'autre au niveau du canal principal. Le suivi de l'évolution temporelle du débit de gaz mesuré avec le débitmètre et des pressions mesurées avec les capteurs de pression

nous permettent de s'assurer que l'état stationnaire a bien été atteint.

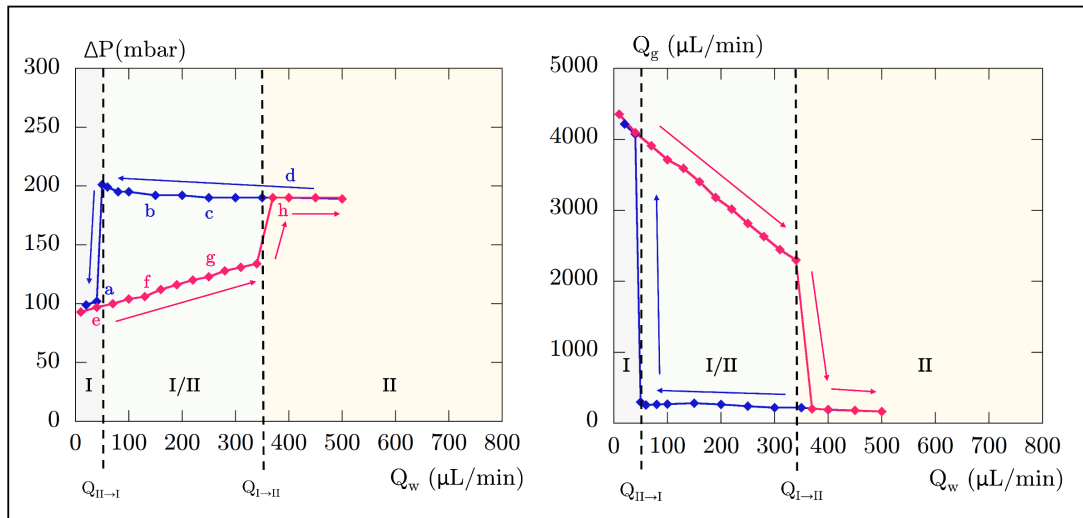


FIGURE 2.4 – Pour la puce avec $W_c = 200 \mu m$, variation de perte de charge (gauche) et de débit de gaz (droite) mesurés sur une longueur $L_p = 1.7 cm$ du canal principal, en maintenant la pression $P_g = 1.3 bar$ fixée et en augmentant (rose) ou diminuant (bleu) le débit de liquide Q_w .

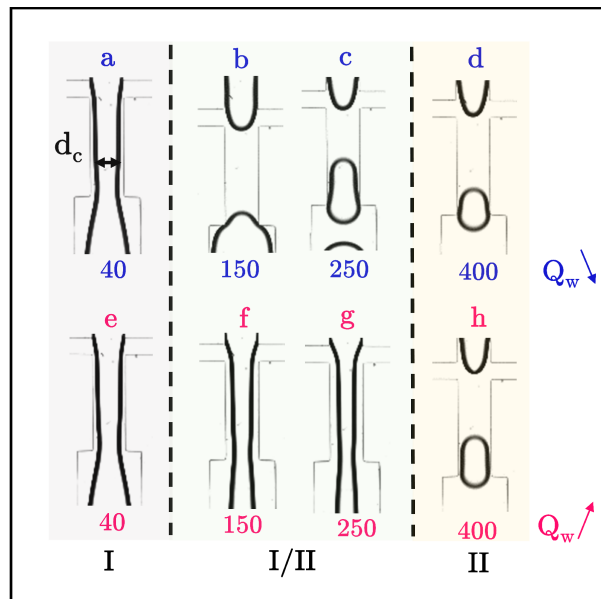


FIGURE 2.5 – Pour la puce avec $W_c = 200 \mu m$ et $P_g = 1.3 bar$, images du co-écoulement dans la constriction pour différentes valeurs de débit de liquide Q_w (en $\mu l/min$), en le diminuant (bleu) ou l'augmentant (rose).

Nous distinguons clairement 2 régimes hydrodynamiques stationnaires : pour des valeurs de Q_w suffisamment élevées, des bulles identiques sont générées périodiquement au niveau de la

constriction (régime *II*), bulles dont la taille et la fréquence de génération dépend de Q_w (voir partie 2.3 plus bas). La perte de charge ΔP est élevée (autour de 200 mbar) et quasiment constante dans ce régime. Pour des Q_w plus faibles, nous constatons un co-écoulement de liquide proche des parois et d'un jet de gaz au centre du canal (régime *I*), dont la largeur d varie en fonction de Q_w (voir figure 2.7). La perte de charge ΔP est plus faible et augmente linéairement dans ce régime.

Cependant, si dans le régime *II* seules des bulles sont observées, de même qu'un jet continu de gaz dans le régime *I*, nous constatons qu'il existe un domaine *I/II* où les deux régimes sont possibles suivant que le sens de variation de Q_w soit ascendant (nous observons alors un régime *I*) ou descendant (nous observons alors un régime *II*). La transition entre le régime *I/II* et le régime *II* (quand nous augmentons Q_w), se produit à une valeur de $Q_{I \rightarrow II}$ qui est très reproductible, et se traduit par une brusque augmentation de ΔP . La transition entre le régime *I/II* et le régime *I* (quand nous diminuons Q_w), se produit à une valeur de $Q_{II \rightarrow I}$ qui est quant à elle moins reproductible (sa valeur peut varier de quelques dizaines de $\mu\text{L}/\text{min}$ selon le pas utilisé). Elle se traduit par une brusque chute de ΔP .

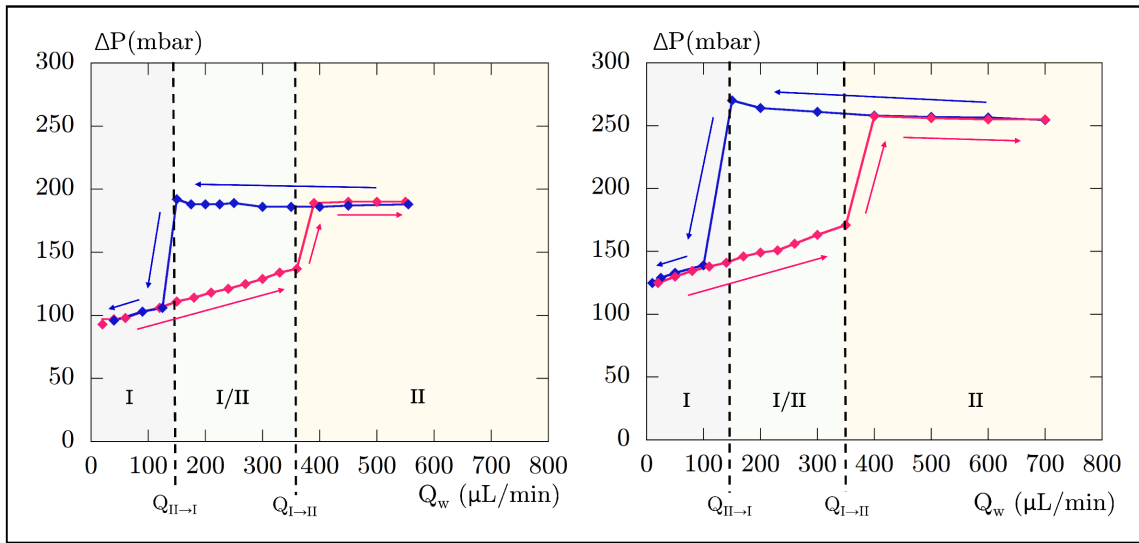


FIGURE 2.6 – Variation de perte de charge mesurée sur une longueur $L_p = 1.7 \text{ cm}$ du canal principal, en augmentant (rose) ou diminuant (bleu) le débit d'eau Q_w , pour l'expérience à $W_c = 250 \mu\text{m}$ et 1.3 bar (gauche) et l'expérience à $W_c = 200 \mu\text{m}$ et $P_g = 1.4 \text{ bar}$ (droite).

Les résultats sont similaires quand nous répétons l'expérience en variant la largeur de la constriction tout en gardant tous les autres paramètres identiques, et notamment la même pression de $P_g = 300 \text{ mbar}$ (voir figures 2.4 gauche et 2.6 gauche). L'amplitude de ΔP est identique, de même que $Q_{I \rightarrow II}$, cependant nous constatons que $Q_{II \rightarrow I}$ semble augmenter avec l'élargissement de la constriction.

Quand nous changeons la pression imposée (de $P_g = 1.3$ bar à $P_g = 1.4$ bar) tout en gardant la même géométrie (voir figures 2.4 gauche et 2.6 droite), le comportement est également similaire, sauf pour l'amplitude des pertes de charges mesurées qui est bien plus élevée, ce qui est attendu puisque la pression d'entrée est modifiée.

Puisque nous avons accès visuellement au jet qui s'écoule dans la constriction et dans le canal principal, nous pouvons mesurer l'évolution de sa largeur avec Q_w , dans le sens des Q_w croissants (rose) :

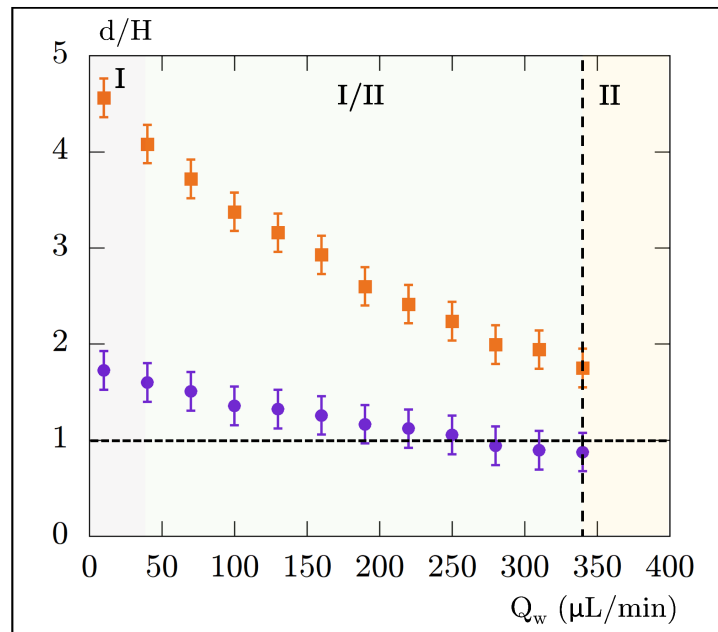


FIGURE 2.7 – Variation du rapport de la largeur du jet sur la hauteur du canal $d_{m \text{ ou } c}/H$ dans le canal principal (orange) et dans la constriction (violet) avec Q_w , pour l'expérience avec $P_g = 1.3$ bar et la constriction de largeur $W_c = 200 \mu\text{m}$.

Il apparaît clairement que le critère de transition jet/bulles basé sur le passage $2D/3D$ du jet vu en introduction est valable si nous nous intéressons au jet de plus petite largeur, c'est à dire celui dans la constriction (ronds violets). De plus, dans le canal après la constriction (carrés oranges), le jet est toujours en situation $2D$ -confiné et donc stable.

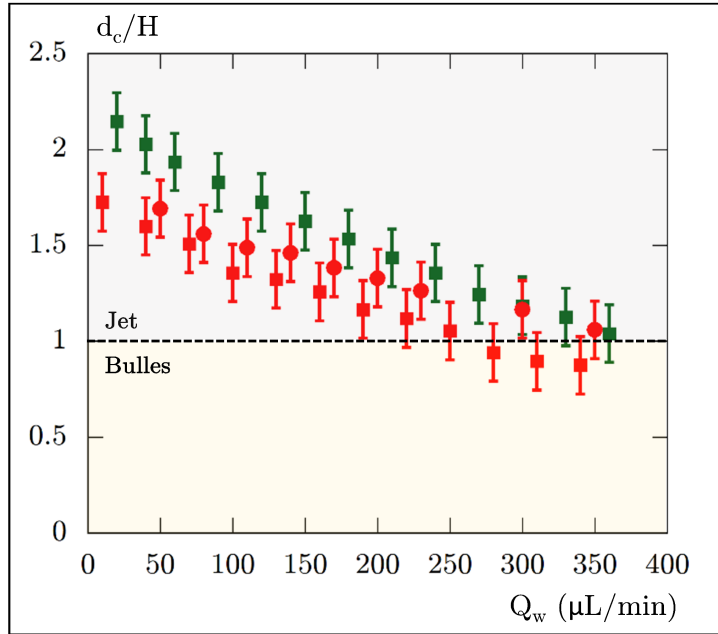


FIGURE 2.8 – Variation du rapport de la largeur du jet dans la constriction sur la hauteur du canal $\frac{d_c}{H}$ avec Q_w , pour les 3 expériences : $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 200 \mu m$ (■), $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 250 \mu m$ (■), et $P_g = 1.4$ et $W_c = 200 \mu m$ (●).

Cette constatation est valable pour les trois expériences réalisées, comme le montre la figure 2.8.

2.1.2 Analyse du régime de production de mousse - variation de géométrie

Intéressons-nous maintenant plus précisément à la mousse qui est générée lorsque l'expérience est menée cette fois-ci dans le sens des Q_w décroissants, et notamment à la taille et la fréquence de production de bulles générées.

Commençons par comparer la mousse générée pour des conditions en tout point identiques à l'exception de la largeur de la constriction W_c :

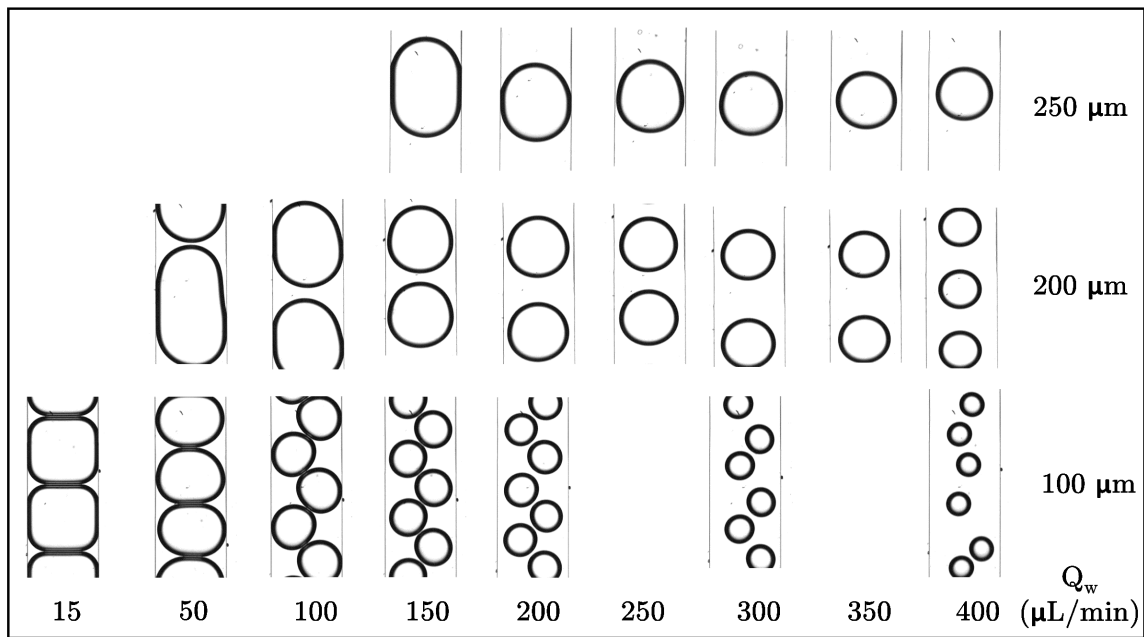


FIGURE 2.9 – Images de la mousse générée pour différents Q_w à pression $P_g = 1.3$ bar fixée, pour différentes largeurs de constriction (le reste du design étant strictement identique) $W_c = 100, 200$ ou $250 \mu\text{m}$. L'absence d'image pour un Q_w faible indique que le régime jet est atteint.

La figure 2.9 montre que la géométrie de la constriction a une influence drastique sur la topologie de la mousse générée. Puisque nous travaillons à pression de gaz P_g fixée, le débit de gaz Q_g varie quand le débit de liquide Q_w varie. Il est donc plus pertinent pour comparer les expériences d'utiliser le débit fractionnaire de gaz $f_g = \frac{Q_g}{Q_g + Q_w}$:

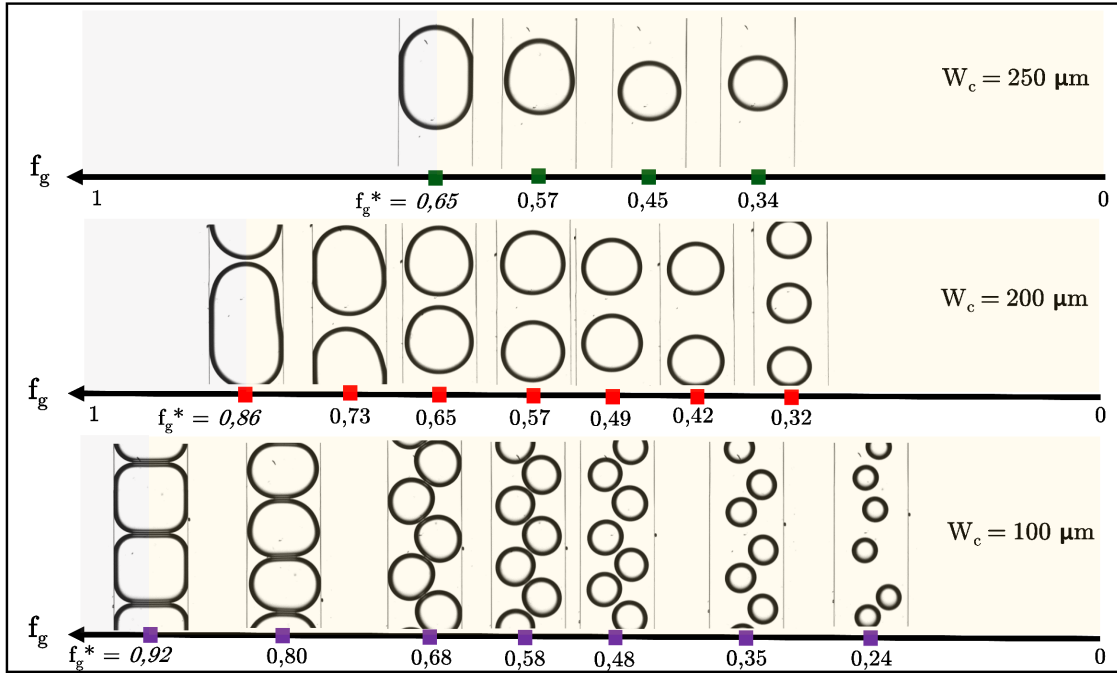


FIGURE 2.10 – Images de la mousse générée pour différents f_g à pression $P_g = 1.3$ bar fixée, pour différentes tailles de constriction (le reste du design étant strictement identique) $W_c = 100, 200$ ou $250 \mu\text{m}$. L'absence d'image pour un Q_w faible indique que le régime jet est atteint (fond gris).

Il apparaît sur la figure 2.10 que pour un même débit fractionnaire de gaz, différentes constriction donnent lieu à différentes topologies de la mousse : une constriction moins large (et donc un canal plus proche d'un profil carré que d'un profil rectangulaire) favorise la production de multiples petites bulles proches les unes des autres et pouvant donc s'écouler en rangées de 2, tandis qu'une constriction large favorise quant à elle la production de trains périodiques constitués de plus grosses bulles plus éloignées les unes des autres. Nous remarquons également qu'une constriction moins large permet de générer une mousse plus sèche, tandis qu'une constriction plus large favorise plutôt la formation d'un jet. Le débit fractionnaire de gaz f_g maximal observé sera nommé $f_g^* = \frac{Q_{gII \rightarrow I}}{Q_{gII \rightarrow I} + Q_{wII \rightarrow I}}$.

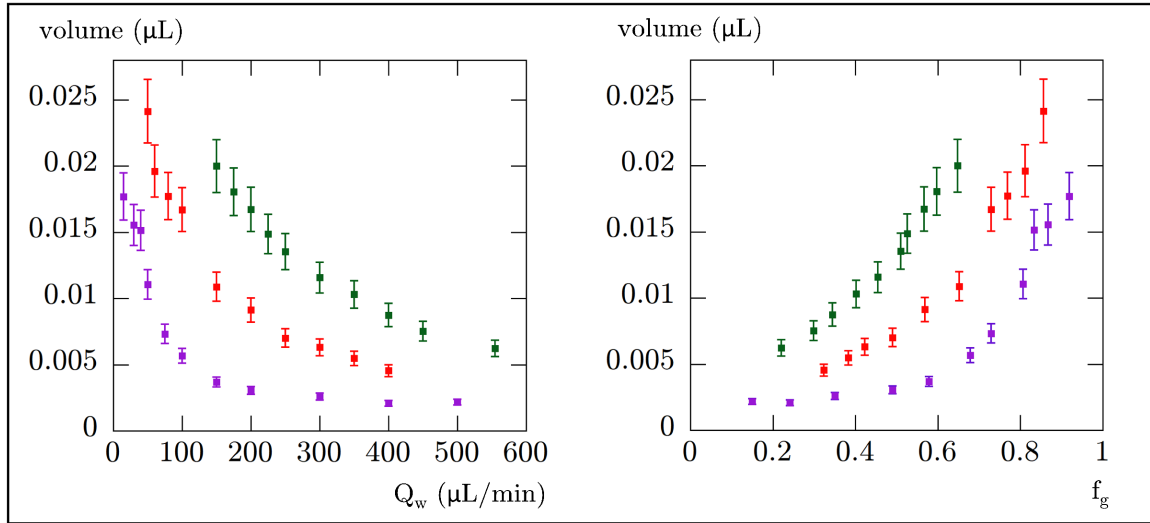


FIGURE 2.11 – Évolution du volume des bulles avec Q_w (gauche) ou f_g (droite) pour les expériences avec $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 100$ (■), 200 (■) ou 250 (■) μm .

Ceci est vérifié sur la figure 2.11, où nous représentons la variation du volume des bulles avec Q_w et avec f_g . Ce volume est calculé simplement à partir du débit de gaz et de la fréquence de production de ces bulles (voir figure 2.12).

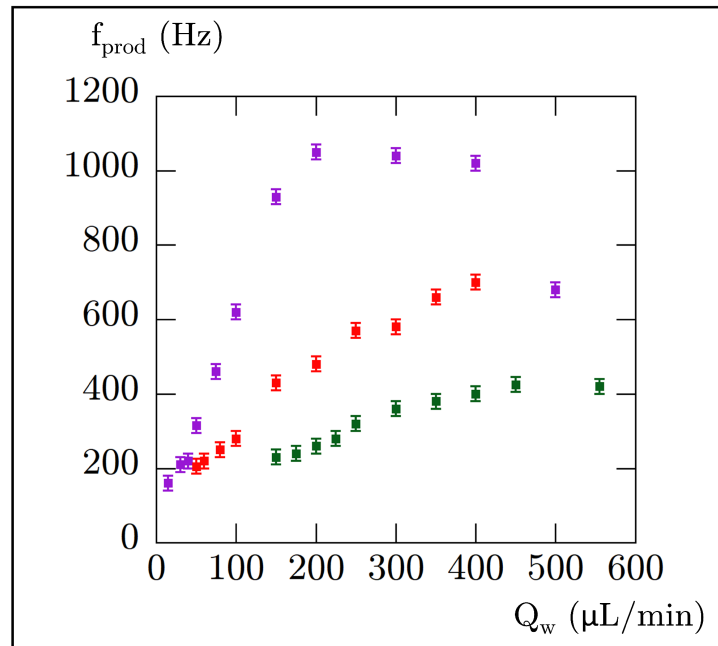


FIGURE 2.12 – Évolution de la fréquence de production des bulles avec Q_w pour les expériences avec $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 100$ (■), 200 (■) ou 250 (■) μm .

Selon [29] et [34], la formation d'une bulle dans notre système met en jeu 2 temps : celui nécessaire

au gaz pour atteindre et pénétrer la constriction, proportionnel à $\frac{1}{Q_w(P_g - \Delta P)}$, et celui nécessaire à la bulle pour gonfler puis au jet de pincer, proportionnel à $1/Q_w$.

On voit sur la figure 2.12 que f_{prod} augmente (à même Q_w) quand la largeur de la constriction W_c diminue, et donc quand la taille des bulles diminue, ce qui est attendu puisqu'une bulle plus petite mettra une durée moins longue à gonfler.

Lors de l'expérience menée avec une constriction de $100 \mu m$ de largeur, f_{prod} semble d'abord augmenter avec Q_w , puis présenter un plateau avant de décroître. Ce comportement a déjà été observé pour la production de bulles avec un tel dispositif similaire par [34]. L'absence de décroissance dans les expériences menées avec une constriction de 200 ou 250 μm de largeur peut s'expliquer par l'absence de point mesuré à Q_w élevé (l'expérience étant arrêtée quand Q_w atteint quelques centaines de $\mu L/min$, afin d'éviter des problèmes de fuite lié au décollement de la puce de son support en PDMS).

2.1.3 Analyse du régime de production de mousse - variation de pression

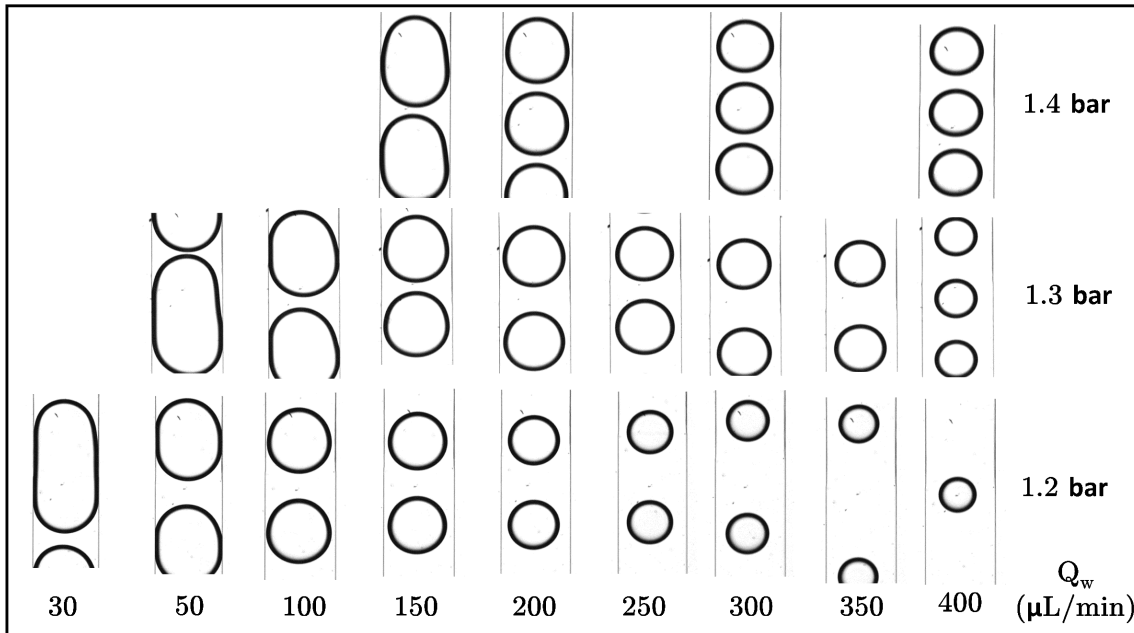


FIGURE 2.13 – Images de la mousse générée pour différents Q_w à une pression $P_g = 1.2, 1.3$ ou 1.4 bar, pour une largeur de constriction de $W_c = 200 \mu m$. L'absence d'image pour un Q_w faible indique que le régime jet est atteint dans cette gamme de débits.

Nous voyons sur la figure 2.13 que la valeur de la pression appliquée influe sur la topologie de la mousse générée.

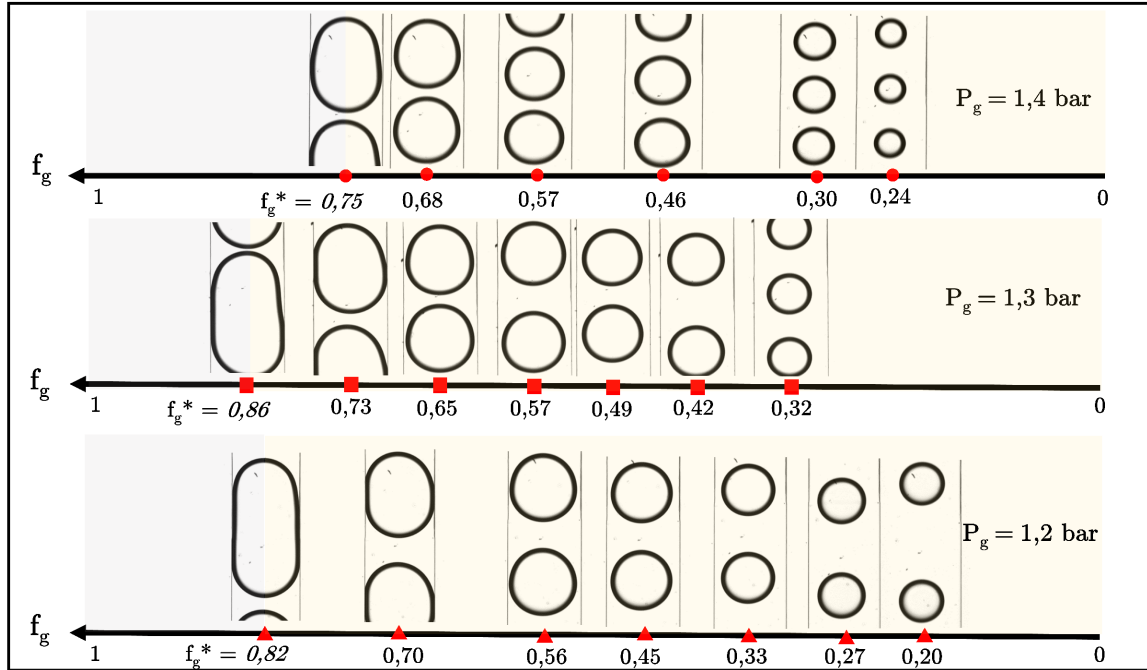


FIGURE 2.14 – Images de la mousse générée pour différents f_g à une pression $P_g = 1.2, 1.3$ ou 1.4 bar, pour une largeur de constriction de $W_c = 200 \mu m$. L'absence d'image pour un Q_w faible indique que le régime jet est atteint dans cette gamme de débits (fond gris).

Il apparaît sur la figure 2.14 que pour un même débit fractionnaire de gaz, différentes pressions appliquées donnent lieu à différentes topologies de la mousse : une pression plus élevée favorise la production de bulles un peu plus petites. Cependant, la pression appliquée semble avoir assez peu d'influence sur la transition $II \rightarrow I$.

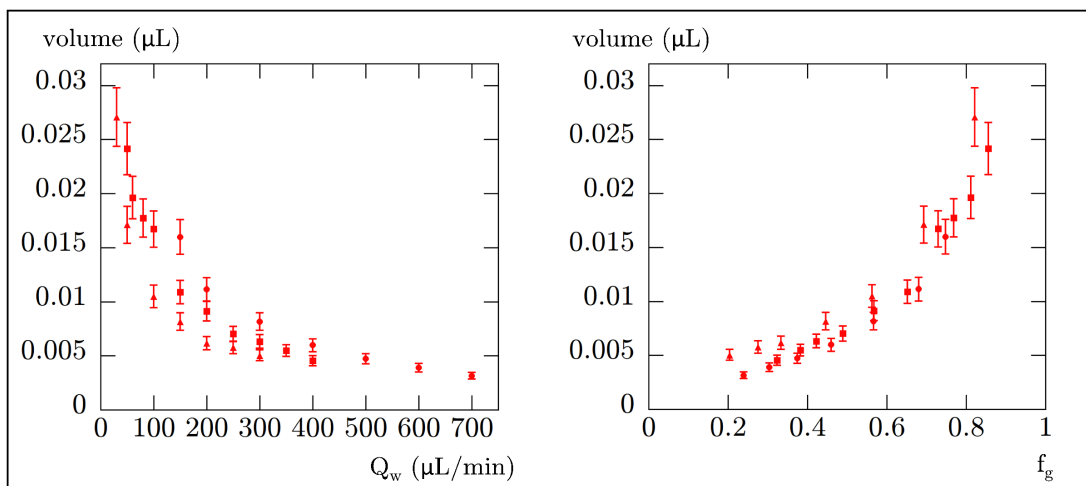


FIGURE 2.15 – Évolution du volume des bulles avec Q_w (gauche) ou f_g (droite) pour les expériences avec $W_c = 200 \mu m$ et pour $P_g = 1.2$ (▲), 1.3 (■) ou 1.4 (●) bar.

La figure 2.15, où nous avons représenté la variation du volume des bulles lors de l'expérience pour différentes valeurs de pression appliquée P_g , montre que celle-ci a un effet sur le volume de bulles produites, mais bien plus modéré que celui résultant d'un changement de géométrie de constriction. Le volume des bulles augmente (à même Q_w) quand la pression de gaz P_g augmente, ce qui correspond à ce qui est usuellement observé [34]. C'est également le cas pour la fréquence de production des bulles f_{prod} (voir figure 2.16).

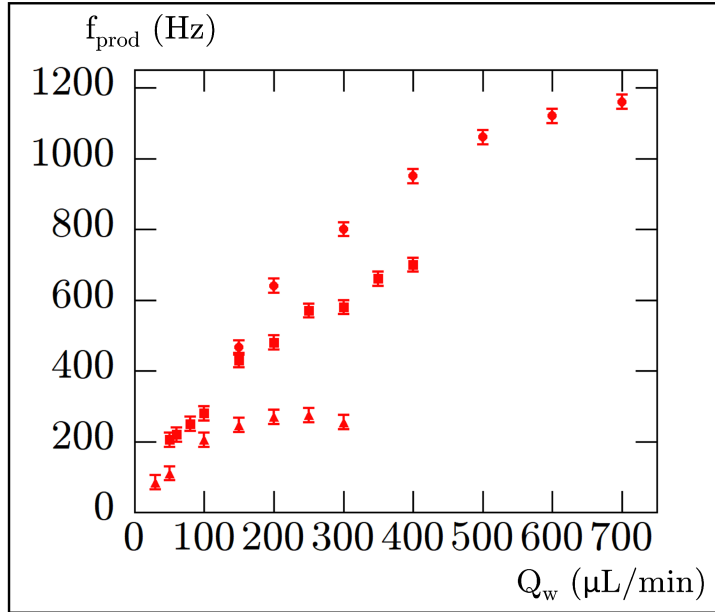


FIGURE 2.16 – Évolution de la fréquence de production des bulles avec Q_w pour les expériences avec $W_c = 200 \mu m$ et pour $P_g = 1.2$ (\blacktriangle), 1.3 (\blacksquare) ou 1.4 (\bullet) bar.

2.2 Modèle et analyse numérique

2.2.1 Description du modèle

Nous allons étudier la géométrie du jet dans la constriction. Nous montrerons plus loin que l'hystérèse provient d'un couplage entre les écoulements dans la constriction et dans le canal. Cependant, la constriction seule présente un comportement simple sans hystérèse que nous allons modéliser maintenant.

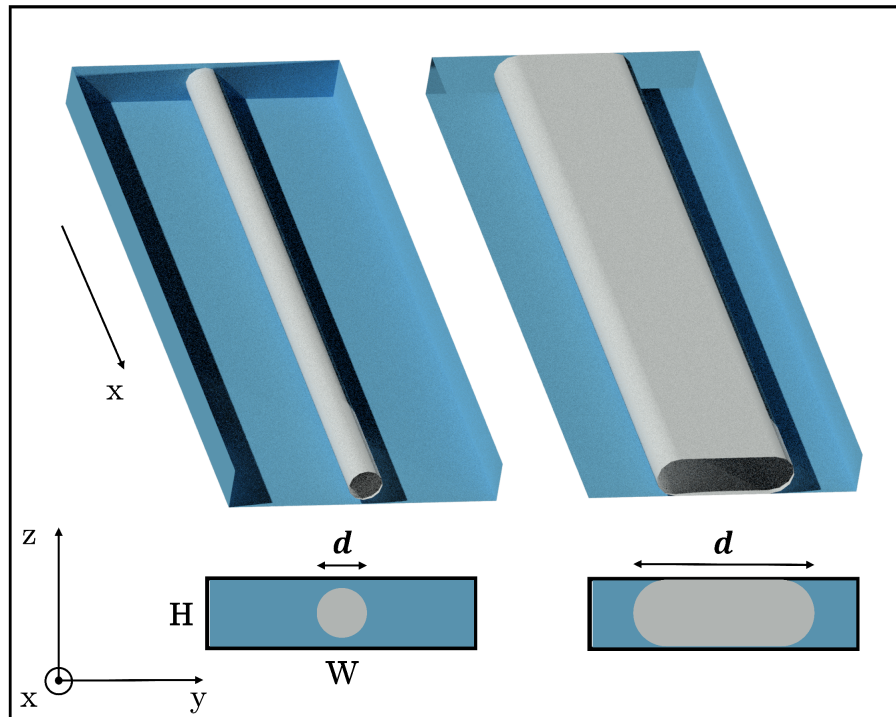


FIGURE 2.17 – Haut : schéma en perspective du jet de gaz dans le canal, dans le cas $3D$ (gauche) et $2D$ (droite). Bas : schéma du profil du jet de gaz dans le plan (y, z) . \vec{e}_x est la direction de l'écoulement.

Nous nous plaçons dans le cas de l'écoulement d'un jet de gaz de largeur d entouré de liquide dans un canal rectangulaire de largeur W et de hauteur H constantes. Le modèle [35, 31] consiste à résoudre numériquement, pour un état stationnaire, l'équation de Navier-Stokes, afin de déterminer les profils de vitesse $3D$ dans le gaz et le liquide, ainsi que le gradient de pression $\frac{dP}{dx}$ correspondant à ce co-écoulement.

Nous faisons plusieurs hypothèses :

- (a) Les fluides (diazote pur et solutions aqueuses) sont newtoniens.
- (b) L'écoulement est incompressible, ce qui est valable car le nombre de Mach est au maximum de l'ordre de $10^{-2} \ll 1$ dans nos expériences.
- (c) Le liquide mouille parfaitement les parois (comme nous l'avons vu, les surfaces sont traitées au plasma pour s'en assurer).
- (d) La concentration surfacique en molécules de tensioactif est constante i.e. il n'y a pas d'effet Marangoni (N.B. : nous verrons dans le chapitre 3 ce qu'il se passe quand ce n'est pas le cas).
- (e) L'écoulement est laminaire. Ceci est valable car dans nos expériences, le nombre de Reynolds

est toujours, même dans le cas le moins favorable, inférieur à 1000 dans le gaz et à 100 dans le liquide.

Commençons par écrire pour chaque fluide la conservation de la masse et l'équation de Stokes, respectivement :

$$\operatorname{div} \vec{u}_i = 0 \quad (2.1)$$

et

$$\eta_i \Delta \vec{u}_i = \overrightarrow{\operatorname{grad}} P_i \quad (2.2)$$

avec \vec{u}_i , η_i et P_i respectivement la vitesse, la viscosité et la pression dans le fluide i (avec $i = 1$ pour le gaz et $i = 2$ pour le liquide).

Le champ de vitesse s'écrit $\vec{u}_i = U_i(x, y, z) \vec{e}_x$, il est unidirectionnel dans la direction x .

L'équation de Young-Laplace donne pour les champs de pression la relation suivante :

$$P_1(x) - P_2(x) = \frac{\gamma}{R(x)} \quad (2.3)$$

avec $R(x)$ le rayon de courbure de l'interface.

En régime stationnaire, les gradients de pression sont égaux dans les deux fluides puisque $R(x)$ est constant dans la direction de l'écoulement :

$$\frac{\partial P_1}{\partial x} = \frac{\partial P_2}{\partial x} \quad (2.4)$$

Deux cas de figure sont possibles, suivant que la largeur du jet d soit plus grande que la hauteur du canal H (i.e. le jet est $2D$ -confiné) ou plus petite (i.e. le jet est $3D$ -non confiné). Dans le premier cas, le profil du jet peut être modélisé comme un rectangle de dimensions $H \times (d - H)$ encadré de deux demi-cercles de rayon $\frac{H}{2}$ (voir figure 2.17 bas), si bien que $R(x) = \frac{H}{2}$. Ceci est valable car l'épaisseur du film de lubrification est très faible, de l'ordre de $HCa^{2/3}$ [36] avec $Ca = \frac{\eta V}{\gamma}$ le nombre capillaire, nombre qui ne dépasse pas 10^{-2} dans nos expériences. Dans le

second cas, le profil du jet peut être modélisé par un cercle de rayon $R = \frac{d}{2} \leq \frac{H}{2}$.

Nous ferons le système d'équations avec :

(i) une condition de non glissement sur les parois du canal pour chaque fluide.

(ii) la continuité de la vitesse à l'interface gaz/liquide Σ .

(iii) l'équilibre des contraintes tangentielles à l'interface gaz/liquide Σ , ce qui s'écrit $\eta_1 \frac{\partial U_1}{\partial \vec{n}} = \eta_2 \frac{\partial U_2}{\partial \vec{n}}$.

avec \vec{n} le vecteur normal à Σ .

Il découle directement de l'incompressibilité de l'écoulement que le champ de vitesse ne dépend pas de la variable x , et que les gradients de pression dans la direction x sont constants et égaux à $\frac{dP}{dx} = \frac{\Delta P}{L}$, avec ΔP la perte de charge mesurée sur une longueur L .

Nous pouvons alors résoudre ce jeu d'équations pour une paire de $(\frac{dP}{dx}, d)$ donnée, et déterminer dans chacun des deux fluides les profils de vitesse correspondants et donc aussi leurs débits, qui valent :

$$Q_i = \iint_{\mathcal{V}_i} U_i(y, z) dy dz \quad (2.5)$$

où \mathcal{V}_i est le domaine du fluide i .

Une analyse dimensionnelle du problème montre que :

$$Q_2 = Q_w = \frac{dP}{dx} \frac{H^4}{\eta_w} G\left(\frac{\eta_g}{\eta_w}, \frac{W}{H}, \frac{d}{H}\right) \quad (2.6)$$

et

$$Q_1 = Q_g = \frac{dP}{dx} \frac{H^4}{\eta_g} K\left(\frac{\eta_g}{\eta_w}, \frac{W}{H}, \frac{d}{H}\right) \quad (2.7)$$

avec G et K deux fonctions sans dimension.

Nous déduisons de ces deux équations que la longueur sans dimension $\frac{d}{H}$ est fonction de trois paramètres sans dimension $q = \frac{Q_g}{Q_w}$, $\eta = \frac{\eta_g}{\eta_w}$ et $A = \frac{W}{H}$. Elle s'écrit alors :

$$\frac{d}{H} = F(q, \eta, A) \quad (2.8)$$

Pour calculer numériquement les variations de $\frac{d}{H}$ en fonction de q pour une géométrie donnée, nous procédons comme suit : pour chaque jeu de $(d, \frac{dP}{dx})$ donné, le profil de vitesse de chaque fluide est calculé, ce qui permet de calculer Q_w et Q_g (et donc q leur rapport). En faisant systématiquement varier d et $\frac{dP}{dx}$ et en répétant le calcul numérique, nous pouvons extraire les variations de $\frac{d}{H}$ ou celles de $\frac{dP}{dx}$ en fonction de Q_w pour différentes valeurs de Q_g (ou vice-versa) et donc les variations en fonction de q ou $f_g = \frac{q}{1+q}$.

Les simulations numériques utilisent un maillage Cartésien régulier et une méthode des volumes finis pour discrétiser les équations [37]. Le code a été initialement développé par T. Colin sur Scilab, un logiciel de calcul numérique libre développé par l'INRIA (France).

2.2.2 Analyse des résultats numériques et comparaison avec les expériences en régime jet

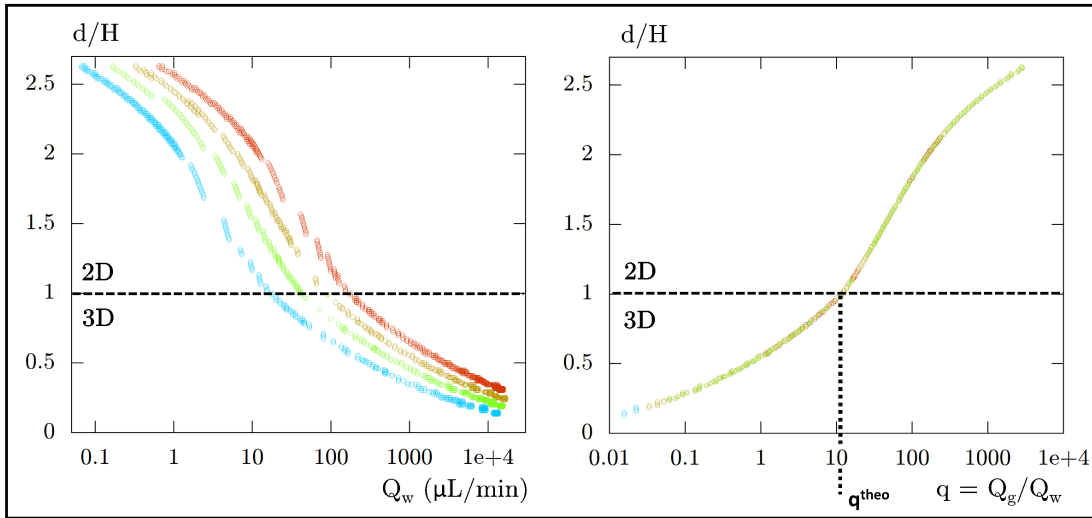


FIGURE 2.18 – Gauche : variation de $\frac{d}{H}$ avec Q_w , calculée numériquement en utilisant une hauteur $H = 76 \mu m$ et une largeur du canal $W_c = 200 \mu m$, mais différentes valeurs de Q_g : 200 (\circ), 500 (\circ), 1000 (\circ) et 2000 (\circ) $\mu L/min$. Droite : variation de $\frac{d}{H}$ avec $q = \frac{Q_g}{Q_w}$, calculée numériquement en utilisant une hauteur $H = 76 \mu m$ et une largeur du canal $W_c = 200 \mu m$, avec les mêmes symboles qu'à gauche. q^{theo} est la valeur de q pour laquelle $d = H$.

Nous appliquons la méthode décrite précédemment en choisissant les paramètres géométriques correspondants à nos expériences afin de modéliser le jet dans la constriction (qui est comme on

l'a vu le lieu clé de formation de la mousse), soit $W = W_c$ et $H = 76 \mu m$.

Commençons par le cas $W_c = 200 \mu m$; nous traçons $\frac{d}{H}$ en fonction de Q_w pour différentes valeurs de Q_g (cf. figure 2.18 gauche). Notons que chaque point sur cette figure correspond à une valeur différente quelconque de $\frac{dP}{dx}$, à laquelle nous nous intéresserons un peu plus loin.

Comme prévu théoriquement, tous les points se regroupent sur une courbe maîtresse lorsque nous traçons $\frac{d}{H}$ en fonction de $q = \frac{Q_g}{Q_w}$ (cf. figure 2.18 droite). Remarquons également que pour une géométrie donnée, la transition entre jet $2D$ et $3D$ a lieu à une valeur donnée de q , appelée ici q^{theo} .

Nous traçons ensuite cette courbe maîtresse pour différentes géométries, et comparons ce modèle numérique aux largeurs mesurées expérimentalement sur ces mêmes géométries, lorsque l'expérience est menée dans le sens des Q_w croissants :

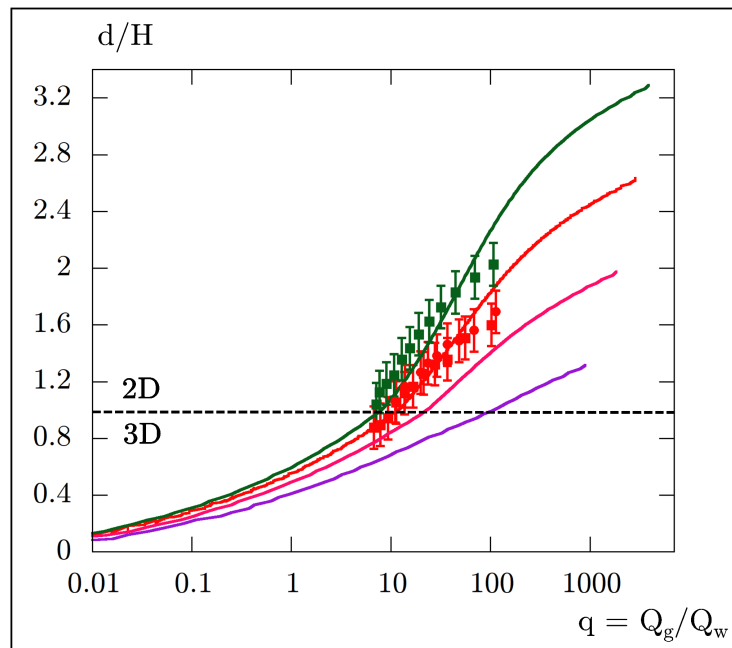


FIGURE 2.19 – Variation de $\frac{d}{H}$ avec $q = \frac{Q_g}{Q_w}$, calculée numériquement (lignes continues) en utilisant la même hauteur $H = 76 \mu m$, mais différentes valeurs de largeur du canal W_c : 100 (violet), 150 (rose), 200 (rouge) ou 250 (vert) μm . Valeurs obtenues numériquement pour les expériences avec $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 200 \mu m$ (■), $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 250 \mu m$ (■), et $P_g = 1.4$ bar et $W_c = 200 \mu m$ (●). Les lignes s'arrêtent au point correspondant à $d = W_c$.

La figure 2.19 montre que pour les deux géométries utilisées dans nos expériences, $W_c = 200 \mu m$ et $W_c = 250 \mu m$, les points expérimentaux correspondent plutôt bien à la courbe maîtresse numérique, et ce quelle que soit la pression P_g imposée.

Seul le dernier point, qui correspond au Q_w le plus faible et donc au jet le plus large, dévie de la courbe maîtresse, qui sur-estime la largeur du jet. Ceci est probablement dû aux effets

du film de Bretherton négligés dans le modèle, ces films augmentant en épaisseur quand le jet devient plus large. Il est néanmoins déjà remarquable qu'un modèle aussi simpliste corresponde aussi bien aux expériences. Nous pouvons en conclure que notre modèle nous permet de décrire le régime jet, et donc l'expérience quand elle est menée dans le sens des Q_w croissants. Voyons maintenant ce que nous pouvons dire sur l'expérience menée dans le sens des Q_w décroissants.

2.2.3 Limite géométrique du débit fractionnaire de gaz

Les résultats des simulations numériques montrent que la largeur adimensionnée $\frac{d}{H}$ du jet de gaz dépend du rapport $q = \frac{Q_g}{Q_w}$ et donc du débit fractionnaire $f_g = \frac{q}{1+q}$. De plus, il existe un débit fractionnaire critique de gaz $f_g^{theo} = \frac{q^{theo}}{q^{theo}+1}$ pour lequel le jet passe d'une géométrie $2D$ -confinée à $3D$ -non confinée. Or, nous avons vu en introduction du chapitre qu'un jet de gaz ne devient instable que quand il devient $3D$ -non confiné, et qu'un jet $2D$ -confiné est toujours stable. Il en découle que, pour une géométrie donnée, il existe un débit fractionnaire seuil de gaz $f_g^{theo} = \frac{q^{theo}}{q^{theo}+1}$ au dessus duquel la formation de bulles n'est jamais possible car, dans ce cas, un jet $2D$ -confiné donc stable est formé.

Nous pouvons également déduire de la figure 2.19 que pour une valeur donnée de H , le point f_g^{theo} est une fonction décroissante de W_c .

En faisant varier continûment la géométrie de notre canal, nous pouvons tracer la courbe suivant :

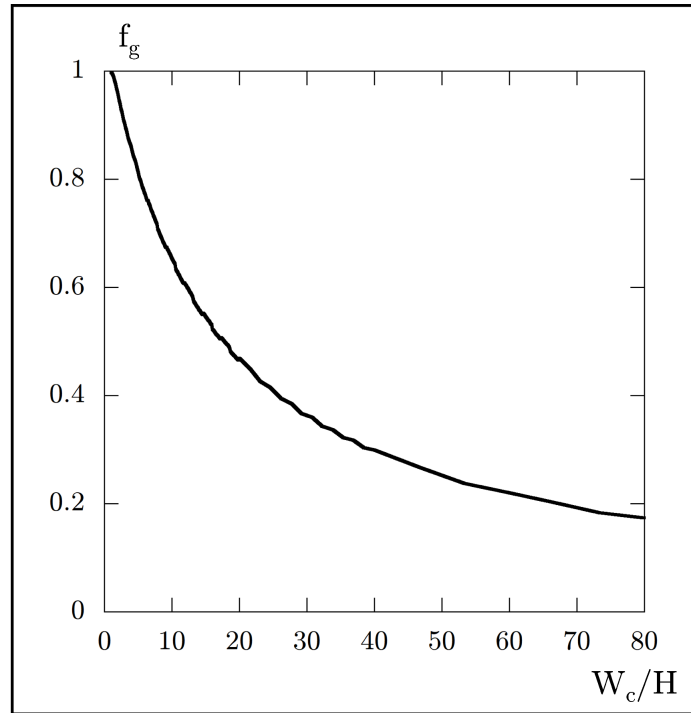


FIGURE 2.20 – Variation de f_g^{theo} avec le rapport $\frac{W_c}{H}$ caractérisant le rapport d'aspect du canal rectangulaire de production de bulles, calculé pour $H = 76 \mu m$.

Il existe donc un débit fractionnaire f_g^{theo} qui, pour une géométrie de pore donnée, est une borne supérieure du débit fractionnaire de gaz de toute mousse qu'il pourrait générer, quel que soit le gradient de pression appliqué. Un canal de profil carré pourra en théorie générer une mousse extrêmement sèche, tandis qu'un canal plus asymétrique sera limité en terme de qualité de mousse pouvant être générée.

Nous avons vérifié expérimentalement qu'il était impossible de générer une mousse plus sèche que cette limite intrinsèque du système. Pour cela, nous avons essayé de générer la mousse avec le débit fractionnaire de gaz le plus élevée possible, en menant donc l'expérience dans le sens des Q_w décroissants (i.e. en partant du régime *II*). Cette fraction maximale atteinte, qui correspond à la transition ayant lieu au débit d'eau $Q_w = Q_{II \rightarrow I}$, est appelée comme nous l'avons déjà vu f_g^* .

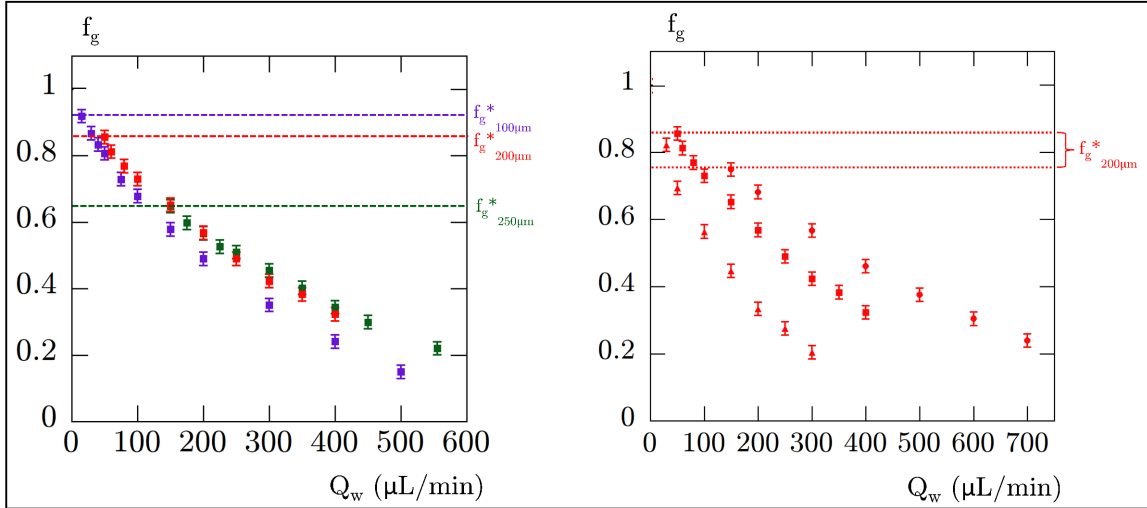


FIGURE 2.21 – Gauche : variation de f_g lors de la phase à Q_w décroissant, pour 3 expériences avec le même $P_g = 1.3$ bar mais 3 différents W_c : $100 \mu\text{m}$ (■), $200 \mu\text{m}$ (■) et $250 \mu\text{m}$ (■). Droite : variation de f_g lors de la phase à Q_w décroissant, pour 3 expériences avec le même $W_c = 200 \mu\text{m}$ mais 3 différents P_g : 1.2 bar (▲), 1.3 bar (■) et 1.4 bar (●).

Nous constatons sur la figure 2.21 à droite que pour une géométrie donnée, la valeur de f_g^* semble peu dépendre de la pression P_g appliquée. En revanche, elle est fortement affectée par la géométrie du flow-focusing, en l'occurrence par la largeur du canal W_c (voir figure 2.21 gauche).

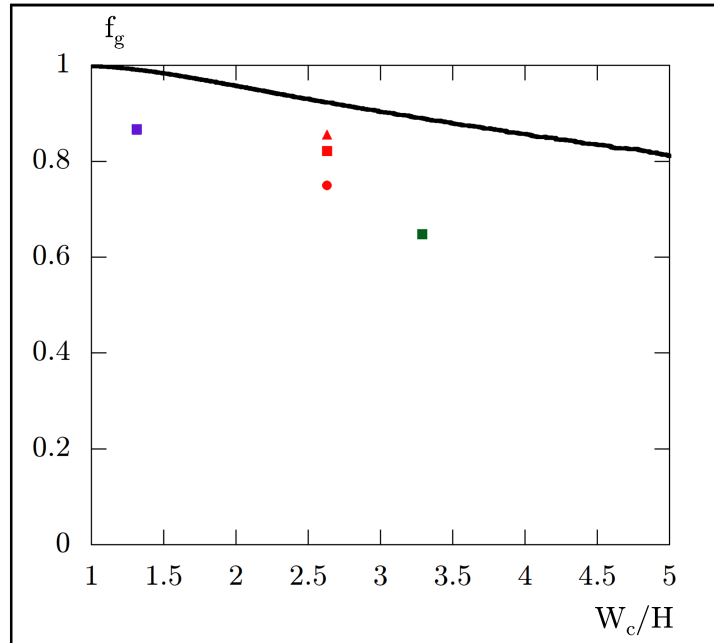


FIGURE 2.22 – Variation de f_g^{theo} (ligne noire) et f_g^* mesurée pour nos 5 expériences (en utilisant les mêmes couleurs et symboles que pour la figure 2.21) avec le rapport $\frac{W_c}{H}$ caractérisant le rapport d'aspect du canal rectangulaire de production de bulles.

Nos valeurs expérimentales de f_g^* sont bien systématiquement en dessous de la valeur limite théorique f_g^{theo} , comme nous pouvons le constater sur la figure 2.22. De plus, elles semblent varier de manière similaire avec W_c/H .

Notons tout de même que cette valeur de f_g^* peut varier quelque peu d'une expérience à l'autre, notamment du fait que, comme nous le voyons sur la figure 2.21, la pente de la courbe $f_g = f(Q_w)$ augmente fortement quand Q_w diminue et que nous nous rapprochons de la transition. Il en découle qu'il est nécessaire de faire varier extrêmement lentement Q_w , et même, idéalement, infiniment lentement. De plus, proche de la transition, le montage expérimental est très sensible à toute vibration parasite extérieure.

2.2.4 Explication du phénomène de bistabilité - rétroaction hydrodynamique

En observant sur les figures 2.10 et 2.14 la texture de la mousse la plus sèche obtenue, nous voyons que pour nombre d'expériences, cette dernière est constituée de bulles ne se touchant aucunement. Ceci rend logiquement caduque le scénario souvent avancé, par exemple dans [38], d'une coalescence soudaine des bulles suite au dépassement d'une pression capillaire critique.

Nos observations nous amènent à envisager une autre explication possible du mécanisme physique gouvernant cette transition. Comme nous l'avons vu, un des paramètres clés pour comprendre la transition entre le régime jet (*I*) et le régime bulles (*II*) est la largeur du jet dans la constriction,

d. Cependant, la solution numérique du système requiert deux variables en entrée : d , mais aussi le gradient de pression dans le canal $\frac{dP}{dx}$ (rappelons qu'en régime stationnaire, ce gradient de pression est uniforme et identique dans le liquide et le gaz).

Nous pouvons extraire de nos simulations numériques la variation de $\frac{d}{H}$ avec $\frac{dP}{dx}$ pour différentes valeurs de Q_w (figure 2.23 gauche) :

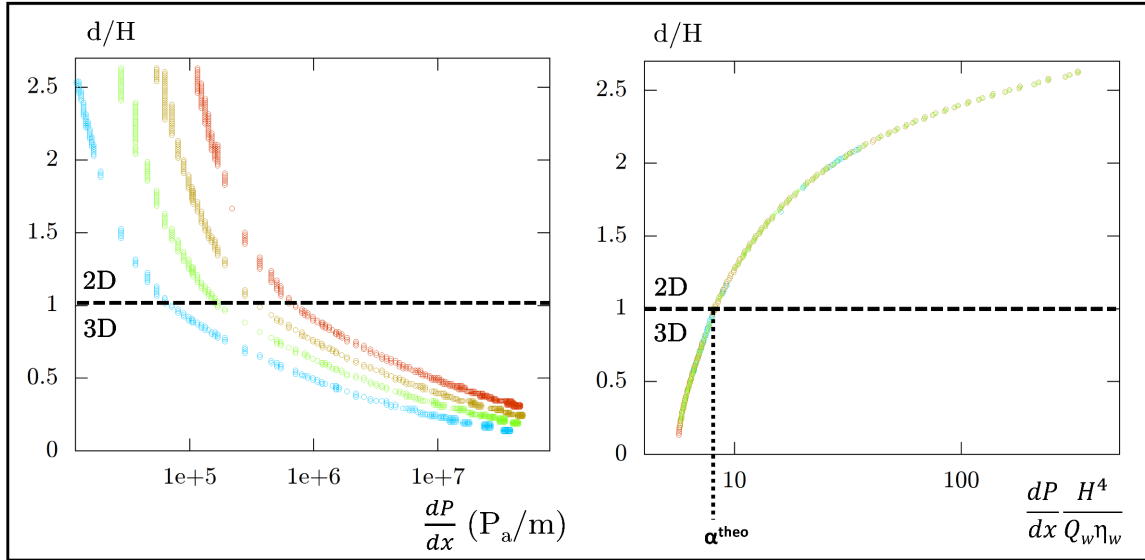


FIGURE 2.23 – Gauche : variation de $\frac{d}{H}$ avec $\frac{dP}{dx}$, calculée numériquement en utilisant la même hauteur $H = 76 \mu m$ et largeur du canal $W_c = 200 \mu m$, mais différentes valeurs de Q_g : 200 (\circ), 500 (\circ), 1000 (\circ) et 2000 (\circ) $\mu L/min$. Droite : variation de $\frac{d}{H}$ avec $(\frac{dP}{dx}) \frac{H^4}{\eta_w Q_w}$, calculée numériquement en utilisant la même hauteur $H = 76 \mu m$ et largeur du canal $W_c = 200 \mu m$, et les mêmes Q_g que la figure de gauche. α^{theo} est la valeur pour laquelle $d = H$.

Nous constatons que lorsque la valeur de Q_g est fixée, la largeur du jet est une fonction décroissante du gradient de pression.

Comme prévu par l'analyse numérique du système, lorsque nous traçons $\frac{d}{H}$ en fonction de $(\frac{dP}{dx}) \times \frac{H^4}{\eta_w Q_w}$, une courbe maîtresse apparaît (cf. figure 2.23 droite).

Cette courbe montre que pour une géométrie et une valeur donnée de Q_w , il existe un gradient de pression local $\Delta P^{theo} = \alpha^{theo} \frac{\eta_w Q_w L}{H^4}$ qui détermine si le jet 2D-confiné peut exister ou non.

Nous traçons ensuite cette courbe maîtresse pour différentes géométries :

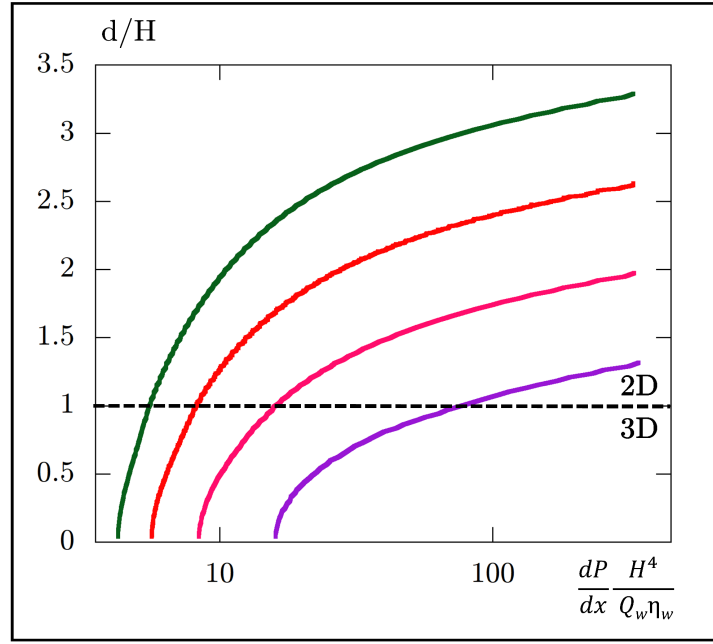


FIGURE 2.24 – Variation de $\frac{d}{H}$ avec $\left(\frac{dP}{dx}\right) \frac{H^4}{\eta_w Q_w}$, calculée numériquement en utilisant la même hauteur $H = 76 \mu m$, mais différentes valeurs pour la largeur du canal W_c : 100 (violet), 150 (rose), 200 (rouge) ou 250 (vert) μm .

La valeur de α^{theo} dépend de l'asymétrie de la constriction i.e. du rapport $\frac{W_c}{H}$, comme le montre la figure 2.24. Lorsque $\Delta P \leq \Delta P^{theo}$, un jet dans ces conditions expérimentales serait 3D-non confiné et se déstabiliserait pour former des bulles sous l'effet de l'instabilité de Rayleigh-Plateau, et lorsque $\Delta P > \Delta P^{theo}$, le jet serait 2D-confiné et donc stable.

Un paramètre clé pour comprendre notre expérience est donc le gradient de pression local dans le canal où est éventuellement générée la mousse, c'est à dire dans la constriction. Or, ce gradient de pression $\left(\frac{dP}{dx}\right)_c$ est influencé par le gradient de pression en aval dans le canal principal, $\left(\frac{dP}{dx}\right)_m$, là où s'écoule le jet ou la mousse. En effet, la pression de gaz imposée à l'entrée P_g est fixe, tout comme la pression de la sortie $P_0 = P_{atm}$. Une augmentation (respectivement une diminution) de ΔP_m va donc induire une diminution (respectivement une augmentation) de ΔP_c . Ceci n'est cependant que qualitatif, car une détermination quantitative de ΔP_c en fonction de ΔP_m nécessiterait de tenir compte des pertes de charge additionnelles dues notamment à l'écoulement dans les canaux d'alimentation en amont, ce qui n'est pas facile.

Or nous avons constaté que la présence de mousse en écoulement dans le canal principal augmente considérablement la perte de charge dans ce dernier -et diminue donc le gradient de pression dans la constriction-, comparé au cas de l'écoulement d'un jet. Cette valeur de ΔP_c faible explique que l'on observe une mousse, car un jet dans ces conditions serait 3D-non confiné et donc instable. Cependant, si Q_w est davantage réduit, la valeur de $\Delta P_c^{theo} = \alpha^{theo} \frac{\eta_w Q_w L_c}{H^4}$ décroît, si bien que ΔP_c peut devenir supérieur à ΔP_c^c , le jet est alors stable et aucune mousse n'est plus générée. C'est probablement ce qui explique que la transition dans le sens des Q_w décroissants

n'a lieu qu'à $Q_w = Q_{II \rightarrow I} < Q_w = Q_{I \rightarrow II}$, et qui explique donc la présence d'une zone bistable : l'hystérèse provient du fait que la mousse déjà générée et en écoulement en aval a une influence sur les conditions de génération de la mousse en amont, au niveau de la constriction, au travers du gradient de pression local.

Selon ce mécanisme qualitatif, dans nos expériences, la fin de la production de mousse que nous observons quand celle-ci s'assèche (i.e. la transition $II \rightarrow I$) résulterait d'une boucle de rétroaction hydrodynamique ("feedback") et non de la coalescence des bulles entre elles lorsqu'elles se touchent.

Il existe de nombreux exemples de processus de rétroaction hydrodynamique, par exemple dans le phénomène de trafic de gouttes à une jonction en T [39, 40] ou dans des phénomènes multiphasiques observés sur l'écoulement de micro-gouttes [41], mais aussi leur fragmentation sur des obstacles [42]. De tels processus de rétroaction sont également observés dans les mousses produites avec des dispositifs microfluidiques de flow-focusing ou de jonction en T. Ils mènent par exemple à des phénomènes d'hystérèse de transition topologique de mousses en faisant varier la pression de gaz à débit d'eau constant [29], à la génération de bulles instables [34], et même à des phénomènes similaires d'hystérèse de formation [43]. Dans ces trois cas comme dans le nôtre, l'action rétroactive de l'écoulement s'écoulant en aval affecte le processus de création des bulles s'opérant en amont.

2.2.5 Pertinence du modèle pour l'étude de l'écoulement de mousse en milieu poreux

Voyons maintenant ce que notre étude peut nous apprendre sur la génération de mousse en milieu poreux.

Nous représentons pour cela, comme dans la littérature industrielle qui étudie l'injection de mousse dans des milieux poreux réels ou modèles, la viscosité effective η_{eff} de la mousse en écoulement en fonction de f_g . Cette valeur est le rapport entre la viscosité de la mousse ou du jet en écoulement (déterminée expérimentalement à partir de la mesure du débit total $Q_{tot} = Q_g + Q_w$ et de la perte de charge dans le canal principal ΔP) et la viscosité de l'eau pure en écoulement dans le même canal, déterminée grâce à la formule de la résistance hydrodynamique d'un fluide newtonien en écoulement dans un canal rectangulaire pour laquelle ($H \ll W$) [44] :

$$R_h = \frac{12\eta_w L_p}{H^3 W_m (1 - 0.63 \frac{H}{W_m})} \quad (2.9)$$

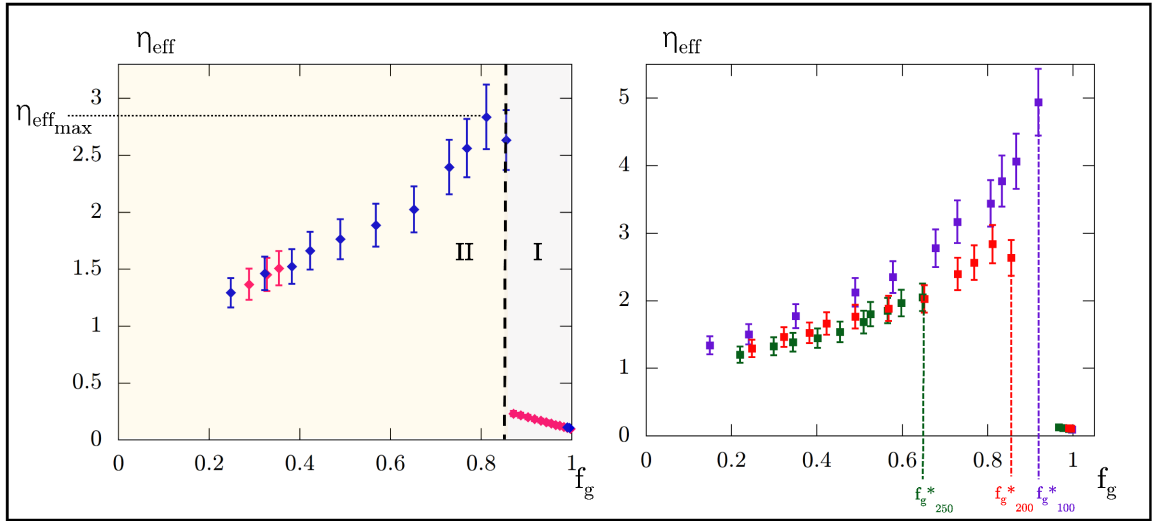


FIGURE 2.25 – Gauche : évolution de la viscosité effective à différents f_g dans la phase à Q_w décroissant (bleu) ou croissant (rose) pour l'expérience avec $P_g = 1.3$ bar et $W_c = 200 \mu m$. Droite : évolution de la viscosité effective à différents f_g dans la phase à Q_w décroissant pour 3 expériences avec la même valeur de $P_g = 1.3$ bar mais 3 différentes valeurs de W_c : $100 \mu m$ (■), $200 \mu m$ (■) et $250 \mu m$ (■).

Comme le montre la figure 2.25 à gauche, dans la phase à Q_w décroissant de nos expériences (en bleu) la viscosité effective du co-écoulement présente une valeur maximale η_{eff}^{max} . Nous observons que la viscosité effective de la mousse augmente quand elle devient plus sèche, jusqu'à un point où la mousse devient un jet continu de gaz, la valeur de η_{eff} chutant alors fortement. Remarquons également que pour l'expérience avec $W_c = 200 \mu m$, la valeur de η_{eff}^{max} est atteinte pour une valeur de f_g un peu plus faible que f_g^* .

Cette transition $I \rightarrow II$ est assez similaire à celle observée dans les milieux poreux entre les régimes de haute et de basse qualité [10].

Comme nous l'avons vu dans le chapitre d'introduction, l'explication historiquement avancée par Kathib *et al* [22] pour expliquer cette brusque chute de viscosité est que cette valeur de f_g^* correspond au moment où la pression capillaire dans la mousse atteint la pression capillaire critique. Les bulles commencent alors à coalescer et vont finalement former des jets de gaz continus dont la viscosité effective est évidemment très faible.

Nous avons cependant vu que cette explication ne peut s'appliquer dans notre cas, puisque dans nombre de nos expériences, à l'approche de la transition II/I , les bulles ne sont pas en contact et ne peuvent donc coalescer. A notre avis, dans notre dispositif, lorsque f_g atteint la valeur f_g^* , la génération de bulles cesse dans la constriction. En effet lors du processus de création d'une bulle, la largeur du cou dans la constriction décroît jusqu'au pincement. Un tel pincement se crée uniquement si la largeur qu'atteindrait ce cou en régime stationnaire (dont la valeur dépend du débit de liquide et de la perte locale de charge) serait inférieure à la hauteur de la constriction.

Dans nos expériences, nous pensons que lorsque f atteint la valeur f_g^* , du fait de la présence de bulles en aval, la perte locale de charge dans la constriction devient inférieure à la perte de charge locale critique pour laquelle cette largeur stationnaire du jet devient égale à la hauteur H du canal. Dans ce cas, la largeur stationnaire du cou dans la constriction est supérieure à H , un jet $2D$ -confiné (et donc stable) se forme et il n'y a donc plus pincement et donc plus de production de bulles. Suivant ce scénario, la chute de perte de charge observée dans le canal en aval résulterait alors d'une absence de génération de mousse, et non de la destruction de celle-ci par coalescence.

2.3 Conclusion

En conclusion, nous avons étudié la formation de mousse par un dispositif microfluidique à pore unique en co-injectant du gaz et du liquide à respectivement pression et débit contrôlé. Comme précédemment observé dans la littérature par de nombreux auteurs [45, 46], nous avons identifié deux régimes hydrodynamiques de ce co-écoulement : un régime de production de bulles monodisperses, et un régime d'écoulement d'un jet de gaz stable. Comme théoriquement prédit [30, 47, 48], nos expériences confirment qu'un tel jet n'est observé que lorsque celui-ci possède une largeur supérieure à la hauteur du canal.

Les expériences de variation cyclique de débit de liquide Q_w tout en maintenant la pression de gaz P_g constante ont montré que la transition entre ces deux régimes présentait une hystérèse, avec présence d'une zone bistable pour des débits intermédiaires, ce qui constitue la nouveauté principale de nos résultats. En utilisant un modèle hydrodynamique très simple pour décrire l'écoulement du jet de gaz, nous avons identifié les paramètres physiques sans dimension qui contrôlent sa géométrie et donc sa stabilité. L'étude numérique de ce modèle a montré l'existence d'une valeur critique de gradient de pression local dans la constriction qui détermine si un jet $2D$ -confiné et donc stable peut se former ou non. La valeur de ce gradient de pression dans la constriction étant liée au gradient de pression généré par la mousse en écoulement en aval, nous pensons que le phénomène d'hystérèse résulte probablement d'un effet de rétroaction hydrodynamique.

Notre étude numérique a également montré l'existence d'un débit fractionnaire de gaz limite f_g^{theo} au-delà duquel une mousse ne peut plus être formée par un pore d'une géométrie donnée, fraction qui diminue avec l'asymétrie de cette dernière. Il est donc pertinent, si l'on souhaite générer une mousse la plus sèche possible, d'adopter une section de canal carrée. Notons que Raven *et al.* [29] étaient parvenus à cette même conclusion.

Finalement, les conclusions tirées de notre étude sur une géométrie très simpliste ont été comparées aux résultats obtenus sur des injections en milieu poreux. Nous avons pu voir que la chute de viscosité observée dans ceux-ci, qui est généralement attribuée à la coalescence des bulles et

à la destruction de la mousse, pourrait en fait être attribué -au moins en partie- à un arrêt de la génération de bulles lors de l'écoulement dans le milieu poreux à cause d'un gradient de pression local trop faible.

Ce travail a fait l'objet d'une publication (ACS Omega, 2024) (voir la liste des publications [2]).

3 Étude de l'influence de l'ajout d'un additif anti-mousse sur le cycle d'hystérèse

3.1 Aspects expérimentaux

Maintenant que l'influence de la géométrie du milieu poreux sur la génération de mousse est mieux comprise, nous nous intéressons à l'impact de la physico-chimie, c'est à dire des tensio-actifs et additifs utilisés. Nous avons fait pour cela le choix de reprendre la base du système de précédent, soit de l'eau déminéralisée à laquelle nous ajoutons 1 g/L de NaCl (Sigma Aldrich) et 10 g/L (1% en masse) de *Tween* 20 (Fisher Scientific), mais en ajoutant cette fois du butan-1-ol (Sigma Aldrich) à 7 % en masse (proche de la limite de solubilité du butanol dans l'eau). L'ajout de cet alcool de viscosité à 22°C de 2.8 mPa.s et de tension de surface $\gamma_{but} = 24.8 \text{ mN/m}$ fait augmenter la viscosité de notre solution à 1.1 mPa.s (mesurée avec l'appareil *Rheometer Low shear* 400 de Lamy rheology) et chuter la tension de surface à 25.6 mN/m (mesurée avec l'appareil de tensiométrie dit à goutte pendante Tracker de Teclis, France). L'ajout de cet alcool court, usuellement qualifié "d'anti-mousse", à la solution, devrait avoir un effet fort sur les résultats observés et pourrait nous apporter des informations sur l'influence de la physico-chimie sur les processus de génération de mousse en milieu poreux.

Nous utilisons un montage en tout point similaire, mis à part que cette fois la puce a une hauteur de $H = 63 \text{ }\mu\text{m}$, et une constriction de largeur $W_c = 150 \text{ }\mu\text{m}$ et de longueur $L_c = 325 \text{ }\mu\text{m}$.

Nous effectuons à deux reprises l'expérience de diminution et d'augmentation de débit de liquide Q_w tout en maintenant une pression P_g constante, une fois avec la solution ne contenant pas de butanol et une fois avec celle qui en contient.

3.2 Résultats et analyses

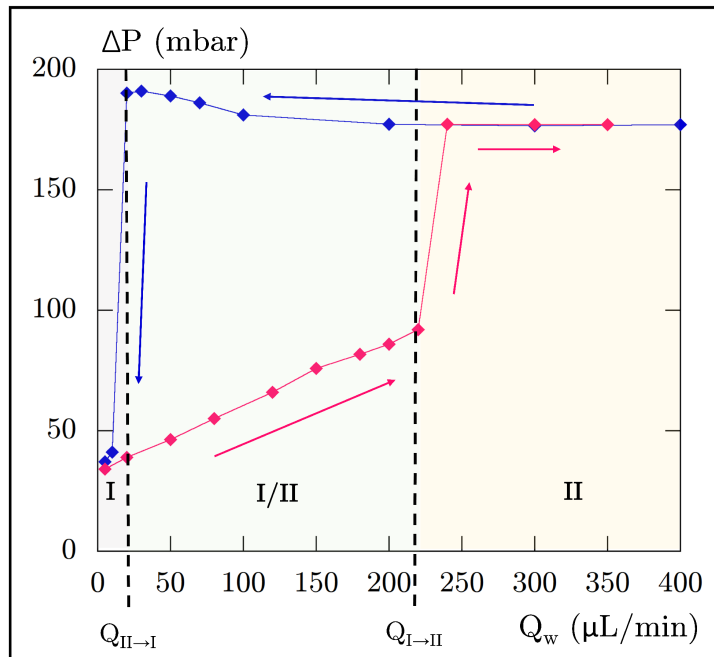


FIGURE 2.26 – Pour l'expérience conduite avec 0% de butanol, variation de pression mesurée sur une longueur $L_p = 1.7 \text{ cm}$ du canal principal, en maintenant la pression $P_g = 1.3 \text{ bar}$ fixée et en augmentant (rose) ou diminuant (bleu) le débit de liquide Q_w .

Le comportement (voir figure 2.26) est évidemment très proche de celui que nous avons mis en évidence précédemment, avec l'existence d'un régime jet (*I*) à Q_w faible, d'un régime bulles (*II*) à Q_w élevé, d'un régime bistable pour les valeurs intermédiaires de Q_w , avec un régime *I* quand Q_w est ascendant et un régime *II* quand Q_w est descendant. Nous remarquons aussi que pour générer une mousse sèche conduisant à des pertes de charge élevées dans le canal principal, il convient de diminuer la valeur Q_w , à partir du régime *I*.

Cependant, le comportement observé est très différent quand nous ajoutons une grande quantité de butanol, dont nous nous attendons à priori à ce qu'il déstabilise la mousse :

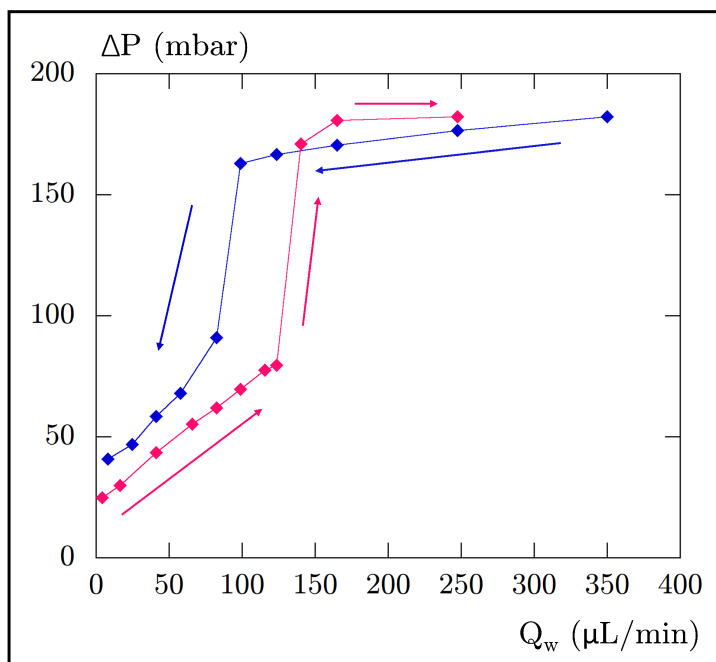


FIGURE 2.27 – Pour l'expérience conduite avec 7% de butanol, variation de pression mesurée sur une longueur $L_p = 1.7 \text{ cm}$ du canal principal, en maintenant la pression $P_g = 1.3 \text{ bar}$ fixée et en augmentant (rose) ou diminuant (bleu) le débit de liquide Q_w .

Nous remarquons principalement sur la figure 2.27 deux choses :

(a) dans la phase descendante (bleu), nous ne générons pas de mousse produisant une perte de charge élevée dans le canal principal, même pour des Q_w faibles (et donc des plus faibles quantités d'eau injectées dans le dispositif).

(b) le cycle d'hystérèse est "réduit en largeur", et ce parce que le saut de perte de charge dans la phase ascendante (rose) se produit d'une part pour $Q_w \simeq 125 \mu\text{L}/\text{min}$ au lieu de $Q_w \simeq 240 \mu\text{L}/\text{min}$, mais aussi parce que le saut de perte de charge dans la phase descendante (bleu) a lieu pour un $Q_w \simeq 100 \mu\text{L}/\text{min}$ au lieu de $Q_w \simeq 20 \mu\text{L}/\text{min}$.

Le point (a) est plutôt attendu : le butanol a bien un effet néfaste sur la mousse et empêche la formation de mousse sèche et "forte" (i.e. à viscosité effective élevée). Nous pouvons proposer une explication en terme de pression de disjonction : le butanol ferait grandement baisser cette valeur, et la coalescence des bulles conduisant à la formation d'un jet de gaz se produirait alors pour des fractions de gaz plus faibles.

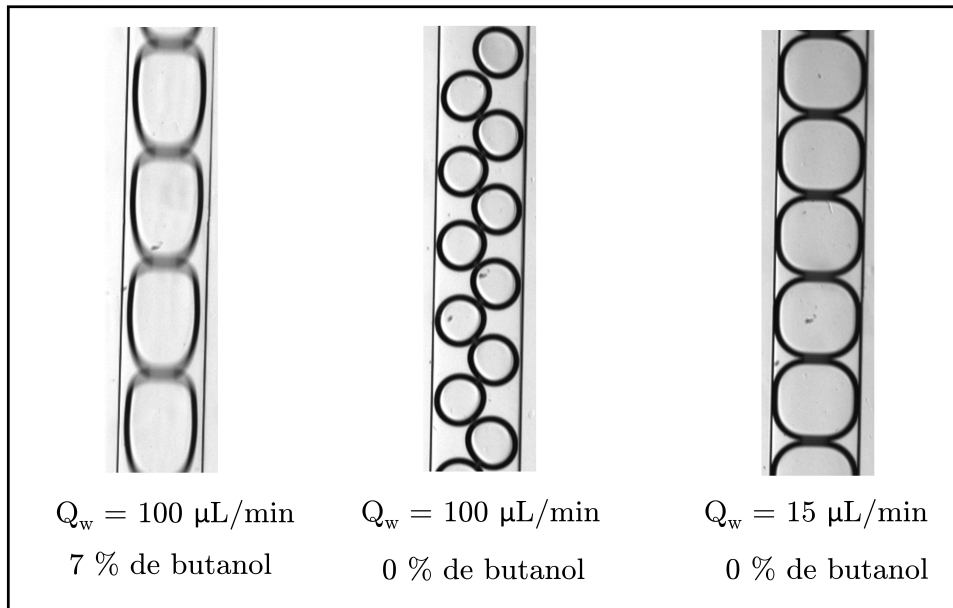


FIGURE 2.28 – Comparaison de l’allure des bulles à différents Q_w pour différentes expériences. N.B. : la fréquence de production des bulles et leur vitesse sont environ deux fois plus élevées dans l’expérience avec 7% de butanol que dans celle avec 0% de butanol.

Cela est également confirmé par l’observation des bulles générées (voir figure 2.28) : la mousse la plus sèche générée sans butanol (à $Q_w = 15 \mu L/min$) est constituée de bulles symétriques et au contact les unes des autres, tandis que la mousse la plus sèche générée avec butanol (à $Q_w = 100 \mu L/min$) est constituée de bulles plus asymétriques et très peu au contact (attention, l’image peut être trompeuse en raison d’un nombre d’images par seconde trop petit). Ces bulles s’écoulent également environ deux fois plus vite et sont générées environ deux fois plus rapidement. Remarquons également que la texture de la mousse générée dans les mêmes conditions d’écoulement (c’est à dire avec les mêmes valeurs de Q_w et de P_g) est très différente suivant la composition du liquide utilisé.

Comme nous le verrons au chapitre 3, l’asymétrie des bulles observée entre l’avant et l’arrière de celles-ci pour la solution liquide contenant du butanol indique l’existence d’effets Marangoni générés par cet additif.

Cette tendance des bulles à coalescer facilement quand elles entrent en contact lorsque du butanol est ajouté à la phase liquide explique le changement du saut dans la phase descendante, c’est à dire la transition bulle-jet ($II \rightarrow I$) (voir point (b)).

Cependant cela n’explique pas le changement du saut dans la phase ascendante, c’est à dire la transition jet-bulle ($I \rightarrow II$). Il semble que le jet soit lui aussi "plus instable" suite à l’ajout de butanol. Ce comportement très inattendu a été étudié en détail et fait l’objet du chapitre 3.

En conclusion de cette étude, nous pouvons dire que l'ajout d'un additif anti-mousse -le butanol- dans la phase liquide a pour effet d'à la fois déstabiliser la mousse (c'est à dire de favoriser la coalescence des bulles et donc d'empêcher la formation de mousse "forte") et de déstabiliser le jet de gaz (et donc de favoriser la formation de mousse).

4 Étude de l'influence du changement de tensioactif

4.1 Aspects expérimentaux

Les tensioactifs réellement utilisés sur champ et donc dans les études menées sur des milieux poreux réels ou modèles ne sont pas les tensioactifs classiques utilisés lors des études académiques menées en milieu universitaire tels que le *Tween 20*, le SDS, etc. En effet, ceux-ci sont très peu efficaces en milieu poreux pour générer une mousse forte. Des mélanges commerciaux dont la composition n'est pas toujours précisément connue sont privilégiés. Un exemple classique est la famille des Olefin Sulfonate, nommés AOS ou IOS suivant la position du groupe sulfonate (voir figure 2.29). Ces tensioactifs sont anioniques, contrairement au *Tween 20* qui est non-ionique. Il faut noter que la concentration micellaire critique (CMC) de ces tensioactifs est environ 5 à 10 fois supérieure à celle du *Tween 20* (qui vaut environ 100 ppm).

Dans la suite de notre étude, nous utilisons notre dispositif microfluidique afin de caractériser et comparer le comportement des écoulements biphasiques gaz/liquide en présence de ces différentes molécules. L'objectif est de vérifier si ce test de laboratoire peu coûteux, facile d'utilisation et rapide peut permettre de les discriminer en vue d'applications sur champ.

Tensioactif	Abbréviati	Fournisseur	INCI	M (g/mol)
PETROSTEP C5	PC5	Stepan	α -olefin-sulfonate C12-C14 (AOS)	~ 300
PETROSTEP C1E	PC1E		α -olefin-sulfonate C14-C16 (AOS)	
PETROSTEP S2	PS2		Internal olefin sulfonate C15-C18 (IOS)	
Tween 20	T20	Crodia	Polyoxyéthylène-20-Sorbitan Monolaurate	1227,5

AOS : de 12 à 14 carbones

AOS : de 14 à 16 carbones

IOS : de 15 à 18 carbones, le groupe sulfonate pouvant se situer n'importe où

Polyoxyéthylène-20-Sorbitan Monolaurate

$w+x+y+z=20$

FIGURE 2.29 – Présentation des différents tensioactifs utilisés

Nous préparons à chaque fois une solution d'eau déminéralisée à laquelle nous ajoutons 1 g/L de NaCl (Sigma Aldrich) et 1% en masse d'un des tensioactifs : AOS C1, AOS C5 ou IOS S2.

Le montage utilisé est exactement identique à celui utilisé dans la partie précédente (3).

4.2 Résultats et analyses

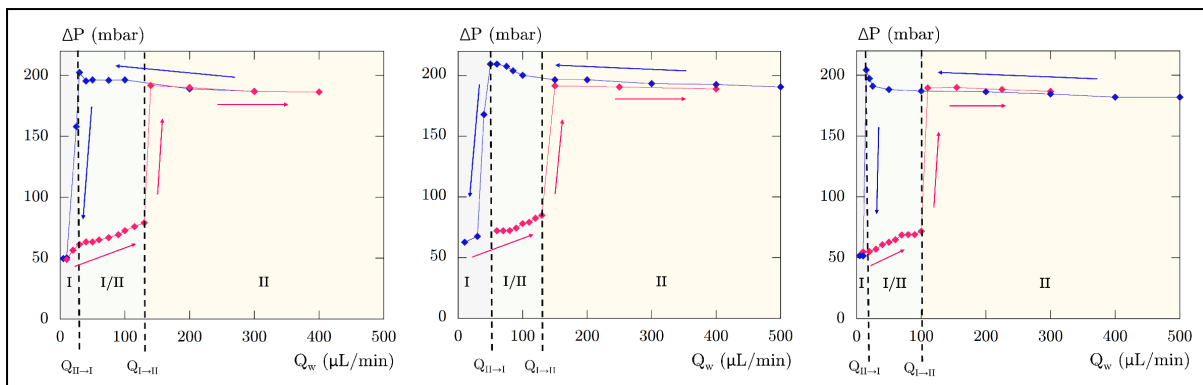


FIGURE 2.30 – Variation de perte de charge mesurée sur une longueur $L_p = 1.7 \text{ cm}$ du canal principal, en maintenant la pression $P_g = 1.3 \text{ bar}$ fixée et en augmentant (rose) ou diminuant (bleu) le débit de liquide Q_w , pour l'expérience conduite avec des solutions d'AOS C1 (gauche), d'AOS C5 (milieu) et d'IOS S2 (droite).

Les trois cycles sont très similaires (voir figure 2.30), la perte de charge mesurée en régime bulle variant entre 180 mbar dans la zone plus humide et 220 mbar dans la zone plus sèche, et entre 50 et 80 mbar environ en régime jet. Les seules différences notables sont les valeurs de $Q_{I \rightarrow II}$ et de $Q_{II \rightarrow I}$, un peu plus faibles dans l'expérience avec IOS S2.

La comparaison avec l'expérience réalisée avec du *Tween* 20 (et sans butanol) (voir figure 2.26) montre un comportement très similaire en régime mousse (*II*) mais des différences plus marquées pour le régime jet (*I*) : la valeur de $Q_{I \rightarrow II}$ est d'environ $240 \mu\text{L}/\text{min}$ avec le *Tween* 20 mais de seulement $100 - 120 \mu\text{L}/\text{min}$ avec les AOS/IOS. Nous pouvons donc nous demander si la transition entre les régimes *I* et *II* a bien lieu lors de passage du jet dans la constriction de $2D$ à $3D$ comme cela est le cas pour l'expérience conduite avec du *Tween* 20 et sans butanol.

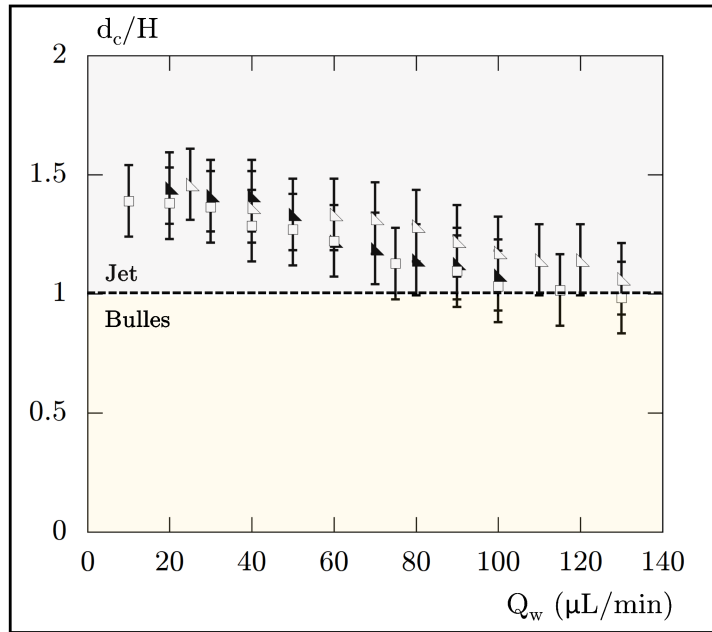


FIGURE 2.31 – Variation du rapport de la largeur du jet dans la constriction sur la hauteur du canal $\frac{d_c}{H}$ avec Q_w , pour les expériences avec AOS C1 (\square), AOS C5 (triangle vide) et IOS S2 (triangle plein).

À la barre d'erreur expérimentale près - barre qui est malheureusement toujours élevée pour les mesures de largeur en raison du dispositif optique qui consiste en une vue du dessus d'un jet courbé-, la transition a bien lieu lors du passage de $d_c > H$ à $d_c < H$.

Nous pouvons conclure que notre dispositif ne semble pas efficace pour discriminer les différents tensioactifs, car la mousse générée avec celui-ci en utilisant des solutions aqueuses contenant des molécules ayant un comportement très différent en milieu poreux est très similaire.

La partie suivante détaille justement les études menées sur ces tensioactifs en volume et en milieu poreux.

5 Comparaison des tensioactifs en volume et en milieu poreux modèle

Les expériences de cette partie 6 ont été réalisées en majorité par Alexia BARBE, étudiante en licence professionnelle qui a effectué un an d'alternance dans le laboratoire. En utilisant le savoir-faire développé par Alexandra Klimenko et Valérie Molinier, elle a pu étudier les mélanges de tensioactifs et additifs présentés dans les parties précédentes en volume et en milieu poreux modèle, en l'occurrence un tube de HPLC rempli de billes borosilicatées de tailles normalisées.

5.1 Moussabilité en volume

Nous étudions d'abord la moussabilité en volume des différentes solutions, toutes constituées d'eau déminéralisée à laquelle nous ajoutons 1 g/L de $NaCl$ et 1% en masse de tensioactif (*Tween 20*, AOS C1, AOS C5, IOS S2). Nous préparons également une solution à 1% en masse de *Tween 20* à laquelle nous ajoutons en plus 7% en masse de butanol.

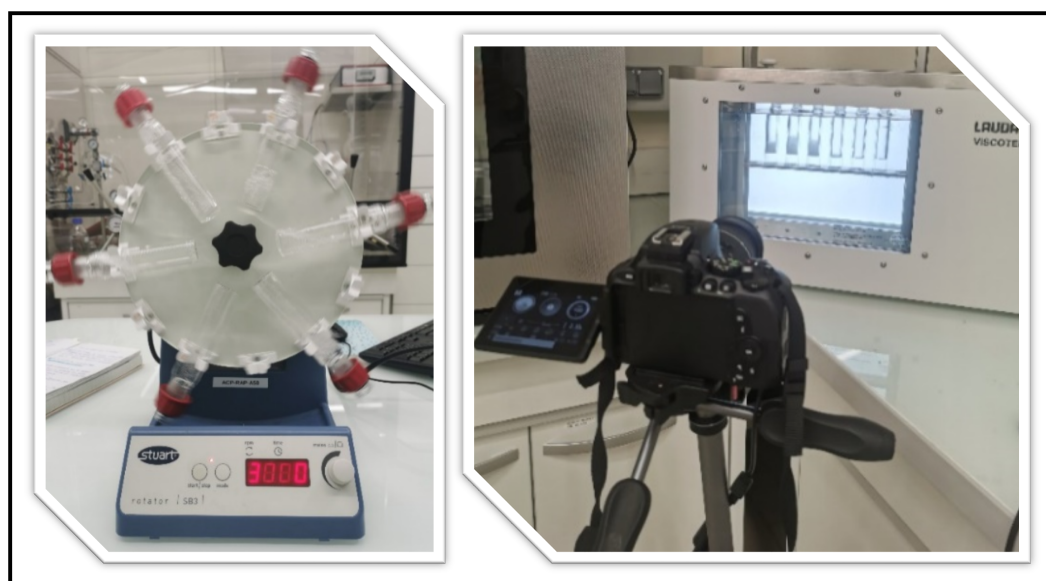


FIGURE 2.32 – Photographies du montage d'étude de moussabilité en volume : carrousel de moussage (gauche) et suivi de la hauteur de mousse (droite).

Pour faire mousser la solution, nous la plaçons dans un carrousel qui tourne pendant 30 minutes à une vitesse de 40 tours par minute. Nous plaçons ensuite (à $t = 0$) les tubes dans un bain thermostaté à $25^{\circ}C$ et filmons l'évolution de la hauteur de mousse avec un appareil photo prenant une image toutes les 30 minutes. Trois tubes de la même solution sont préparés en même temps à des fins de répétabilité.

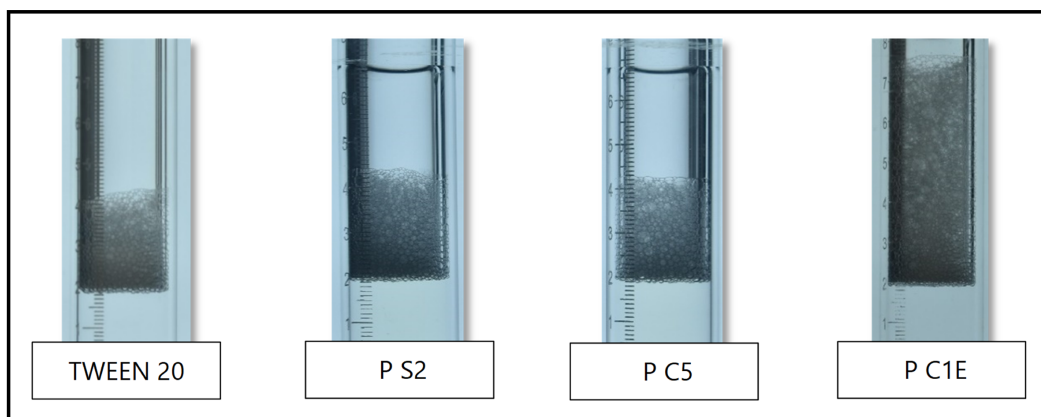


FIGURE 2.33 – Photographies de la hauteur de mousse générée à $t = 0$ pour des solutions aqueuses préparées avec les différents tensioactifs : *Tween* 20, IOS S2 (P S2), AOS C5 (P C5) et AOS C1 (P C1E).

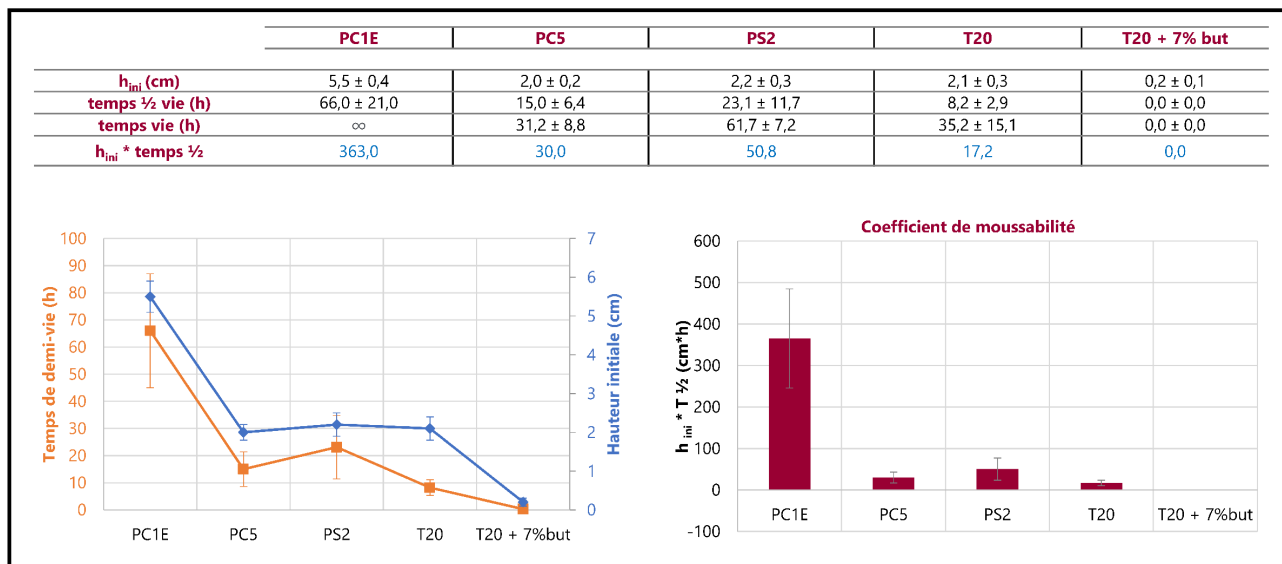


FIGURE 2.34 – Résultats du test de moussage.

La hauteur initiale de mousse est très proche dans le cas du *Tween* 20, de l'IOS S2 et de l'AOS C5, autour de 2 cm. L'AOS C1 mousse 2 à 3 fois plus. L'ajout de butanol a quant à lui complètement empêché la formation de mousse.

Le temps de demi-vie est relativement corrélé avec la hauteur initiale de mousse, nous notons cependant que le *Tween* 20 produit une mousse assez peu stable en comparaison avec les autres tensioactifs.

Un paramètre souvent utilisé pour tenir compte de ces deux critères est le coefficient de moussabilité $c_m = h \times t_{1/2}$. Nous voyons que la chaîne plus longue de l'AOS C1 améliore grandement la mousse qu'il produit par rapport à l'AOS C5 (c_m est une dizaine de fois plus grand). La position du groupe sulfonate a aussi une influence puisque l'augmentation de moussabilité due à la chaîne encore plus longue de l'IOS S2 est compensée par une diminution due à sa position centrale dans la molécule.

Nous remarquons également que la mousse produite avec l'AOS C1 est visuellement constituée de bulles plus petites et plus nombreuses comparé aux autres tensioactifs. Notons qu'il est connu [21] qu'une augmentation de la taille des bulles constituant une mousse a pour effet de faire baisser sa vitesse de mûrissement (jusqu'à l'empêcher presque complètement lorsque les bulles atteignent une taille de l'ordre du centimètre) et dans le même temps de faire augmenter sa vitesse de drainage.

5.2 Milieu poreux modèle

Le milieu poreux utilisé est constitué d'une colonne HPLC Supelco 58217 remplie sous vibrations jusqu'à ras bord de billes borosilicatées de tailles normalisées (Mo-Sci Corporation). La taille des billes utilisées est indiquée figure 2.35, et permet d'obtenir un milieu poreux de perméabilité 1.3 (ST1) , 8.8 (ST8) ou 14.2 (ST20) Darcy.

Le montage utilisé est décrit figure 2.36. Il est très similaire aux montages de microfluidique, mais à plus grande échelle, avec une pression de diazote fixe (à 8 bar, le maximum possible avec l'appareil) imposée par un contrôleur de pression Elveflow *OB1 MK3+* et un débit de liquide contrôlé par une pompe HPLC Waters. Le débit de gaz est mesuré avec un débitmètre BRONKHORST et la pression dans le milieu poreux est mesurée par un capteur placé au milieu de ce dernier.

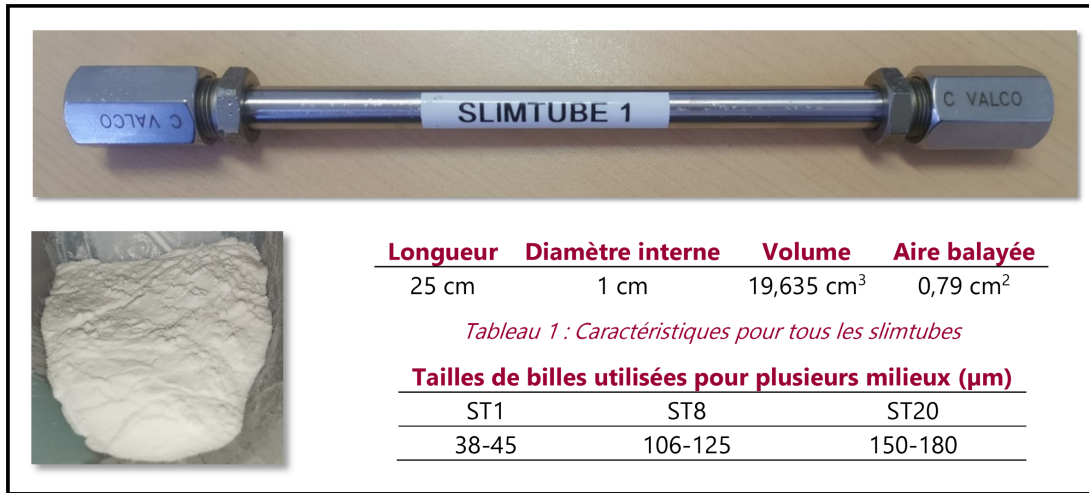


FIGURE 2.35 – Photographies du slim-tube utilisé (haut), photographie des billes utilisées (gauche) et détail de leurs caractéristiques (droite).

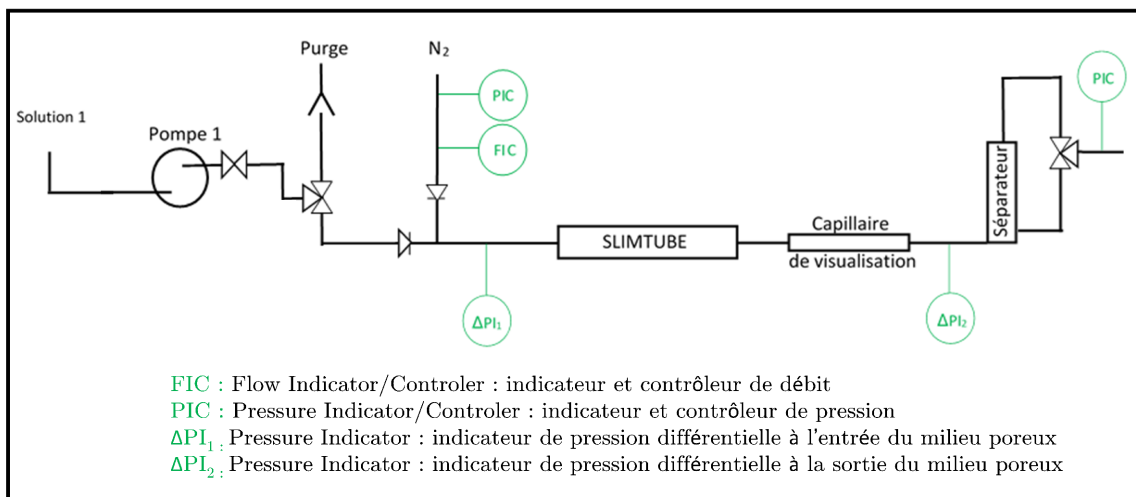


FIGURE 2.36 – Schéma du montage d'étude en milieu poreux 3D modèle.

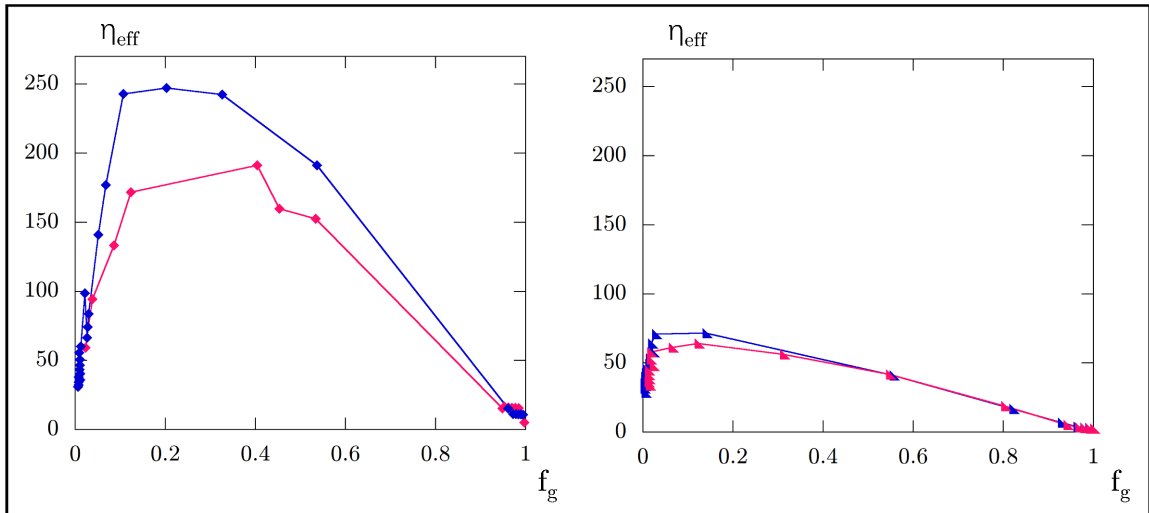


FIGURE 2.37 – Variation de la viscosité apparente générée par la mousse avec f_g dans la phase à Q_w décroissant (bleu) et croissant (rose) pour l'expérience dans ST20 avec *Tween* 20 et sans (gauche) ou avec (droite) butanol.

Remarquons la présence d'un cycle d'hystérèse, le balayage dans le sens des f_g croissants permettant comme d'habitude de générer un mousse plus forte. Cet effet est bien plus visible sans butanol qu'avec, ce qui est similaire à ce qui était observé en microfluidique. Nous pouvons situer f_g^* à environ 40% sans butanol, et environ 15% avec, ce qui est assez peu élevé. Comme attendu, la mousse générée sans butanol est bien plus forte que celle générée avec, sa viscosité apparente étant plus élevée d'un facteur 5 environ.

Les tentatives d'injection dans le même milieu poreux des solutions aqueuses préparées avec 1% en masse de tensioactif commercial ont systématiquement échoué, car la mousse générée est si visqueuse que la pression imposée de 8 bar n'est pas suffisante pour permettre l'écoulement. Étant limité par notre contrôleur de pression, il a été décidé de réduire la concentration en tensioactif, à 0.25%. Même à cette concentration, seul l'IOS S2 génère une mousse assez peu visqueuse pour permettre de réaliser l'étude :

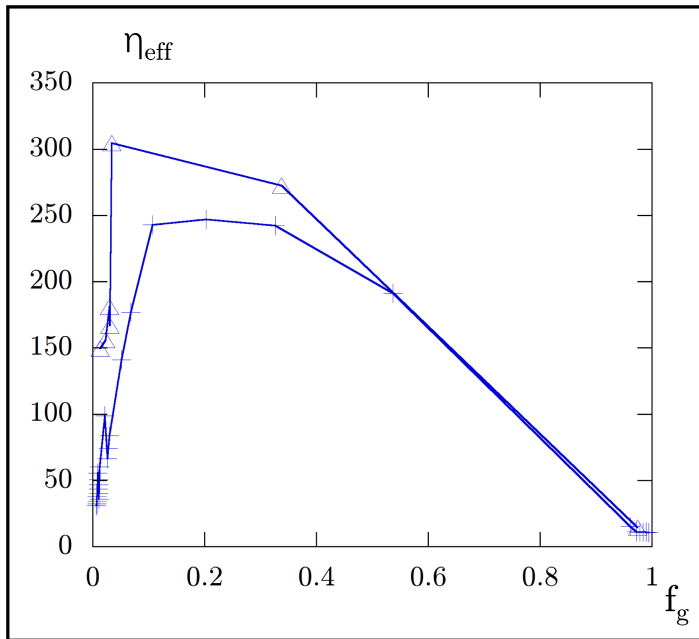


FIGURE 2.38 – Comparaison de la variation de viscosité apparente générée par la mousse avec f_g dans la phase à Q_w décroissant pour les expériences dans ST20 avec *Tween* 20 à 1% en masse (+) et de l'IOS S2 à 0.25% en masse (Δ).

L'IOS à 0.25% en masse (ce qui correspond à environ 5 fois sa CMC) génère donc une mousse un peu plus forte que le *Tween* 20 à 1% en masse (environ 100 fois sa CMC). Les deux AOS sont quant à eux encore plus efficaces, même s'il est impossible de le quantifier plus précisément.

Pour finir, la solution de *Tween* 20 est injectée dans les trois milieux poreux de perméabilités différentes :

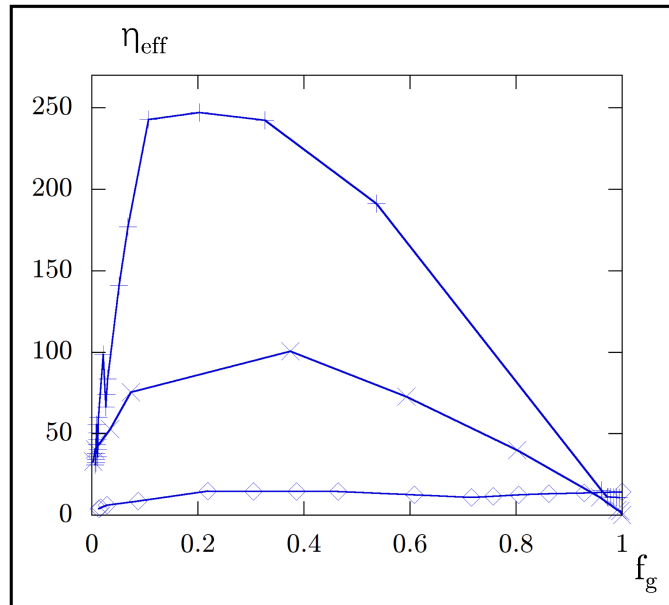


FIGURE 2.39 – Comparaison de l'évolution de la viscosité apparente générée par la mousse avec f_g dans la phase à Q_w décroissant pour les expériences avec *Tween* 20 à 1% en masse dans ST1 (◇), ST8 (×) et ST20 (+).

L'effet de la perméabilité est très clair : plus le milieu est perméable, plus la mousse générée est "forte" i.e. sa viscosité effective est élevée.

Dans la littérature pétrolière, il a été montré (voir figure 2.40) que la mobilité d'une mousse lors de son écoulement dans un milieu poreux est une fonction décroissante de la perméabilité du milieu poreux dès lors que celle-ci est inférieure à $k \simeq 10 \text{ Darcy}$, et croissante dans le cas contraire. Nos milieux poreux se trouvant dans le premier cas, et la mobilité variant dans le sens inverse de la viscosité effective, nos observations sont bien en accord avec les résultats de la littérature.

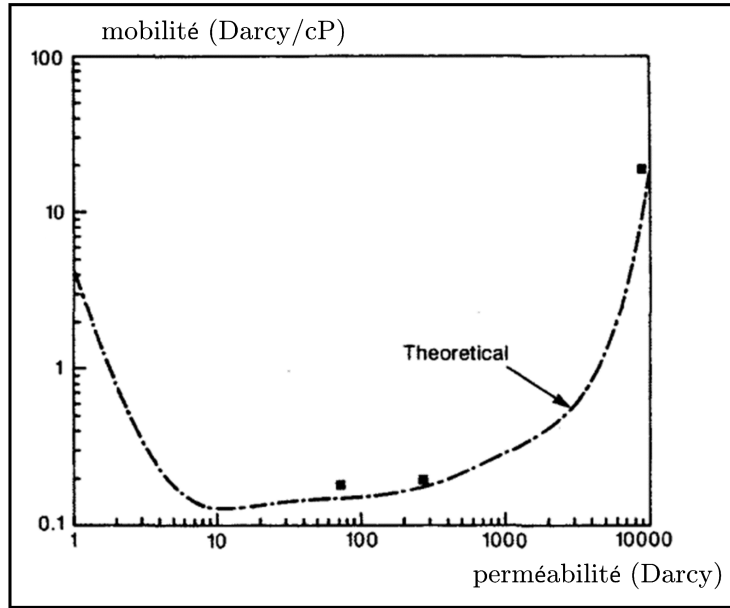


FIGURE 2.40 – Évolution de la mobilité absolue du gaz avec la perméabilité dans une expérience d’injection de mousse très sèche en milieu poreux (adapté de [22]).

En conclusion, nous avons pu vérifier que des tensioactifs ayant une moussabilité similaire en volume, comme le *Tween 20* et l’*IOS S2*, peuvent cependant avoir une moussabilité en milieu poreux drastiquement différente. Nous avons cependant été limités par les plages de fonctionnement de nos appareils, et nos comparaisons ne sont que qualitatives.

6 Résumé et conclusion du chapitre

Notre approche dans ce chapitre a consisté à étudier la formation de mousse à travers un modèle de pore unique ayant une section rectangulaire (un dispositif microfluidique planaire de flow-focusing), en co-injectant du gaz et du liquide, respectivement à pression P_g et débit Q_w imposés.

En accord avec des études antérieures menées par différents groupes, nous avons montré (i) l’existence de deux régimes hydrodynamiques stationnaires, à savoir un régime jet et un régime bulle et (ii) vérifié que la transition entre le régime jet et le régime bulle observés respectivement, pour une valeur P_g constante, aux faibles et importantes valeurs de Q_w , se produit lorsque la largeur du jet devient comparable à la hauteur du canal.

En effectuant des variations cycliques de Q_w pour une valeur fixe de P_g , nous avons de plus mis en évidence expérimentalement un phénomène d’hystérèse entre ces deux régimes et l’existence d’une région bistable pour les valeurs intermédiaires de Q_w .

A l'aide d'un modèle hydrodynamique simple de l'écoulement du jet, nous avons identifié les paramètres physiques sans dimension qui contrôlent la largeur du jet et donc sa stabilité. Nous avons ainsi mis en évidence (i) l'existence d'un seuil du gradient local de pression au niveau du pore au dessus duquel le jet devenu à section cylindrique se déstabilise et conduit à la formation d'une mousse tandis qu'en dessous le jet demeure stable car plus large que la hauteur du canal (ii) et l'existence d'un débit fractionnaire maximal de gaz que ne peut dépasser la mousse formée avec une géométrie donnée de flow focusing.

L'existence théorique de ce seuil de gradient de pression local nous permet de comprendre qualitativement comment le processus de rétroaction hydrodynamique amorcé par l'écoulement en aval de la mousse formée influe, au travers des gradients de pression locaux, sur sa formation dans le pore situé en amont et conduit ainsi au phénomène d'hystérèse observé expérimentalement.

Nous avons vérifié expérimentalement que (i) la formation ou non d'une mousse dans notre dispositif dépend fortement de la géométrie du pore en question et que (ii) l'asymétrie du pore caractérisée par le rapport entre sa largeur et sa hauteur contrôle effectivement la valeur maximale du débit fractionnaire de gaz des mousses qu'il peut générer en accord avec nos prédictions théoriques.

Notre étude microfluidique réalisée sur un dispositif modèle montre par ailleurs que la transition entre le régime bulles et le régime jet et la chute brutale de la viscosité effective qui en découle ne résultent pas d'un phénomène de coalescence entre les bulles lorsque la mousse devient trop sèche mais d'un phénomène de rétroaction hydrodynamique qui empêche la formation de mousse au niveau du pore.

Cette étude réalisée sur un dispositif modèle (un milieu poreux ne contenant qu'un seul pore) nous a permis de mieux comprendre certaines observations effectuées dans des milieux poreux réels, et nous a conduit à proposer une explication à la chute brutale de viscosité se produisant pour les hauts débits fractionnaires de gaz différente et complémentaire à celle classiquement avancée dans la littérature, à savoir la coalescence de bulles au dessus d'une pression capillaire critique.

Cependant, si nous avons pu montrer que la comparaison de tests de moussabilité en volume échouait à prédire la moussabilité relative en milieu poreux de différents tensioactifs, il en est de même pour notre dispositif simpliste.

Ce dernier a en revanche permis de mettre en évidence l'influence de l'ajout d'un agent anti-mousse, le butanol. Le chapitre suivant s'intéresse plus en détail aux résultats étonnants obtenus avec ce dernier.

Chapitre 3

Instabilité due à un effet Marangoni d'un jet de gaz confiné dans un canal microfluidique

Objectifs

Nous étudions l'effet de l'ajout d'un additif modifiant les propriétés de surface, notamment la tension dynamique, sur la stabilité du jet de gaz, et donc sur la formation ou l'absence de formation de la mousse.

Sommaire

1	Aspects expérimentaux	59
1.1	Motivation	59
1.2	Matériel et méthode	59
1.3	Résultats et analyse	64
2	Modélisation théorique	74
2.1	Explication qualitative	75
2.2	Modèle de l'instabilité	79
2.3	Analyse du modèle, comparaison avec les expériences	87
3	Résumé et conclusion du chapitre	96

1 Aspects expérimentaux

1.1 Motivation

Suite à nos études précédentes qui ont montré une forte influence du butanol sur le cycle d'hysté-
rèse, nous avons voulu nous intéresser plus précisément à son influence à priori étonnante sur la
stabilité du jet de gaz, et donc à son aspect facilitateur ou inhibiteur de formation de la mousse.
Ce travail s'appuie sur les résultats déjà connus sur la stabilité d'un jet confiné s'écoulant dans
un canal de section constante [30], établis en l'absence d'effets Marangoni et donc de molécules
comme le butanol .

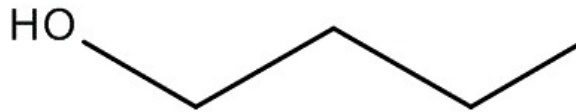


FIGURE 3.1 – Formule topologique du butan-1-ol

1.2 Matériel et méthode

1.2.1 Dispositif microfluidique

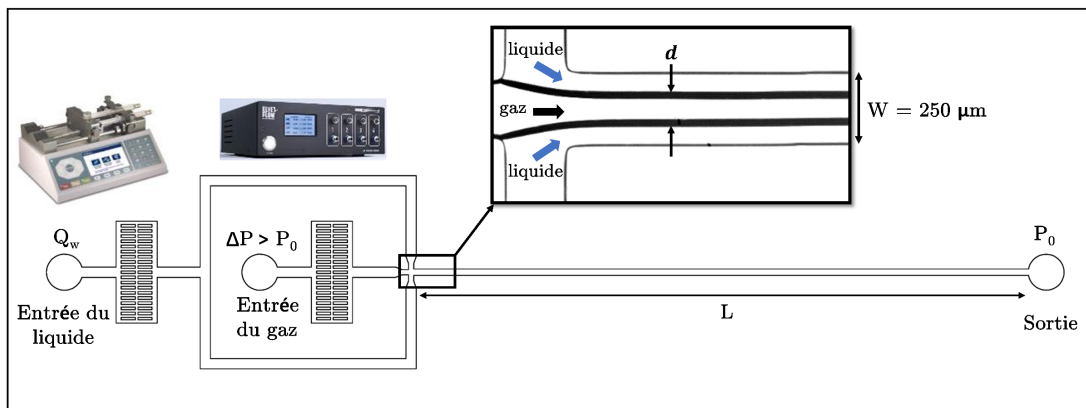


FIGURE 3.2 – Schéma 2D vu du dessus de la puce microfluidique. Encarts : images du pousse-
seringue et du contrôleur de pression utilisés. Encart : vue rapprochée de la jonction.

Nous utilisons comme dans le chapitre précédent une puce microfluidique de PDMS (Sylgard
184 Silicone Elastomer, Dow Corning) fabriquée par des techniques classiques de lithographie
douce [32]. Le traitement au plasma ainsi que l'ajout du tensioactif *Tween 20* permettent de
s'assurer que les parois soient suffisamment hydrophiles, la puce étant du reste renouvelée tous
les jours. Un co-écoulement gaz-liquide est formé à une jonction en flow-focusing (voir 3.2). Le
liquide est introduit par les deux canaux latéraux, à un débit imposé par un pousse-seringue
Nexus 3000 (Chemyx, USA). Le gaz (N_2) est quant à lui injecté par le canal central, à une
pression $P_g = P_0 + \delta P$ imposée par un contrôleur de pression *OB1 MK3+* (Elvesys, France)

relié à un réservoir d'azote pressurisé. La sortie du canal est à pression atmosphérique P_0 . Les expériences sont menées à température ambiante. Les deux fluides passent chacun par un dispositif de filtration intégré au design de la puce destiné à piéger les éventuelles poussières.

Le canal principal a une hauteur de $H = 63 \mu m$, une largeur de $W = 250 \mu m$ et une longueur de $L = 2.4 \text{ cm}$. La puce est placée sous un microscope inversé *DM IL LED* (Leica, Germany) sur lequel est monté un objectif 5–10 x, connecté à une caméra rapide *FASTCAM Mini AX100* (Photron, Japan). Nous filmons à une vitesse de 20000 images par seconde et le champ de vision est de $600 \times 1200 \mu m^2$.

1.2.2 Solutions de butanol

Des solutions d'eau déminéralisée/butan-1-ol (Sigma Aldrich) à différents pourcentages massiques de butanol (0, 1, 2, 3, 4, 5, 6 ou 7 %, proche de la limite de solubilité du butanol dans le liquide) sont préparées. Nous ajoutons ensuite 1 g/L de NaCl (Sigma Aldrich) et 10 g/L (1% en masse) de *Tween 20* (Fisher Scientific) et nous agitons pendant quelques dizaines de minutes en prenant soin de fermer le contenant pour éviter toute évaporation. L'ajout de *Tween 20* sert uniquement à s'assurer que les parois de la puce microfluidique en PDMS restent hydrophiles pendant la durée de l'expérience. Nos expériences sont menées à température ambiante.

La viscosité du butanol pur à $22^\circ C$ est 2.8 mPa.s . Avec l'appareil *Rheometer Low shear 400* (Lamy rheology), nous mesurons les viscosités de la solution sans butanol et de la solution contenant 7% de butanol, qui valent respectivement 0.96 mPa.s et 1.1 mPa.s .

Tension de surface à l'équilibre :

Nous mesurons la tension de surface à l'équilibre des solutions avec un appareil de tensiométrie dit à goutte pendante (Tracker, Teclis, France), à l'aide de la méthode de la goutte montante [49] (ici bulle d'air dans la solution à mesurer).

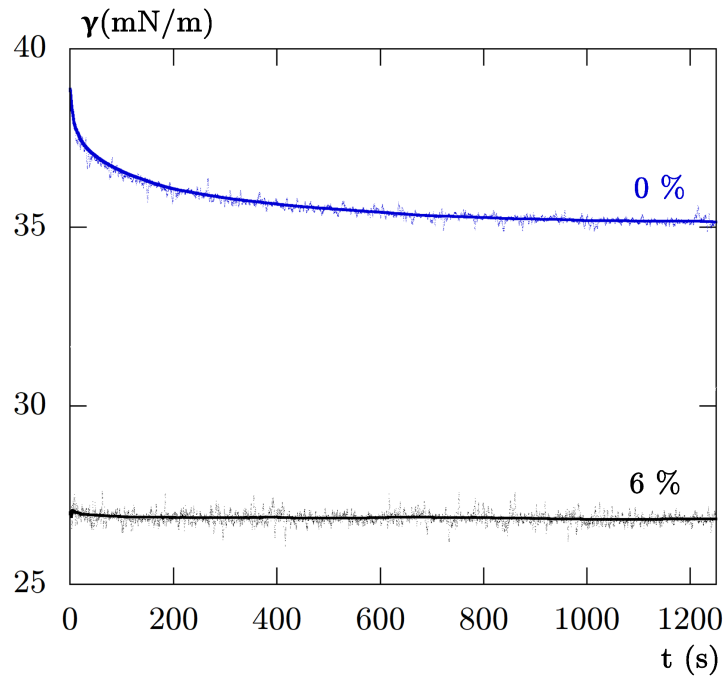


FIGURE 3.3 – Évolution de la tension de surface air/solutions eau pure + 10 g/L Tween 20 + 1 g/L NaCl + 0 (bleu) ou 6 (noir) % de butanol en fonction de l'âge de l'interface. Les mesures sont effectuées avec l'appareil Tracker (Teclis).

Nous observons sur la figure 3.3 que pour le système avec 6% de butanol, la tension de surface atteint presque instantanément sa valeur d'équilibre, alors que le système avec uniquement du Tween 20 met quant à lui plusieurs dizaines de minutes à l'atteindre.

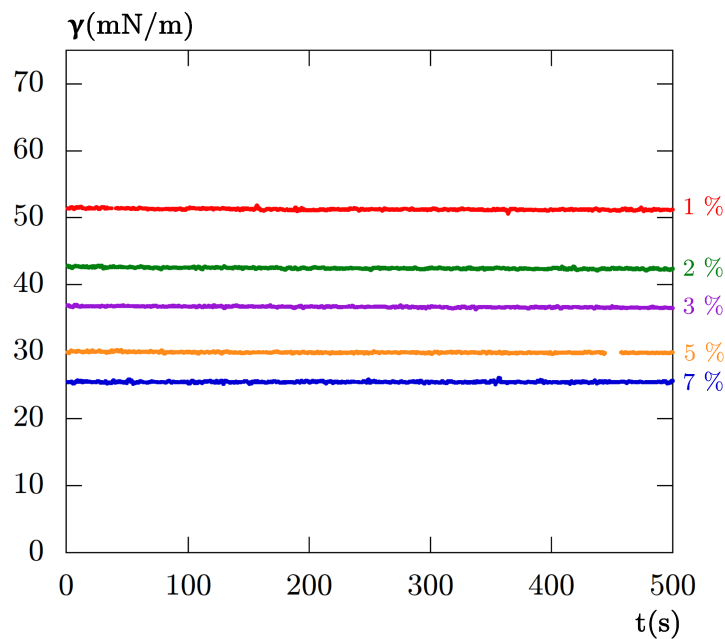


FIGURE 3.4 – Évolution de la tension de surface air/solutions eau pure + 1g/L NaCl + x% de butanol en fonction du temps. Les mesures sont effectuées avec l'appareil Tracker (Teclis).

Nous faisons varier la quantité de butanol ajoutée, cette fois sans ajout de *Tween* 20 pour voir uniquement l'influence du butanol. Nous pouvons constater sur la figure 3.4 que la valeur d'équilibre est toujours atteinte dès le premier point de mesure de l'appareil (t_{vie} vaut quelques secondes), et que cette valeur d'équilibre diminue quand on augmente la quantité de butanol. Ce résultat n'est pas surprenant dans la mesure où la tension superficielle à l'équilibre du butanol pur avec l'air vaut $\gamma_{but} = 24.8 \text{ mN/m}$.

Tension dynamique - Maximum Bubble Pressure Tensiometer (MBPT) :

Les mesures au tensiomètre à goutte pendante ne permettent pas d'accéder à la dynamique d'adsorption du butanol à temps court (inférieur à quelques secondes). Or, l'échelle de temps mise en jeu dans nos expériences de microfluidique est proche de la milliseconde. Nous utilisons donc un tensiomètre à pression maximale de bulle [50] *BPA – 2S* (SINTERFACE, Allemagne) pour étudier l'adsorption du butanol à l'interface aux temps courts, sur plusieurs ordres de grandeur (de $t_{vie} = 10^{-2}$ à 100 s , et même jusqu'à $t_{vie} = 10^{-3} \text{ s}$ pour des solutions aqueuses peu concentrées [51, 52]).

Principe du MBPT :

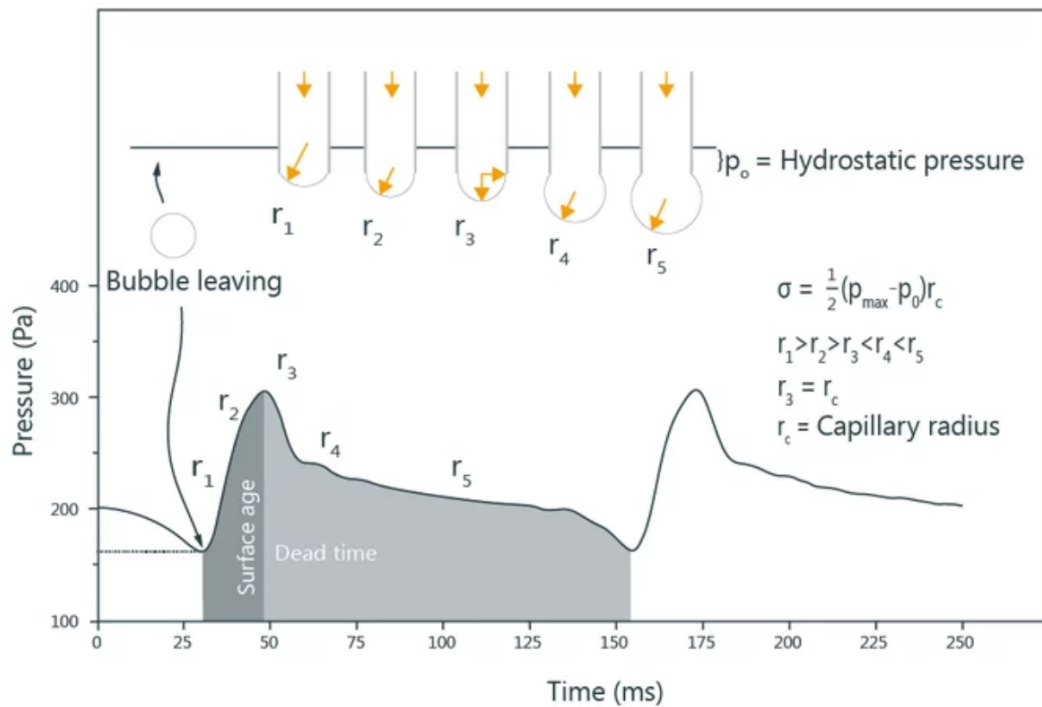


FIGURE 3.5 – Schéma du principe de la méthode de la pression de bulle maximale (selon Krüss, Allemagne)

L'appareil consiste simplement en un capillaire de diamètre connu que l'on plonge dans le liquide à mesurer, et par lequel une bulle d'air est gonflée progressivement. La tension de surface

est déduite, par la loi de Laplace, à partir de la valeur de la pression maximale mesurée, qui correspond à une bulle hémisphérique. La durée de vie de l'interface peut être variée en gonflant la bulle plus ou moins vite. L'appareil commercial répète la mesure plusieurs fois et effectue les corrections nécessaires.

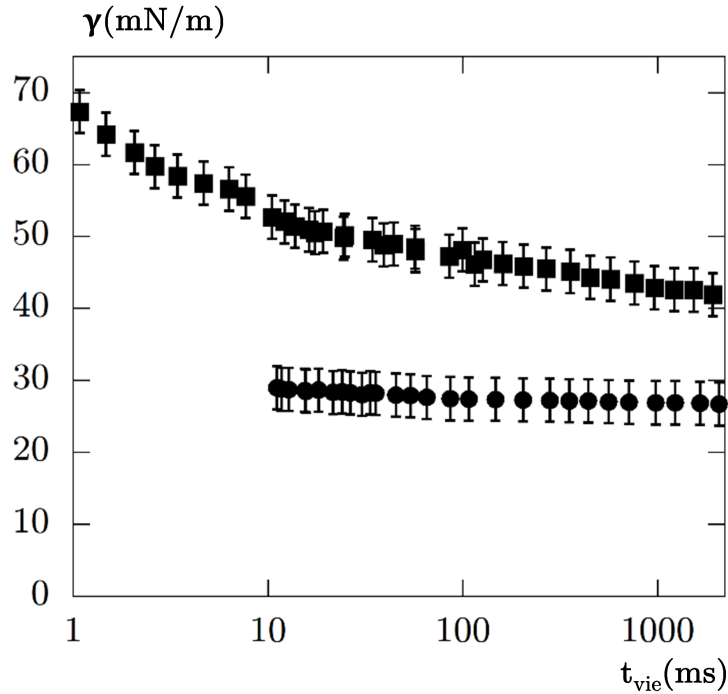


FIGURE 3.6 – Évolution de la tension de surface air/solutions d'eau pure + 10 g/L Tween 20 + 1 g/L NaCl + 0 % (■) et 7 % en masse (●) de butanol sur l'intervalle 1 ms – 2000 ms en utilisant le MBPT. Les valeurs pour un temps inférieur à 10 ms pour la solution à 7 wt % de butanol ne peuvent être obtenues à cause de limitations techniques de l'appareil.

La figure 3.6 montre que les molécules du butanol s'adsorbent bien plus vite à l'interface que les molécules de Tween 20; en effet, à $t_{vie} = 10^{-2}$ s la valeur d'équilibre de la tension de surface est déjà atteinte pour la solution avec butanol, tandis que pour le système sans butanol, la tension est encore loin de l'équilibre. Nous voyons également qu'à $t_{life} \simeq 10^{-3}$ s les molécules de Tween 20 ne sont pratiquement pas adsorbées à l'interface, car la tension de surface mesurée est proche de celle de l'eau $\gamma_{eau} = 72.4 \text{ mN.m}^{-1}$.

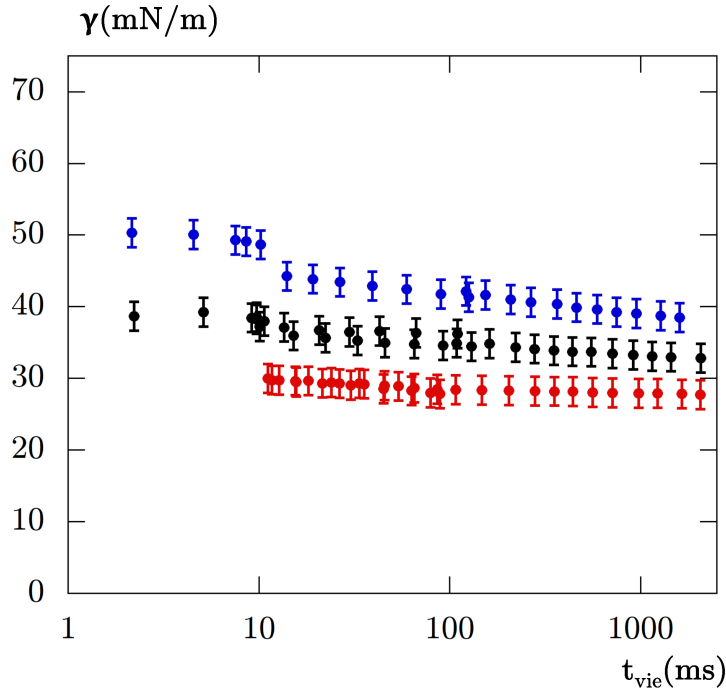


FIGURE 3.7 – Évolution de la tension de surface de solutions d'eau pure + 10 g/L Tween 20 + 1 g/L NaCl + 1 % (●), 3 % (●) ou 7 % (●) en masse de butanol sur l'intervalle 1 ms – 2000 ms en utilisant le MBPT. Les valeurs pour un temps inférieur à 10 ms pour la solution à 7 % en masse de butanol ne peuvent être obtenues à cause de limitations techniques de l'appareil.

La mesure de la tension de surface à temps court pour trois concentrations (1, 3 et 7% en masse) de butanol montre, sur la figure 3.7, que l'adsorption du butanol s'effectue rapidement même pour des concentrations plus faibles de butanol.

1.3 Résultats et analyse

1.3.1 Expérience avec et sans butanol

Pour deux liquides, avec soit 0 soit 7% de butanol, nous réalisons l'expérience suivante : tout en maintenant la pression constante à 300 mbar, nous augmentons progressivement la valeur du débit de liquide injecté Q_w sur une gamme allant de 10 à 300 $\mu\text{L}/\text{min}$.

La figure 3.8 A. montre l'évolution de l'écoulement biphasique observé dans le canal principal de notre dispositif en fonction de Q_w pour le système sans butanol. Pour des valeurs de Q_w inférieures à 220 $\mu\text{L}/\text{min}$, nous observons un jet de largeur constante sur toute la longueur du canal principal. Cette largeur diminue linéairement avec Q_w (3.8 B). La barre d'erreur est liée à la précision de la mesure optique de la largeur de l'interface gaz/liquide. À partir de la valeur de Q_w où cette largeur devient égale à la hauteur du canal, nous observons la production périodique de bulles dont la taille dépend de Q_w . Ce résultat est attendu car un jet cylindrique 3D-non confiné est instable du point de vue de l'instabilité de Rayleigh-Plateau : le jet se pince et forme des bulles mono-disperses émises périodiquement dans un régime de dripping. Ce comportement

a été observé et expliqué théoriquement par [30] pour un système gaz/liquide différent des nôtres.

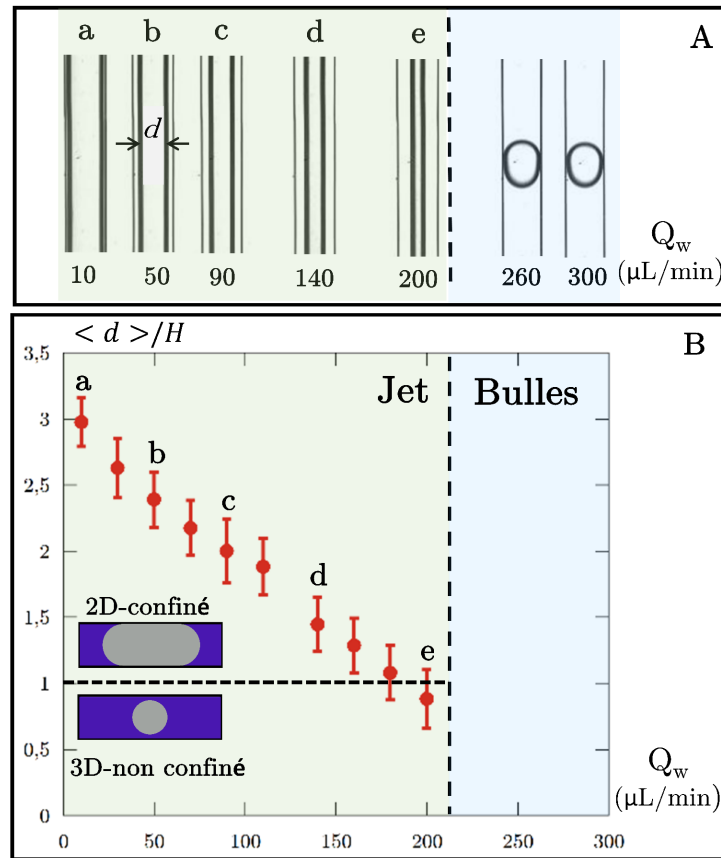


FIGURE 3.8 – A) Images de l’écoulement biphasique observé dans le canal principal pour différentes valeurs de Q_w , pour le liquide sans butanol. La ligne pointillée verticale sépare le domaine d’observation d’un jet de gaz de celui de bulles. B) Variation du rapport largeur de jet d sur hauteur du canal H en fonction de Q_w . La ligne horizontale sépare la zone d’existence d’un jet 2D-confiné de celle d’un jet 3D-non confiné. Encarts : schéma vu en coupe du jet dans le canal principal.

Cependant, de manière inattendue avec la solution à 7% de butanol, les résultats sont bien différents, comme le montre la figure 3.9. D’abord, pour des valeurs inférieures à $Q_w = 160 \mu\text{L}/\text{min}$, le jet n’a plus une largeur constante mais présente des pincements qui se propagent. Ensuite, la largeur moyenne du jet $\langle d \rangle$ varie cette fois non linéairement avec Q_w , le jet restant toutefois toujours globalement 2D-confiné. Pour une valeur critique de $Q_w = 160 \mu\text{L}/\text{min}$, nous observons une transition hydrodynamique vers un régime de production périodique de bulles mono-disperses.

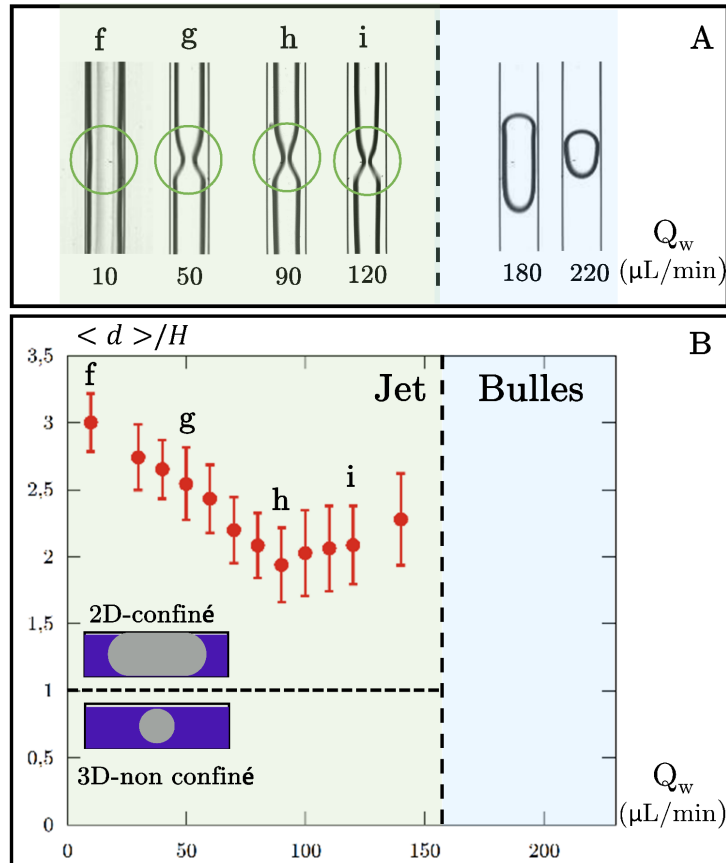


FIGURE 3.9 – A) Images de l'écoulement biphasique dans le canal principal pour différentes valeurs de Q_w pour le liquide avec butanol. La ligne pointillée verticale sépare le domaine d'observation d'un jet de gaz de celui de bulles. Les cercles verts indiquent les déformations du jet qui se propagent à vitesse constante. B) Variation du rapport largeur de jet $\langle d \rangle$ sur hauteur du canal H en fonction de Q_w . La ligne horizontale sépare la zone d'existence d'un jet 2D-confiné de celle d'un jet 3D-non confiné. Encarts : schéma vu en coupe du jet dans le canal principal.

Cette fois, ce n'est plus simplement d mais plutôt la largeur moyenne $\langle d \rangle$ qui est représentée, car la largeur du jet n'est plus constante le long du canal, comme l'indiquent les cercles verts. De plus, la déformation du jet s'effectue sous forme d'une onde qui se propage selon la direction x de l'écoulement. Pour caractériser cette déformation, nous déterminons une moyenne temporelle de la largeur du jet à une position donnée (assez loin du flow-focusing) sur plusieurs centaines de millisecondes. Cette analyse, comme toutes les autres, est réalisée avec le logiciel ImageJ, et notamment grâce aux fonctions : "Reslice" (qui donne une représentation spatio-temporelle), "Make Binary" (qui transforme une image en noir et blanc) et "Save xy Coordinates" (qui permet une sauvegarde des pixels noirs). Un script Python simple permet de réaliser le moyennage.

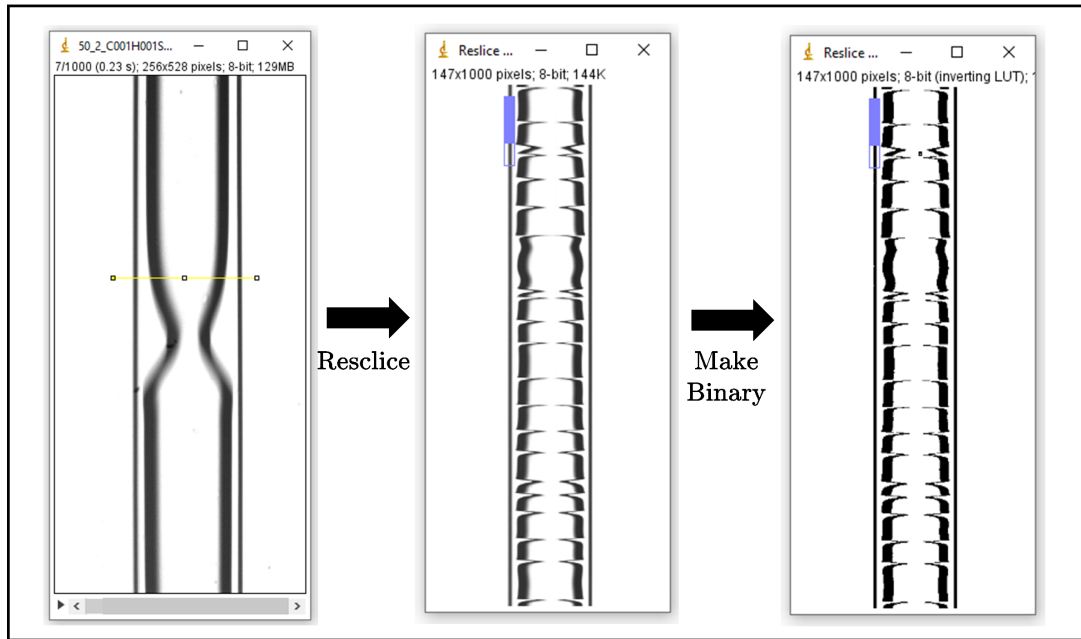


FIGURE 3.10 – Exemple d'utilisation des fonctions du logiciel ImageJ sur une vidéo.

Analyse des déformations du jet

Nous étudions par la suite les déformations du jet qui sont observées quand nous ajoutons du butanol à la solution. L'amplitude $\Delta d = d_{max} - d_{min}$ de ces déformations, qui est faible proche de la jonction Flow-focusing, augmente rapidement le long de l'écoulement, pour atteindre une valeur constante après quelques millimètres (figure 3.11). Cette valeur saturée, Δd_{sat} , dépend de Q_w , comme le montre la figure 3.12. Nous voyons que Δd_{sat} augmente d'abord fortement avec Q_w puis se stabilise ensuite à partir de $Q_w = 70 \mu L/min$. L'étude de d_{min} montre que pour des valeurs de Q_w élevées, le jet est très fin au niveau de la déformation, au point que $d_{min} < H$; ce caractère 3D est cependant très localisé et ne produit pas de transition en régime bulle comme vu au chapitre 2.

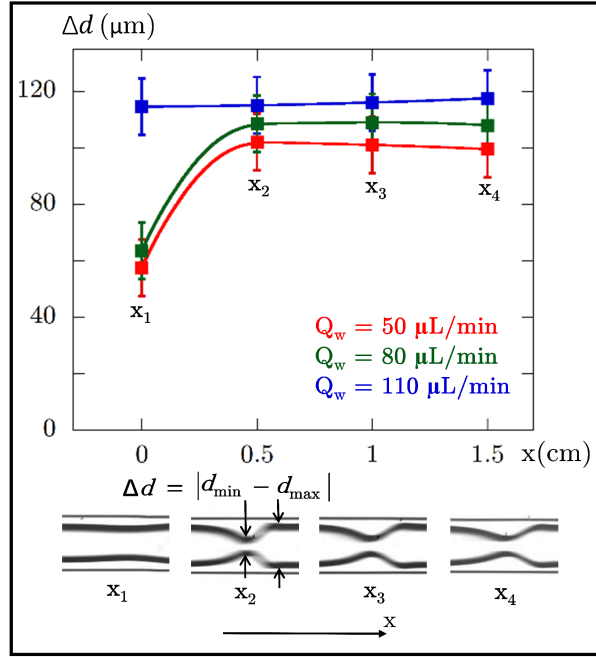


FIGURE 3.11 – Évolution de l’amplitude d’une déformation, $\Delta d = d_{\max} - d_{\min}$ en fonction de x (en cm), pour 3 différentes valeurs de Q_w . Encarts : image des déformations du jet observées à différentes positions x le long de la direction de l’écoulement pour $Q_w = 50 \mu\text{L}/\text{min}$. Les lignes continues sont uniquement des guides visuels.

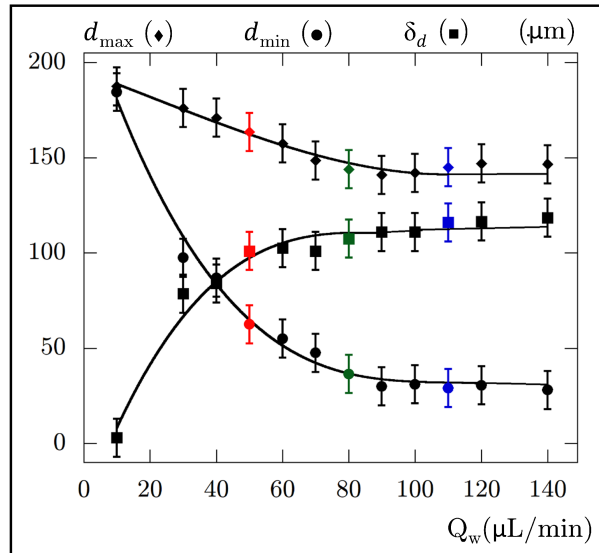


FIGURE 3.12 – Variation des valeurs saturées de d_{\min} (●), d_{\max} (◆) et $\Delta d = d_{\max} - d_{\min}$ (■) avec Q_w , mesurées à $x = 1 \text{ cm}$. Ces grandeurs sont définies sur la figure 3.11, et comme sur celle-ci les couleurs rouge, vert et bleu correspondent respectivement aux mesures effectuées pour $Q_w = 50, 80$ et $110 \mu\text{L}/\text{min}$. Les lignes continues sont uniquement des guides visuels.

Une fois saturée, la déformation locale du jet se propage sans changer de forme, comme le montre la figure 3.13 A). De plus, ces déformations très localisées sont générées plus ou moins

périodiquement (3.13 B) au niveau de la géométrie Flow-focusing.

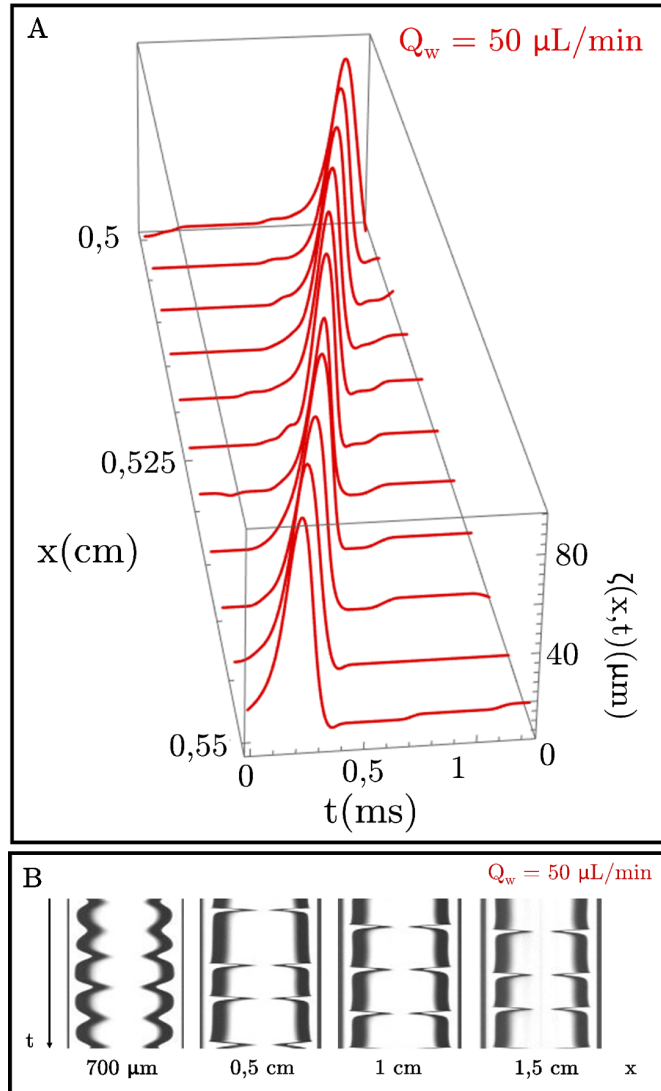


FIGURE 3.13 – A) Représentation du profil d'épaisseur de liquide $\zeta = \frac{(W-d)}{2}$ observé le long de la direction x à différents temps t , pour une valeur de $Q_w = 50 \mu\text{L}/\text{min}$. B) Variations temporelles de la largeur du jet à 4 positions x différentes, pour une valeur de $Q_w = 50 \mu\text{L}/\text{min}$.

En régime permanent, la déformation localisée du jet se propage à une vitesse constante, qui augmente avec Q_w et est de l'ordre de $1 \text{ m}/\text{s}$. Cette vitesse est différente de la vitesse du liquide, qui est environ deux fois plus faible. La fréquence de production de ces déformations localisées augmente linéairement avec Q_w et est de l'ordre de 1 kHz (voir figure 3.14).

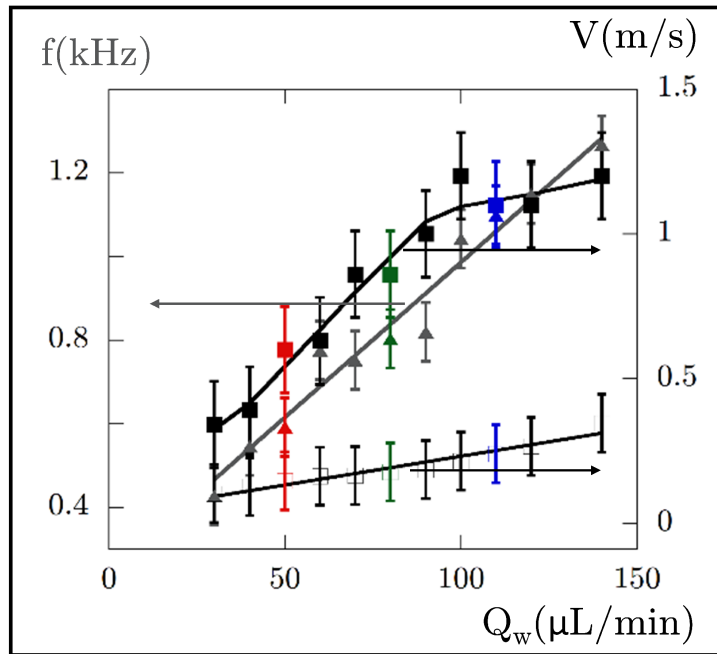


FIGURE 3.14 – Variation en fonction de Q_w de la fréquence de production moyenne f (\blacktriangle) et de la vitesse (\blacksquare) des déformations périodiques en régime permanent. Évolution de la vitesse moyenne du liquide V_ℓ (\square) avec Q_w . Comme sur la figure 3.11, les couleurs rouge, vert et bleu correspondent respectivement aux mesures effectuées pour $Q_w = 50, 80$ et $110 \mu\text{L}/\text{min}$. Les lignes continues sont uniquement des guides visuels.

Pour vérifier si les phénomènes observés étaient ou non liés à l'évaporation du butanol, nous avons répété la même expérience en faisant cette fois-ci buller le diazote dans du butanol pur, afin de s'assurer que le gaz en était saturé : les résultats obtenus sont identiques.

1.3.2 Variation de la quantité de butanol

Afin de mieux comprendre l'influence de l'ajout de butanol, nous reproduisons les mêmes expériences en faisant cette fois varier plus finement la quantité de butanol ajoutée à l'eau : 0%, 1%, 2%, 3%, 4%, 5% ou 6%. Le graphique ci-dessous est une cartographie complète des écoulements observés :

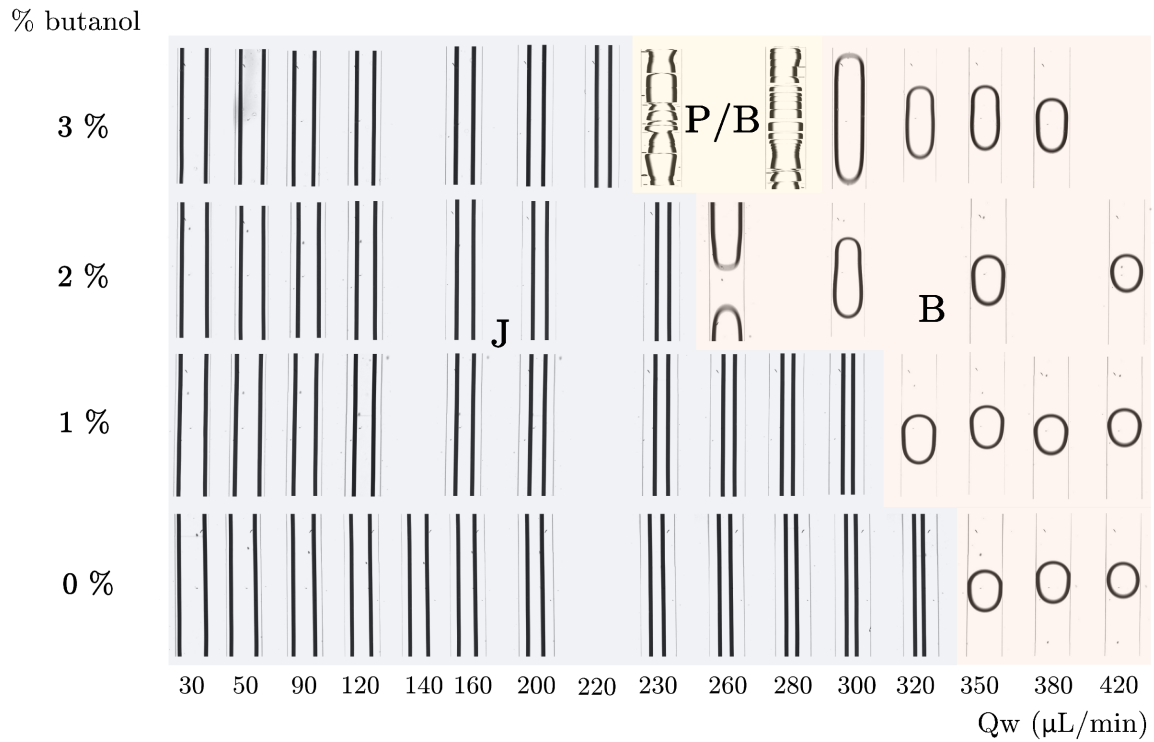


FIGURE 3.15 – Images du jet observé pour différentes valeurs de Q_w et différents pourcentages de butanol ajouté au liquide (0%, 1%, 2% ou 3%). Ces images sont des simples captures d'écran pour les régimes où le jet présente une largeur constante ainsi que pour le régime bulle, mais sont des représentations spatio-temporelles lorsque le jet présente des déformations se propageant.

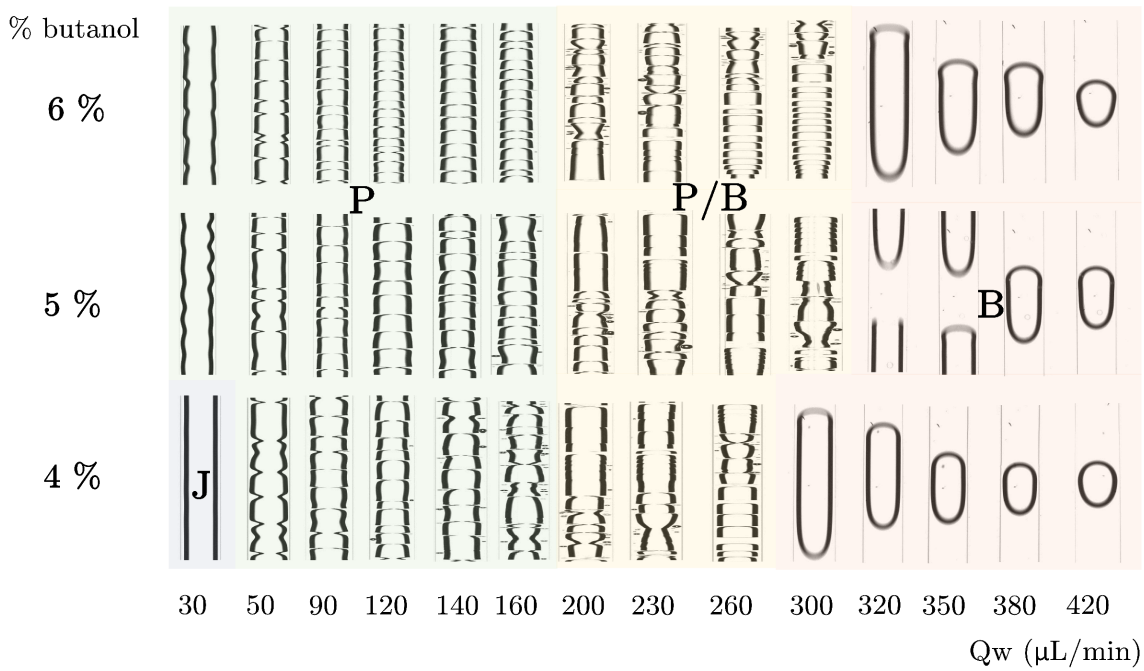


FIGURE 3.16 – Images du jet observé pour différentes valeurs de Q_w et différents pourcentages de butanol ajouté au liquide (4%, 5%, 6%). Ces images sont des simples captures d'écran pour les régimes où le jet présente une largeur constante ainsi que pour le régime bulle, mais sont des représentations spatio-temporelles lorsque le jet présente des déformations se propageant.

Nous observons 4 régimes principaux : un jet de largeur constante selon x et t (régime J) ; une production périodique de bulles mono-disperses (régime B) ; un pincement plus ou moins périodique du jet, qui se propage le long du canal comme décrit précédemment (régime P) ; un comportement bi-stable, où s'alternent un jet pincé et une production de bulles (régime P/B).

Nous voyons que les comportements observés évoluent fortement quand nous ajoutons du butanol ; pour des systèmes avec moins de 3 % de butanol, le comportement simple avec régime J à bas Q_w et régime B à Q_w plus élevé est observé. Pour des systèmes avec 4 % ou plus de butanol, nous voyons plutôt un régime P à bas Q_w , suivi d'un régime (P/B) et enfin un régime B à haut Q_w . Pour le système à 3% de butanol, un comportement intermédiaire est observé : nous avons d'abord un jet stable (régime J) avant $Q_w = 230 \mu\text{L}/\text{min}$, suivi d'un régime P/B entre $Q_w = 230 \mu\text{L}/\text{min}$ et $Q_w = 280 \mu\text{L}/\text{min}$ et enfin un régime B.

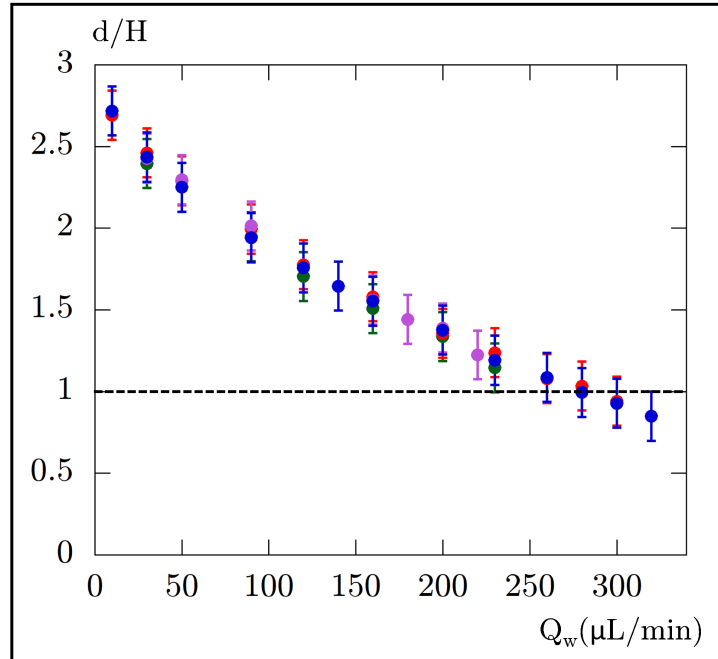


FIGURE 3.17 – Variation du rapport largeur de jet d (quand elle est constante) sur hauteur du canal H en fonction de Q_w , pour 4 quantités de butanol différentes : 0% (\bullet), 1% (\bullet), 2% (\bullet) et 3% (\bullet). La ligne horizontale sépare la zone de jet 2D-confiné du jet 3D-non confiné.

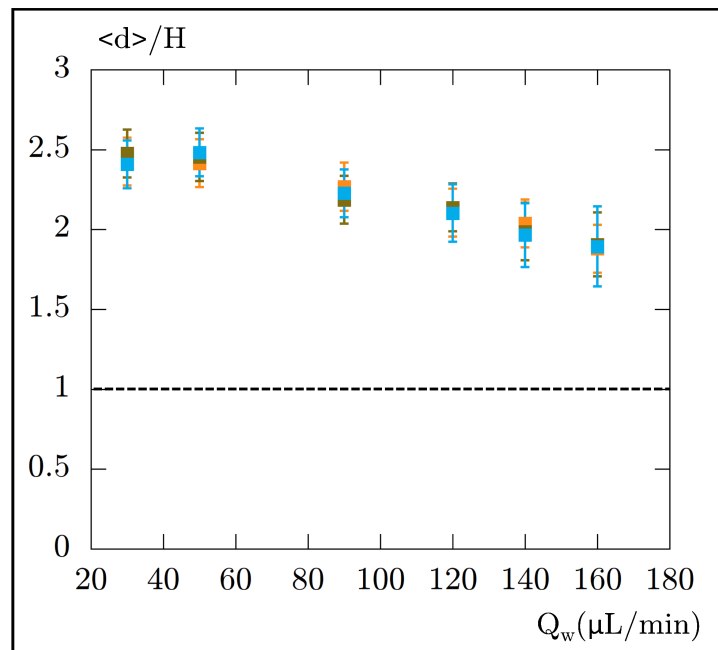


FIGURE 3.18 – Variation du rapport largeur de jet d (en régime J) sur hauteur du canal H en fonction de Q_w , pour 3 quantités de butanol différentes : 4% (\blacksquare), 5% (\blacksquare) et 6% (\blacksquare). La ligne horizontale sépare la zone de jet 2D-confiné du jet 3D-non confiné.

La largeur d du jet en régime J pour des valeurs de 0, 1, 2 ou 3% de butanol est analysée : elle

décroît de manière monotone avec Q_w et est très similaire pour les différents systèmes. La seule différence se trouve au niveau de la transition J/B : si, pour les systèmes à 0 et à 1% de butanol, la dernière valeur de d/H mesurée avant la transition vers un régime de bulles est égale à 1 (aux barres d'erreur près) et la valeur du Q_w de transition est similaire dans les deux cas, ce n'est pas le cas à 3%. Dans ce cas, le Q_w de transition est bien plus petit, et la dernière valeur de d/H mesurée avant l'apparition du régime de bulles est supérieure à 1 : le jet est encore $2D$ quand le système passe en régime P/B. Finalement, pour le système à 2%, nous ne savons pas avec les barres d'erreur si la transition a lieu au moment du passage au jet $3D$, ou si nous sommes plus proche du cas à 3% (nous aurions alors raté un régime P/B entre $Q_w = 230$ et $260 \mu L/min$).

Nous analysons également la largeur moyenne du jet $\langle d \rangle$ en régime P : cette fois-ci, l'effet du butanol se fait bien ressentir, avec une évolution non monotone et une transition à un régime P/B quand le jet est encore largement $2D$ en moyenne, et ce pour 4, 5 et 6% de butanol.

2 Modélisation théorique

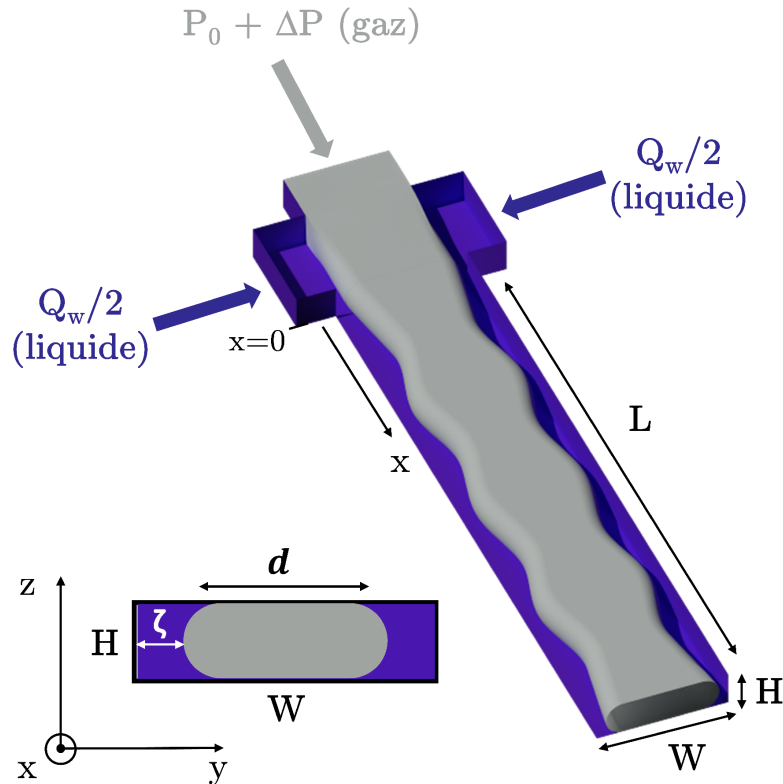


FIGURE 3.19 – Schéma 3D d'un jet 2D-confiné dans la jonction microfluidique, pour lequel une perturbation de l'épaisseur de la couche liquide à mi-hauteur du canal varie selon x selon $\zeta(x) = \bar{\zeta} + \delta\zeta e^{ikx}$ dans la jonction microfluidique, et définition des paramètres géométriques. Encart : vue en coupe d'une section du canal principal.

2.1 Explication qualitative

Pour comprendre l'influence de la tension interfaciale sur la pression du liquide et donc sur la stabilité du jet, rappelons d'abord le cas simple où la tension de surface est constante à l'interface (pas d'effet Marangoni).

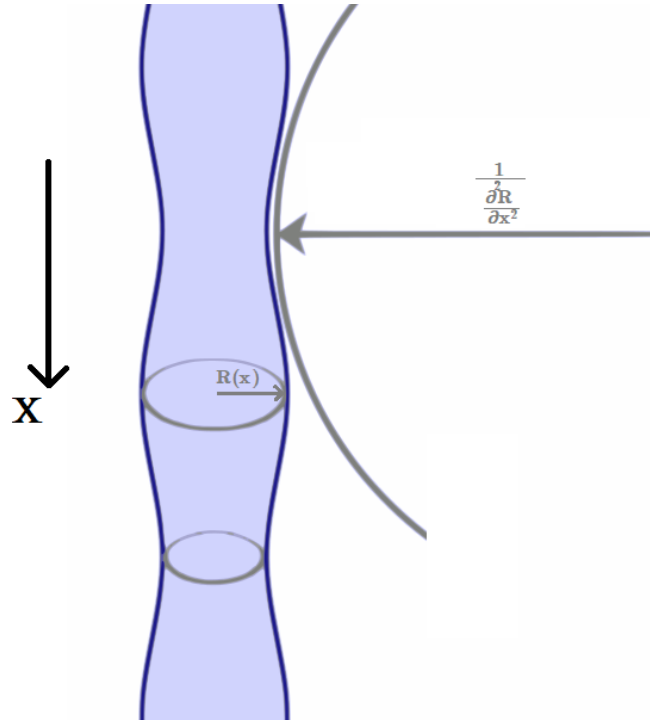


FIGURE 3.20 – Définition des deux rayons de courbure d'un jet $3D$ -non confiné.

Premier cas, un jet de gaz $3D$ -non confiné (donc cylindrique de section circulaire) de pression constante P_0 . La pression dans le liquide est calculée grâce à la pression de Laplace dont l'expression est donnée ci-dessous :

$$P_L = -\frac{\gamma}{R(x)} + \gamma \frac{\partial^2 R(x)}{\partial x^2} \quad (3.1)$$

et dépend des deux courbures de l'interface gaz-liquide, dans la direction normale pour le premier terme et le long de l'axe x pour le second terme.

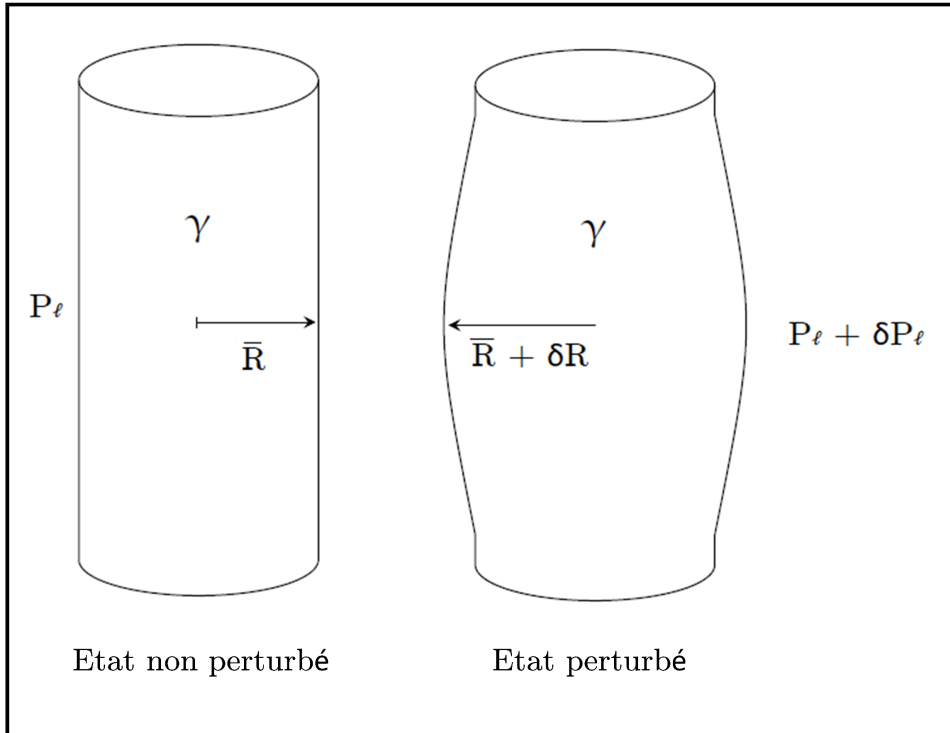


FIGURE 3.21 – Définition des grandeurs de l'état perturbé ou non du jet 3D

Imaginons que l'interface se déforme légèrement sous forme d'une perturbation linéaire de la forme $R(x, t) = \bar{R} + \delta R e^{ikx}$, avec \bar{R} le rayon du jet non perturbé et k le vecteur d'onde de la perturbation du rayon, voir figure 3.21). Nous avons bien sûr $\delta R \ll \bar{R}$, et supposons de plus que la longueur d'onde de la déformation est grande devant le rayon du jet i.e. $\bar{R} \ll \lambda$, d'où $\frac{dR}{dx} \ll 1$.

La perturbation de la pression du liquide résultante s'écrit en approximation linéaire : $\delta P_\ell = \gamma(\frac{1}{\bar{R}^2} - k^2)\delta R = \frac{\gamma\delta R}{\bar{R}^2}(1 - (k\bar{R})^2)$ en utilisant le fait que $\frac{\delta R}{\bar{R}} \ll 1$ et $\frac{1}{(1+x)} \underset{x \rightarrow 0}{=} 1 - x$.

Puisque $k\bar{R} < 1$, la pression est plus grande dans les régions du liquide où $R(x, t) > \bar{R}$ que dans les régions où $R(x, t) < \bar{R}$, ce qui résulte en un écoulement du liquide qui mène à une augmentation de la déformation ; le jet est donc instable et va disparaître à terme pour former des bulles.

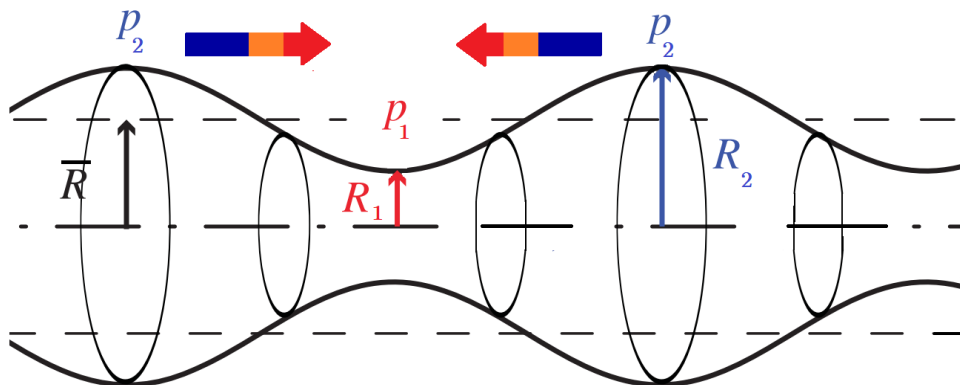


FIGURE 3.22 – Influence du changement de courbure sur la pression et donc sur l’écoulement résultant de liquide. $P_2 > P_1$ d’où l’écoulement de liquide illustré par les flèches.

Dans le second cas où le jet est $2D$ -confiné, celui-ci n’est plus de section circulaire. Cette dernière peut être approximée par un rectangle de dimensions $(d-H) \times H$ auquel nous ajoutons de chaque côté un demi-cercle de rayon $H/2$ (voir figure 3.19), car nous supposons que le gaz ne mouille pas la surface de PDMS tout en négligeant l’épaisseur du film de lubrification (en effet, le nombre capillaire mis en jeu dans nos expériences, $C_a = \eta V / \gamma$, est de l’ordre de $C_a = 10^{-2} \ll 1$ [30]).

La principale différence avec le cas d’un jet $3D$ provient du fait que l’un des deux rayons de courbure, celui selon la normale, est désormais fixé par la hauteur du canal. Il est donc constant et égal à $H/2$. La pression de Laplace s’écrit donc :

$$P_L = -\frac{2\gamma}{H} + \gamma \frac{\partial^2(d/2)}{\partial x^2} \quad (3.2)$$

avec d la largeur du jet.

En imaginant à nouveau une perturbation linéaire de l’interface de la forme $d(x, t) = \bar{d} + \delta d e^{ikx}$, avec \bar{d} le rayon du jet non perturbé et k le vecteur d’onde de la perturbation du rayon, nous obtenons si γ est constant une perturbation de pression de la forme : $\delta P_\ell = -\gamma k^2 \delta d$. Le système est donc toujours stable car la pression du liquide est toujours plus grande dans les régions où $d(x, t) < \bar{d}$ que dans celles où $d(x, t) > \bar{d}$. Ce gradient induit un écoulement qui tend à faire décroître l’amplitude de la perturbation et donc à stabiliser la couche de liquide.

Le modèle très simple de l’instabilité de Rayleigh-Plateau qui précède explique très bien le comportement observé avec les solutions contenant peu de butanol (0, 1 ou 2%), pour lesquelles la transition jet/bulle coïncide avec la transition $2D/3D$ du jet, c’est-à-dire lorsque le jet devrait adopter une section circulaire.

Cependant, ce modèle n'explique pas le comportement observé pour des quantités élevées de butanol ($> 3\%$), pour lesquelles le jet se déstabilise en bulles alors même qu'il est globalement encore $2D$ -confiné et devrait donc être stable.

Les mesures de tension de surface aux temps courts effectuées avec le MBPT apportent ici un élément de réponse car elles montrent (voir figure 3.6) que les molécules de butanol s'adsorbent très rapidement à l'interface gaz/liquide, avec un temps d'adsorption t_{ads} inférieur à 10^{-2} s correspondant à la résolution de l'appareil, contrairement aux molécules de *Tween 20* (pour lesquelles le temps d'adsorption est de l'ordre de la seconde ou plus). À la vue de ces résultats, il semble raisonnable de penser que la déstabilisation du jet $2D$ -confiné que nous observons et qui se produit à une échelle de temps proche de la milliseconde, pourrait résulter d'un effet Marangoni induit par l'adsorption rapide des molécules de butanol à l'interface.

En effet, une interface est toujours enrichie en molécules présentant la tension de surface la plus basse comparée à la composition en volume, ce qui est le cas du butanol ici. Quand l'interface s'agrandit brusquement, elle se dépeuple en molécules et, en conséquence, la valeur de la tension de surface γ augmente. L'interface retrouve ensuite progressivement son équilibre thermodynamique via un échange de molécules avec le volume, jusqu'à ce que la valeur de γ redevienne égale à sa valeur d'équilibre, $\bar{\gamma}$.

Nous pouvons donc supposer qu'une perturbation de la forme $d(x, t) = \bar{d} + \delta d e^{ikx}$ comme nous l'étudions génère une variation locale de la concentration surfacique de butanol, et donc une variation locale de la tension de surface, qu'on peut, dans le cadre d'une analyse linéaire, supposer de forme similaire : $\gamma(x, t) = \bar{\gamma} + \delta\gamma e^{ikx}$.

Puisque γ n'est ici plus constante, la variation de pression dans le liquide ne vaut plus $\delta P_\ell = -\gamma k^2 \delta d$ comme vu précédemment mais $\delta P_\ell = \frac{2\delta\gamma}{H} - \bar{\gamma} k^2 \delta d$, avec un terme supplémentaire dû à l'effet Marangoni. Si le second terme est comme nous l'avons vu toujours stabilisant, le terme supplémentaire peut lui être déstabilisant si la partie réelle de l'amplitude complexe de $\delta\gamma$ est positive (la perturbation va alors croître exponentiellement).

Une analyse complète de ce problème n'est pas immédiate, car elle demande de décrire théoriquement la cinétique d'adsorption des molécules de butanol à l'interface spatialement perturbée. Ce phénomène impliquant un flux d'advection, il est nécessaire de calculer la vitesse du fluide à l'interface, vitesse qui dépend fortement des conditions aux limites Marangoni [53].

2.2 Modèle de l'instabilité

2.2.1 Hypothèses

Notre modèle s'intéresse à la stabilité d'une couche mince de liquide d'épaisseur ζ (voir figure 3.19). Il suppose qu'à l'échelle de temps mis en jeu dans nos expériences de microfluidique -qui est de l'ordre de la milliseconde- seules les molécules de butanol peuvent s'adsorber, à contrario des molécules de *Tween* 20 qui ne jouent donc aucun rôle ici.

Nous négligeons également l'évaporation du butanol, qui certes peut induire un effet Marangoni dans certaines situations expérimentales décrites dans la littérature [54, 55], mais qui n'intervient pas dans nos expériences comme nous l'avons démontré.

Nous faisons les trois hypothèses simplificatrices suivantes :

(a) Nous considérons que la cinétique d'adsorption/désorption des molécules de butanol est mono-exponentielle, soit une cinétique de premier ordre attendue d'un modèle de Langmuir. Cela revient à considérer que le transfert massique de butanol est sous contrôle cinétique et non diffusif [56, 57], ce qui semble justifié pour des quantités très élevées de butanol comme celles utilisées dans nos expériences.

(b) Nous négligeons l'écoulement diffusif surfacique devant l'écoulement advectif. Cette approximation est valide tant que le nombre de Peclet $P_e = \frac{V\lambda}{D}$ (avec V , λ et D respectivement la vitesse du liquide à l'interface, la longueur d'onde de la perturbation et le coefficient de diffusion surfacique du butanol, supposé égal au coefficient volumique [53, 58]), rapport de ces deux flux, est grand devant 1. Dans notre cas, $V \simeq 1 \text{ m.s}^{-1}$ et $\lambda \simeq 10^{-3} \text{ m}$ (voir figure 3.14) et $D \simeq 10^{-10} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ [59], d'où $P_e \simeq 10^7$.

(c) Nous supposons que la tension de surface du mélange eau/butanol obéit à la loi d'Eberhart [60] : $\gamma(\Gamma) = \Gamma\gamma_{eau} + (1 - \Gamma)\gamma_{but}$.

Nous utilisons ensuite une analyse linéaire, en considérant une perturbation de la couche de liquide dont l'amplitude évolue temporellement selon $\delta \zeta e^{st}$ et dont le nombre d'onde est k , si bien qu'il est de la forme $\zeta(x, t) = \bar{\zeta} + \delta \zeta e^{ikx+st}$ avec s complexe et k réel (car $\Delta P = 0$) [30, 61]. En régime linéaire, la concentration surfacique en molécules de butanol s'écrit $\Gamma(x, t) = \bar{\Gamma} + \delta \Gamma e^{ikx+st}$ et la tension de surface évolue de la même manière selon $\gamma(x, t) = \bar{\gamma} + \delta \gamma e^{ikx+st}$, avec $\bar{\gamma}$ la valeur de la tension gaz/liquide pour une concentration surfacique de butanol égale à $\bar{\Gamma}$, celle de l'interface non perturbée.

Avec ces ingrédients, la cinétique de Γ est donnée de manière générale par [53] :

$$\frac{\partial \Gamma}{\partial t} + \nabla_{\mathbf{s}} \cdot (\mathbf{v}_{\text{int}} \Gamma) = \frac{\bar{\Gamma} - \Gamma}{\tau} \quad (3.3)$$

avec \mathbf{v}_{int} le vecteur vitesse du fluide à l'interface, $\nabla_{\mathbf{s}} = (\mathbf{I} - \mathbf{nn}) \cdot \nabla$ l'opérateur gradient surfacique, et $\mathbf{I} - \mathbf{nn}$ le tenseur identité surfacique, (\mathbf{n} est la normale à l'interface gaz/liquide pointant vers le gaz). Le second terme de gauche représente le flux advectif de butanol à l'interface.

La détermination analytique de $\overline{v_{\text{int}}}$ est très compliquée à cause de la section rectangulaire du canal. Nous décrivons donc la physique du problème en approximant le champ de vitesse $3D$ par un champ $2D$, pris à mi-hauteur du canal.

Cette approximation forte nécessite que $\left(\frac{\zeta}{H}\right)^2 \ll 1$, ce qui n'est pas toujours parfaitement valide dans nos expériences (pour des valeurs élevées de Q_w , ζ/H peut se rapprocher de 1, cf. partie 2.3.2) mais permet tout de même d'identifier l'origine physique de l'instabilité.

Nous nous plaçons de plus dans l'approximation de lubrification, valide pour $k\delta\zeta \ll 1$.

Le champ de vitesse est donc bidimensionnel, orienté selon l'axe x et variant dans le plan (x, y) : $\vec{v} = v(x, y, t) \vec{e}_x$. Nous détaillons en Annexe 1 le modèle dans le cas plus général sans cette hypothèse, c'est à dire lorsque $\vec{v} = v(x, y, t) \vec{e}_x + v(x, y, t) \vec{e}_y$: les différences sont négligeables dans notre cas.

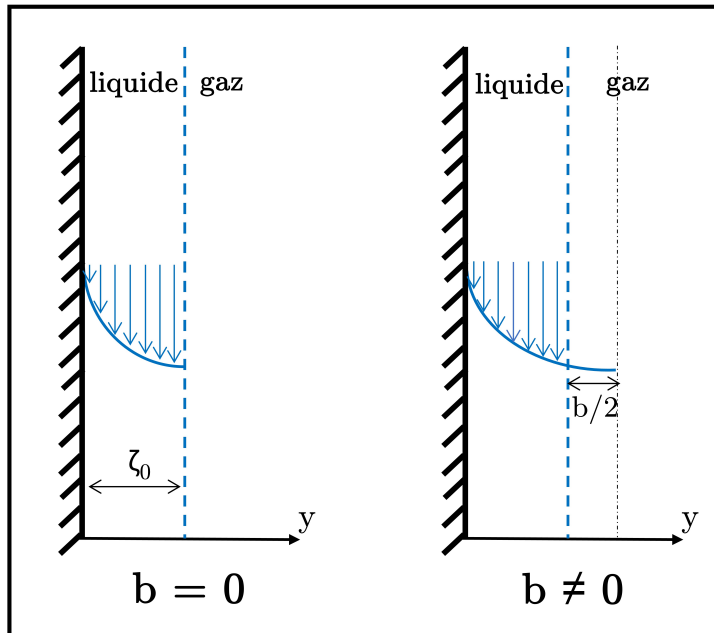


FIGURE 3.23 – Schéma du profil de vitesse parabolique dans le cas où $b = 0$ et $b \neq 0$. Dans le premier cas, il n'y a pas de gradient de tension interfaciale à l'interface et donc pas d'effet Marangoni.

La condition de non-glissement sur les parois du canal et l'effet Marangoni à l'interface gaz/liquide donne pour le champ de vitesse une forme :

$$\vec{v}(x, y, t) = V(x, t) \frac{y[2\zeta(x, t) - y + b(x, t)]}{\zeta(x, t)^2} \vec{e}_x \quad (3.4)$$

avec $\frac{b(x, t)}{2}$ la distance entre l'interface et la position où le profil de vitesse parabolique atteint son maximum (voir figure 3.23).

En régime linéaire, les expressions de $b(x, t)$ et $V(x, t)$ ont aussi la forme $\bar{b} + \delta b e^{ikx+st}$ et $\bar{V} + \delta V e^{ikx+st}$, respectivement, avec \bar{V} la vitesse du liquide à l'interface si l'épaisseur de liquide est constante. Notons cependant que $\bar{b} = 0$ car dans le cas d'une interface non perturbée il n'y a pas d'effet Marangoni, nous avons donc simplement $b = \delta b e^{ikx+st}$.

Pour l'état perturbé, la vitesse du fluide à l'interface gaz/liquide (en $y = \zeta$), \vec{v}_{int} , est $\vec{v}(x, \zeta, t) = V_{int}(x, t) \vec{e}_x$ où $V_{int}(x, t) = V(x, t)[1 + b(x, t)/\zeta(x, t)]$.

En lubrification, l'équation vectorielle (3.3) devient simplement :

$$\frac{\partial \Gamma}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(V_{int}\Gamma) = \frac{\bar{\Gamma} - \Gamma}{\tau} \quad (3.5)$$

En utilisant l'équation d'Eberhart $\Gamma(\gamma) = \frac{\gamma - \gamma_{but}}{\gamma_{eau} - \gamma_{but}}$ et l'équation (3.5), nous trouvons facilement que l'équation cinétique qui décrit l'évolution de $\gamma(x, t)$ s'écrit :

$$\frac{\partial \gamma}{\partial t} + V_{int} \frac{\partial \gamma}{\partial x} = \frac{\bar{\gamma} - \gamma}{\tau} + E_g \bar{\gamma} \frac{\partial V_{int}}{\partial x} \quad (3.6)$$

avec $E_g = \frac{\gamma - \bar{\gamma}}{\bar{\gamma}}$ le module d'élasticité de Gibbs adimensionné.

L'équilibre des contraintes tangentielles à l'interface s'écrit $\eta \frac{\partial v_x}{\partial y} - \eta_g \frac{\partial v_{xg}}{\partial y} = \eta \frac{\partial v_x}{\partial y} = \frac{\partial \gamma}{\partial x}$, car la viscosité du gaz $\eta_g = 0.017 \text{ mPa.s}$ est bien plus faible que la viscosité du liquide $\eta = 1.1 \text{ mPa.s}$.

Sachant que $\frac{\partial v_x}{\partial y} = \frac{V(x, t)}{\zeta(x, t)^2} (-2y + 2\zeta(x, t) + b(x, t)) = \frac{V(x, t)b(x, t)}{\zeta(x, t)^2}$ en $y = \zeta$, nous obtenons l'équation :

$$\eta \frac{bV}{\zeta^2} - \frac{\partial \gamma}{\partial x} = 0 \quad (3.7)$$

En lubrification, nous pouvons négliger les termes non linéaires de l'équation de Navier-Stokes, qui se réduit donc avec notre champ de vitesse à $\frac{\partial P}{\partial x} = \eta \frac{\partial^2 V_x}{\partial y^2}$ [62], nous obtenons alors l'équation suivante :

$$2\eta \frac{V}{\zeta^2} + \frac{\partial P}{\partial x} = 0 \quad (3.8)$$

avec P la pression dans le liquide, somme de la pression du gaz et du terme de pression de Laplace : $P = P_g - \frac{2\gamma}{H} - \gamma \frac{\partial^2 \zeta}{\partial x^2}$ (équation 3.2).

Nous fermons le problème en écrivant l'équation de conservation volumique du liquide, supposé incompressible :

$$\frac{\partial \zeta}{\partial t} + \frac{\partial Q}{\partial x} = 0 \quad (3.9)$$

Le calcul du débit donne $Q = \int_0^{\zeta(x,t)} v(x,y) dy = \frac{\bar{V}}{\zeta^2} [-\frac{y^3}{3} + \frac{y^2}{2}(2\zeta + b)]_0^{\zeta} = \frac{bV}{2} + \frac{2V\zeta}{3}$.

2.2.2 Analyse linéaire

Nous procédons maintenant à une analyse de stabilité linéaire en utilisant les équations (3.6), (3.7), (3.8) et (3.9), qui gouvernent la réponse spatio-temporelle du système, c'est à dire des perturbations δV , $\delta \zeta$, $\delta \gamma$ et δb .

L'équation (3.6) donne au premier ordre, en utilisant l'expression de la vitesse du fluide à l'interface, $V_{int}(x,t) = V(x,t)[1 + b(x,t)/\zeta(x,t)]$:

$$-iE_g k \bar{\gamma} (\delta V + \frac{\bar{V} \delta b}{\zeta}) + \delta \gamma (i\bar{V}k + s + \frac{1}{\tau}) = 0 \quad (3.10)$$

L'équilibre des contraintes tangentielles à l'interface (3.7) conduit de même, au premier ordre, à l'équation suivante :

$$\eta \bar{V} \frac{\delta b}{\zeta^2} - ik \delta \gamma = 0 \quad (3.11)$$

Nous pouvons négliger la perturbation de pression dans le gaz, qui est bien moins visqueux que le liquide [30]. L'équation de Navier-Stokes (3.8) $2\eta \frac{V}{\zeta^2} + \frac{\partial(P_g - \frac{2\gamma}{H} - \gamma \frac{\partial^2 \zeta}{\partial x^2})}{\partial x} = 0$ devient, au premier ordre et en utilisant le fait que $\frac{\delta \zeta}{\zeta} \ll 1$:

$$\frac{2\eta}{\bar{\zeta}^3}(\bar{\zeta}\delta V - 2\bar{V}\delta\zeta) + ik(k^2\bar{\gamma}\delta\zeta - \frac{2\delta\gamma}{H}) = 0 \quad (3.12)$$

Finalement, l'équation de conservation du débit volumique (3.9) donne toujours au premier ordre :

$$s\delta\zeta + ik\left(\frac{2}{3}(\bar{\zeta}\delta V + \bar{V}\delta\zeta) + \frac{\bar{V}\delta b}{2}\right) = 0 \quad (3.13)$$

Nous avons avec les équations (3.12-3.10) un système de 4 équations linéaire pour les 4 inconnues δV , $\delta\zeta$, $\delta\gamma$ et δb du problème.

La matrice de ce système linéaire :

$$\begin{pmatrix} \frac{\partial(3.10)}{\partial V} & \frac{\partial(3.10)}{\partial b} & \frac{\partial(3.10)}{\partial \zeta} & \frac{\partial(3.10)}{\partial \gamma} \\ \frac{\partial(3.11)}{\partial V} & \frac{\partial(3.11)}{\partial b} & \frac{\partial(3.11)}{\partial \zeta} & \frac{\partial(3.11)}{\partial \gamma} \\ \frac{\partial(3.12)}{\partial V} & \frac{\partial(3.12)}{\partial b} & \frac{\partial(3.12)}{\partial \zeta} & \frac{\partial(3.12)}{\partial \gamma} \\ \frac{\partial(3.13)}{\partial V} & \frac{\partial(3.13)}{\partial b} & \frac{\partial(3.13)}{\partial \zeta} & \frac{\partial(3.13)}{\partial \gamma} \end{pmatrix}$$

vaut :

$$M = \begin{pmatrix} -iE_g k \bar{\gamma} & -\frac{ikE_g \bar{V} \bar{\gamma}}{\zeta} & 0 & s + ik\bar{V} + \frac{1}{\tau} \\ 0 & \frac{\bar{V}\eta}{\zeta^2} & 0 & -ik \\ \frac{2\eta}{\zeta^2} & 0 & ik^3\bar{\gamma} - 4\frac{\eta\bar{V}}{\zeta^3} & -\frac{2ik}{H} \\ \frac{2ik\bar{\zeta}}{3} & \frac{ik\bar{V}}{2} & s + \frac{2ik\bar{V}}{3} & 0 \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

Étant donné la complexité du système, nous utilisons par la suite le logiciel Mathematica®, logiciel de calcul formel très puissant de la société Wolfram Research.

Nous déterminons l'équation de dispersion du système en calculant $\det(M) = 0$, nous obtenons l'équation :

$$\begin{aligned}
 & -\gamma_0 E_g \zeta_0 H k^2 \tau (\gamma_0 \zeta_0^3 k^4 + 12i\eta k V_0 + 12\eta s) + 4i\gamma_0 E_g \zeta_0^2 \eta k^2 \tau (-2kV_0 + 3is) \\
 & - 4\eta H (ik\tau V_0 + s\tau + 1) (\gamma_0 \zeta_0^3 k^4 + 6i\eta k V_0 + 3\eta s) = 0 \quad (3.15)
 \end{aligned}$$

du second degré en s . Nous cherchons maintenant à connaître le signe de la partie réelle de s , $Re(s)$, car une instabilité n'apparaît que s'il existe un mode propre pour lequel $Re(s) > 0$.

Commençons par réécrire l'équation de dispersion (1). En effet, une analyse de notre système physique montre qu'il est décrit par 4 nombres sans dimension :

- un nombre capillaire $C_a = \eta \bar{V} / \bar{\gamma}$.
- un autre nombre $C_m = \frac{H\eta}{\bar{\gamma}\tau}$, rapport entre la vitesse de migration du butanol H/τ et la vitesse capillaire.
- le rapport épaisseur du liquide sur hauteur du canal $X = \bar{\zeta}/H$.
- le module d'élasticité de Gibbs E_g .

Nous introduisons également les variables sans dimensions $q = k\bar{\zeta}$ et $S = s\tau$. L'équation (1) devient :

$$\begin{aligned}
 & [12C_m^2 X^2] S^2 \\
 & + [4(9iC_a C_m X q + C_m^2 X^2 + 3C_m E_g q^2 X(X+1) + C_m X q^4)] S \\
 & - 24C_a^2 q^2 + 4iC_a(6C_m X q + E_g q^3(2X+3) + q^5) + 4C_m X q^4 + E_g q^6 \\
 & = 0 \quad (3.16)
 \end{aligned}$$

Nous calculons les deux racines :

$$\begin{aligned}
 S_{\pm}(q) = & - \left(\frac{1}{24C_m^2 X^2} \right) \left[\left(\pm 48C_m^2 X^2 (24C_a^2 q^2 - 24iC_a C_m q X - 8iC_a E_g q^3 X \right. \right. \\
 & \left. \left. - 12iC_a E_g q^3 - 4iC_a q^5 - 4C_m q^4 X - E_g q^6 \right) \right. \\
 & \left. + (36iC_a C_m q X - 12C_m^2 X^2 - 12C_m E_g q^2 X^2 - 12C_m E_g q^2 X - 4C_m q^4 X)^2 \right]^{1/2} \\
 & + 36iC_a C_m q X + 12C_m^2 X^2 + 12C_m E_g q^2 X^2 + 12C_m E_g q^2 X + 4C_m q^4 X \quad (3.17)
 \end{aligned}$$

Dans le cas où $E_g = 0$ i.e. sans effet Marangoni, les deux solutions deviennent :

$$s_{10} = -\frac{1}{\tau} - ik\bar{V} \quad (3.18)$$

et

$$s_{2_0} = -\frac{k^4 \bar{\gamma} \bar{\zeta}^3}{3\eta} - 2ik\bar{V}\eta \quad (3.19)$$

Nous reconnaissons ici une onde de densité de tensioactif et une onde capillaire, deux modes de fluctuation amortis et convectés.

C'est le couplage entre ces deux ondes qui va générer l'instabilité, quand les conditions d'écoulement le permettent.

En effet, imaginons une onde d'épaisseur de liquide; celle-ci sera convectée avec le liquide donc à une vitesse plus faible que V_{int} , la vitesse de l'interface gaz/liquide (on rappelle que $V_{int}(x, t) = V(x, t)[1 + b(x, t)/\zeta(x, t)]$). Le mouvement de cette onde génère des dilatations et des compressions de l'interface, qui à leurs tours génèrent des variations de γ qui voyagent à la vitesse V_{int} , donc plus vite que l'onde. Ces variations de γ génèrent des variations de pression locale qui conduisent à des variations d'épaisseur de liquide. Ainsi, quand les conditions d'écoulement sont telles que l'augmentation de tension interfaciale générée par l'épaississement convecté est en phase avec l'épaississement du film liquide, ce dernier peut croître. Cette croissance est évidemment limitée par les non-linéarités, notamment de $\zeta(x, t)$ dans l'équation de Navier-Stokes, et une onde stable non-linéaire est finalement formée. Notre analyse linéaire du problème ne permet pas de prédire le profil d'épaisseur correspondant à cette onde.

La figure ci-dessous résume cette explication qualitative :

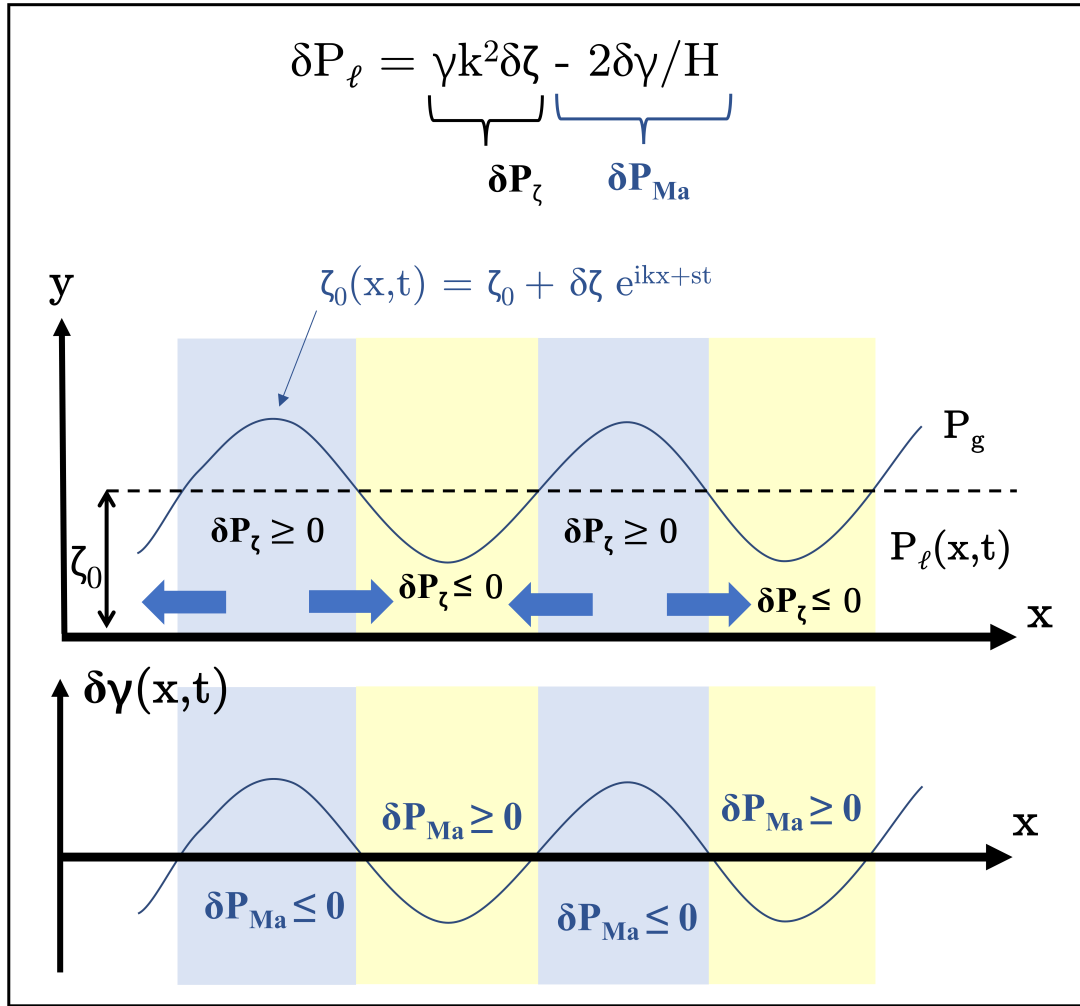


FIGURE 3.24 – Partie haute : équation décrivant les deux termes contribuant à δP . Milieu : représentation des variations selon x à un instant donné de l'interface et de la variation de pression engendrée, ainsi que de l'écoulement de liquide résultant (flèches bleues). Bas : représentation de la variation selon x à un instant donné de la tension de surface et des variations de pression résultantes. Les deux ondes étant en phase, la perturbation peut croître.

Ce schéma représente le cas où les deux ondes sont en phase, ce qui donnera lieu à une déstabilisation. Dans le cas où elles seraient en opposition, le système serait toujours stable. Dans les autres cas, une analyse plus fine des amplitudes serait nécessaire pour déterminer la stabilité.

2.3 Analyse du modèle, comparaison avec les expériences

2.3.1 Analyse du modèle

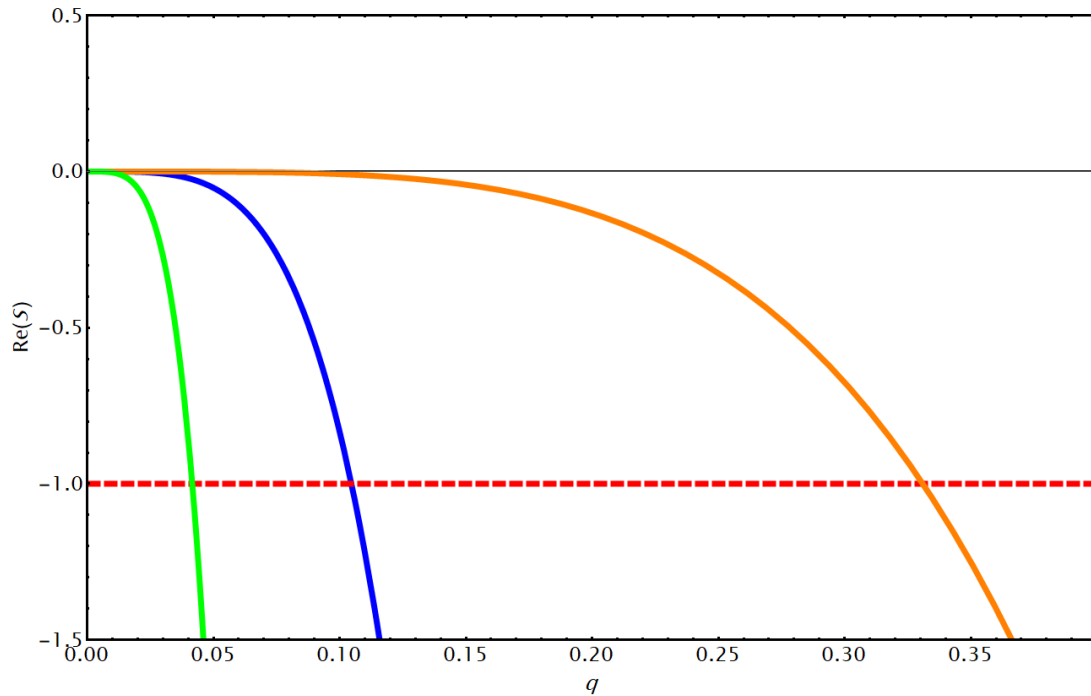


FIGURE 3.25 – $R_e(S)$ en fonction de q pour S_{1_0} l'onde de densité de tensioactif (pointillés rouges) et S_{2_0} l'onde capillaire (trait plein) pour des valeurs de $C_m = 10^{-4}$ et $X = 0.4$ (bleu), $C_m = 10^{-2}$ et $X = 0.4$ (orange), $C_m = 10^{-4}$ et $X = 0.01$ (vert).

La figure 3.25 illustre l'évolution de la partie réelle de S , $R_e(S)$, en fonction de q , dans le cas $E_g = 0$ donc sans effet Marangoni, pour différentes valeurs arbitraires de C_a , C_m et X . Celle-ci est évidemment toujours négative pour tout q , le système est toujours stable.

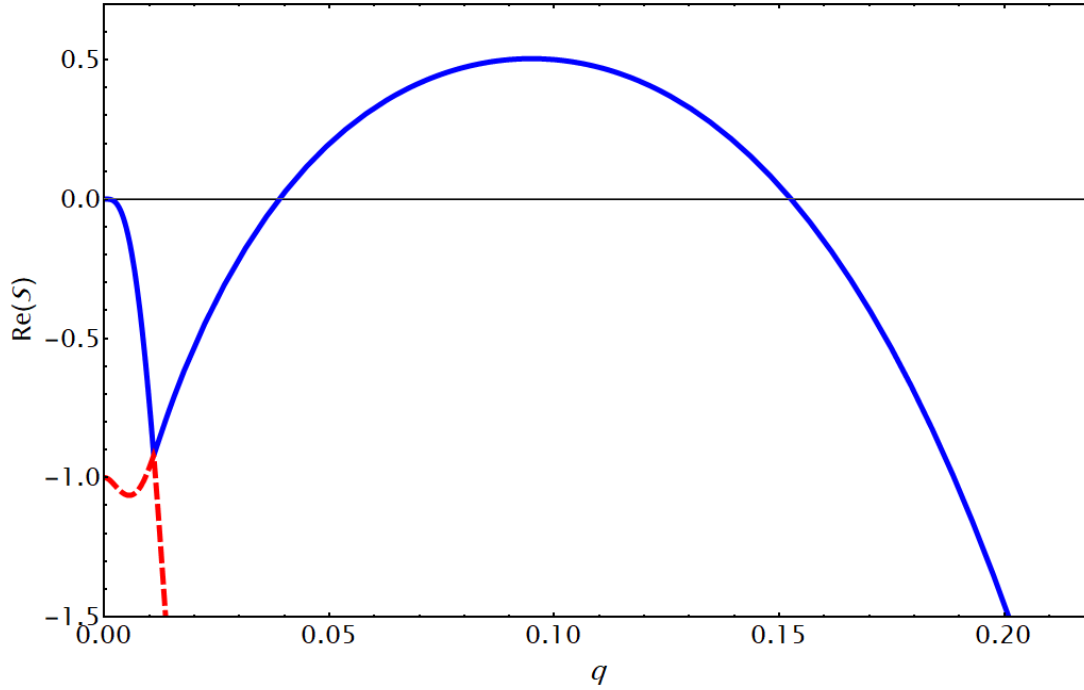


FIGURE 3.26 – $R_e(S)$ en fonction de q pour S_+ l'onde de densité de tensioactif (pointillés rouges) et S_- l'onde capillaire (trait bleu plein) pour des valeurs arbitraires de $C_a = 10^{-2}$, $C_m = 10^{-4}$, $X = 0.4$ et $E_g = 0.2$.

La figure 3.26 illustre en revanche l'évolution de la partie réelle de S , $R_e(S)$, en fonction de q , dans un cas $E_g \neq 0$, pour des valeurs arbitraires de $C_a = 10^{-2}$, $C_m = 10^{-4}$, $X = 0.4$ et $E_g = 0.2$. Cette fois, il existe bien un domaine de valeurs de q où l'un des deux modes est instable i.e. où $R_e(s) > 0$!

Pour étudier plus en détail l'influence de \bar{V} et $\bar{\zeta}$ pour une composition de liquide donnée, nous traçons des diagrammes de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$. Pour cela, nous reportons en rouge les domaines où le système est stable (i.e. $R_e(S) < 0$ pour tout q) et en bleu les domaines où il est instable (i.e. $R_e(S) > 0$), tout en gardant C_m et E_g constants. En effet, ces derniers ne dépendent que de la physico-chimie du système (η , $\bar{\gamma}$ et τ) et du paramètre géométrique H .

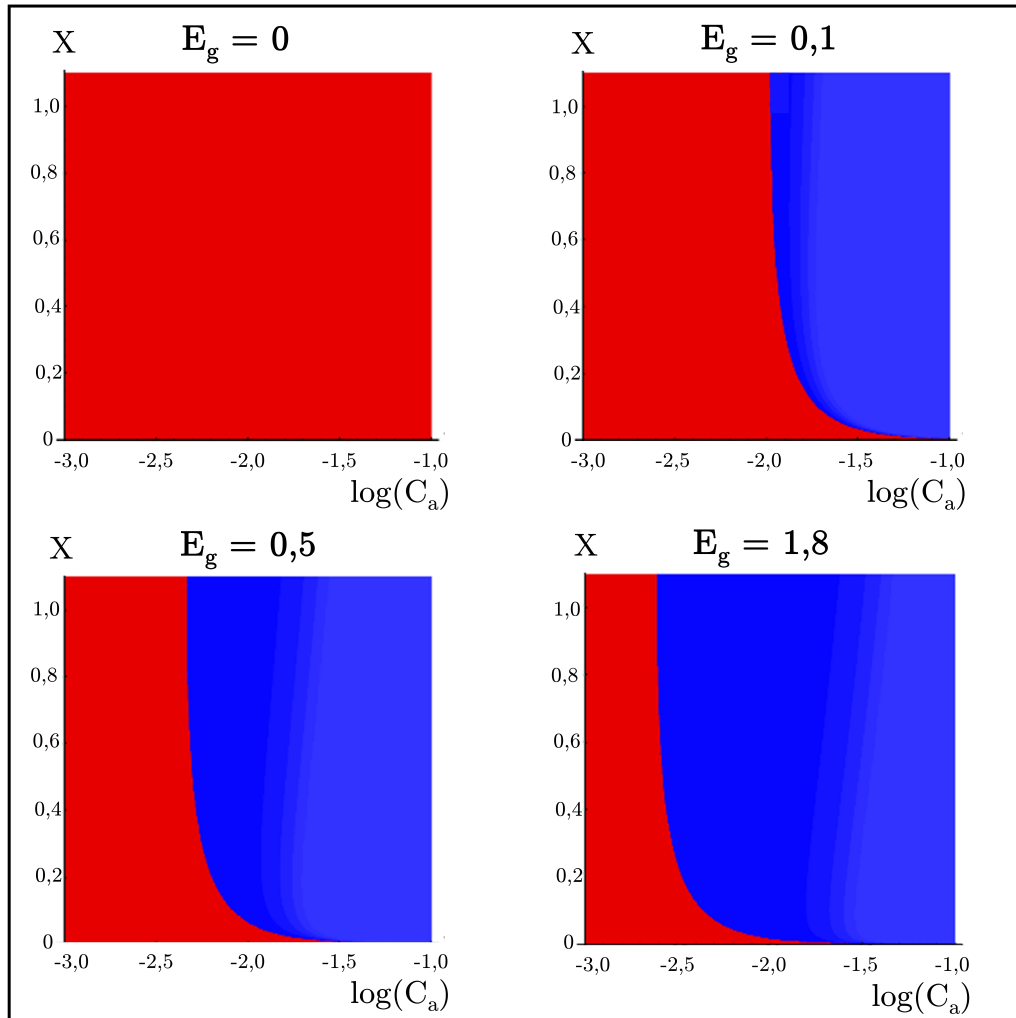


FIGURE 3.27 – Diagrammes de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$, calculés numériquement pour $C_m = 4.6 \cdot 10^{-4}$ (ce qui correspond à $\tau = 6 \cdot 10^{-3}$ s) et quatre E_g différents. Les régions représentées en bleu sont les domaines instables et celles représentées en rouge sont les domaines stables.

La figure 3.27 montre quatre diagrammes de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$, calculés numériquement pour $C_m = 4.6 \cdot 10^{-4}$, ce qui correspond à $\tau = 6 \cdot 10^{-3}$ s, et quatre valeurs différentes de E_g : 0, 0.1, 0.5 et 1.8. Nous voyons que pour $E_g = 0$, le diagramme est sans surprise entièrement rouge, indiquant que le système est toujours stable quelles que soient les conditions de l'écoulement. En revanche, pour toute valeur de E_g non nulle, il existe un domaine instable (bleu) pour des nombres C_a assez grands. De plus, la plage de C_a qui permet au système de développer une instabilité augmente avec E_g , ce qui est attendu, E_g quantifiant en quelque sorte l'intensité de l'effet Marangoni.

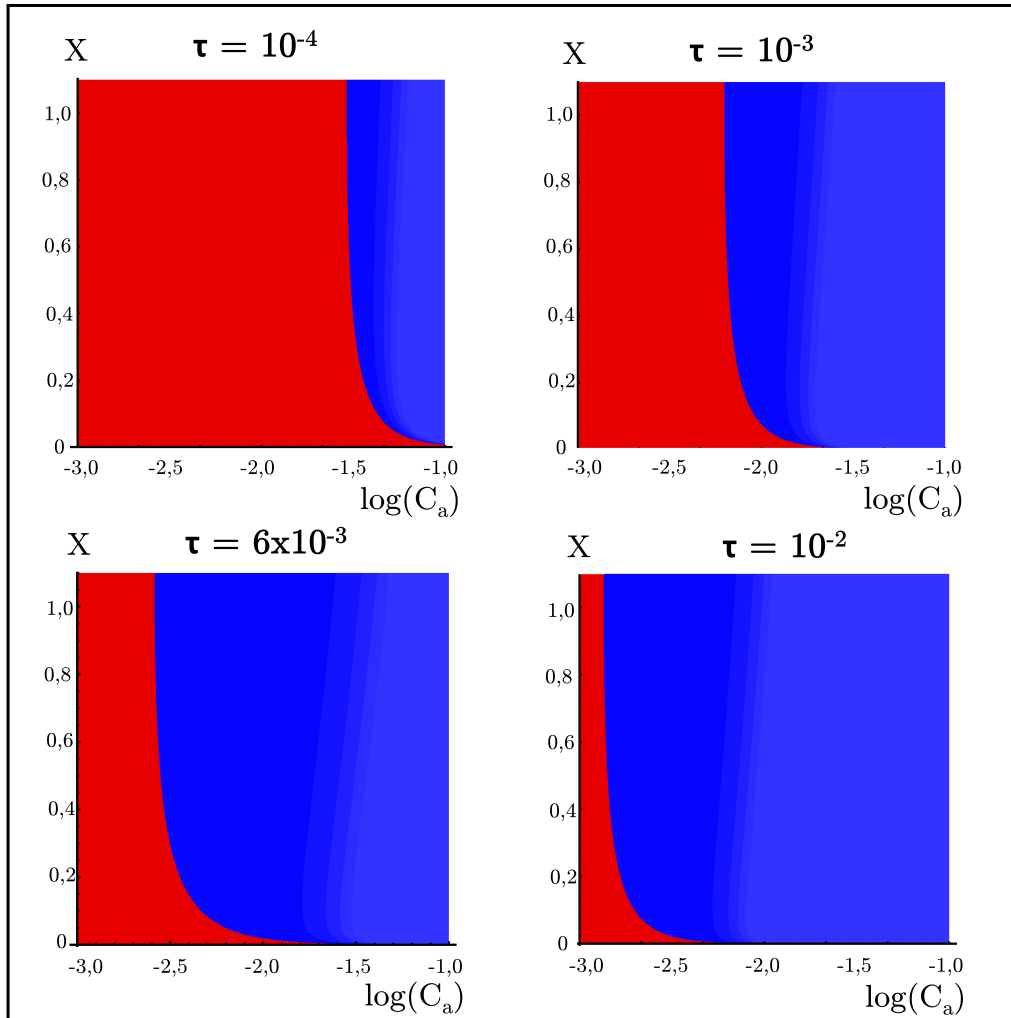


FIGURE 3.28 – Diagrammes de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$, calculés numériquement pour $E_g = 1.8$ et quatre valeurs différentes de C_m (et donc de τ). Les régions représentées en bleu sont les domaines instables et celles représentées en rouge sont les domaines stables.

La figure 3.28 montre de même quatre diagrammes de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$ calculés numériquement, mais cette fois pour $E_g = 1.8$ et quatre valeurs différentes de C_m (et donc de τ , à savoir : 10 ms, 6 ms, 1 ms et 0.1 ms). Nous constatons que la plage de C_a qui permet au système de développer une instabilité augmente avec τ , ce qui n'est pas forcément intuitif.

Il ne faut cependant pas sur-interpréter ce modèle qui, s'il a certes le mérite de prédire l'existence d'une instabilité d'un jet 2D-confiné due à un effet Marangoni, reste toutefois très simpliste. Parmi les nombreuses hypothèses et simplifications utilisées, l'hypothèse (a) d'une cinétique d'adsorption/désorption des molécules mono-exponentielle est une hypothèse assez forte que l'on sait fautive stricto sensu et qui nous encourage à rester modestes dans nos interprétations de τ .

2.3.2 Comparaison avec l'expérience utilisant la solution contenant 7% de butanol

Il nous faut maintenant comparer quantitativement nos prédictions théoriques avec nos résultats expérimentaux. Pour cela, il faut évaluer les nombres sans dimension mis en jeu.

Nous voyons sur la figure 3.13 B que dans notre expérience avec la solution la plus concentrée, à 7% de butanol, la déstabilisation de l'épaisseur de liquide a déjà commencé à se développer à une distance de quelques centaines de microns de la jonction, c'est à dire compte tenu de la vitesse du fluide $v_\ell \simeq 0.1m/s$ (voir figure 3.14) 1 à 10 ms environ après la formation du jet.

Or, nous avons vu notamment sur la figure 3.6 qu'à cette échelle de temps, les molécules de *Tween* 20 n'ont pas le temps de s'adsorber. Pour le système sans butanol, la valeur de la tension de surface $\bar{\gamma}$ à l'interface gaz/liquide est donc plus au moins constante et proche de celle de l'eau $\gamma_{eau} = 72.4 mN.m^{-1}$. Une déformation de l'interface ne générera donc pas d'effet Marangoni car la concentration surfacique en molécules de *Tween* 20 (et donc la valeur de γ) ne variera pas à une échelle de temps si courte. Nous pouvons donc en conclure que l'effet Marangoni dû à l'adsorption de molécules de *Tween* 20 ne peut déstabiliser un jet $2D$ -confiné, ce qui est bien ce qu'on observe expérimentalement.

En revanche, pour le système avec 7% de butanol, la situation est différente car les molécules de butanol peuvent s'adsorber à l'interface en un temps très court (voir figure 3.6). Les données manquantes pour $t_{vie} < 10 ms$ pour la solution à 7% de butanol s'expliquent par le fait que l'appareil de MBPT n'est capable de mesurer la tension aux temps très courts que pour des solutions suffisamment diluées. Nous ne pouvons donc comparer que qualitativement les résultats au modèle, puisque les valeurs exactes de $\bar{\gamma}$, E_g et τ sont impossibles à déterminer exactement. Nous pouvons seulement donner une borne supérieure de τ : $\tau \leq 10^{-2} s$.

Quand l'aire de l'interface gaz/liquide augmente brusquement à cause de la perturbation, l'interface nouvellement créée présente la composition du volume. En utilisant l'équation d'Eberhart et un modèle cuboïde des molécules, nous calculons une valeur de la tension de surface à $t = 0 s$ pour une composition de l'interface correspondant à celle du volume de $\gamma_0 = 70.9 mN.m^{-1}$. Comme $\gamma_0 > \bar{\gamma} \geq \gamma_{but}$, nous en déduisons que $0 < E_g \leq 1.8$.

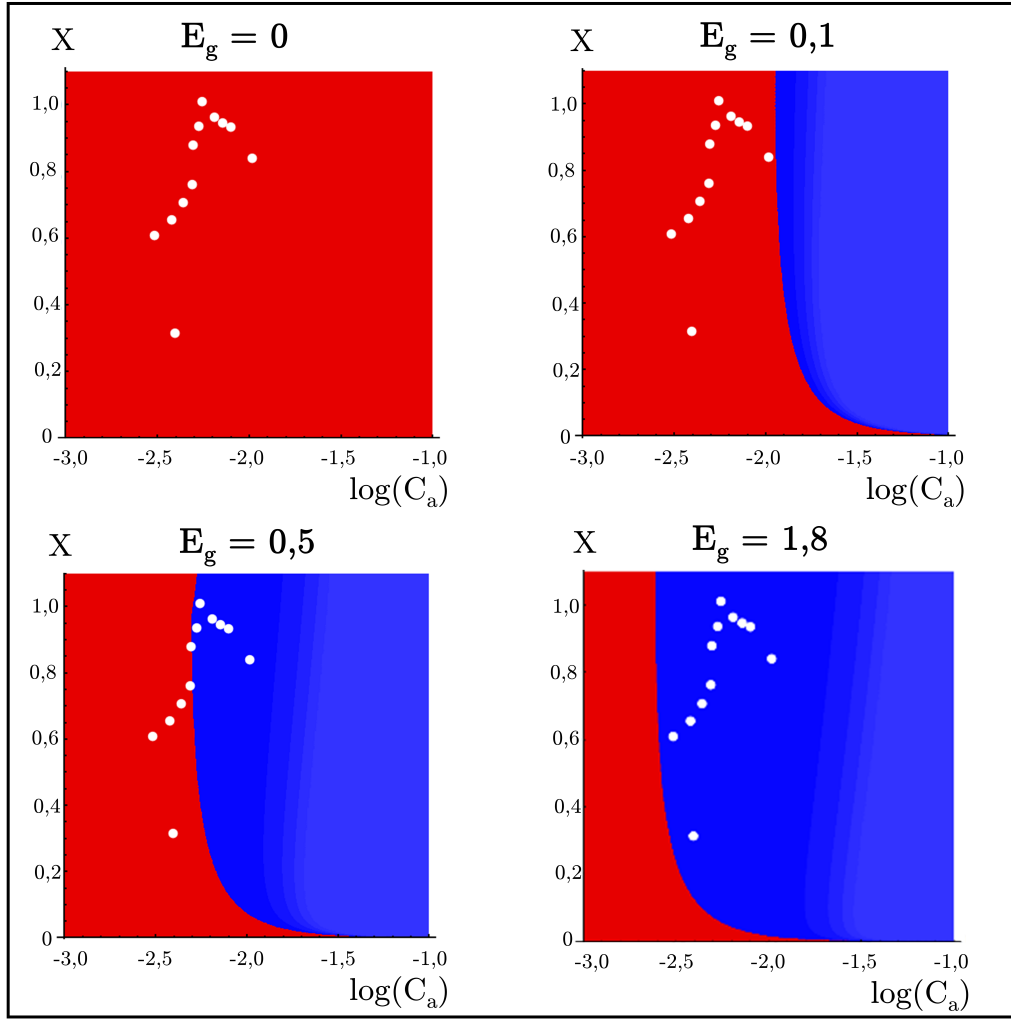


FIGURE 3.29 – Diagrammes de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$, calculés numériquement pour $C_m = 4.6 \cdot 10^{-4}$ et donc $\tau = 6 \cdot 10^{-3}$ et quatre valeurs différentes de E_g . Les régions représentées en bleu sont les domaines instables et celles représentées en rouge sont les domaines stables. Les points blancs correspondent aux conditions expérimentales de nos observations menées sur la solution contenant 7% de butanol, pour toutes les valeurs de Q_w en régime J (i.e. entre 10 et 140 $\mu L/min$) (voir figure 3.9)

La figure 3.29 montre des diagrammes de stabilité où nous avons cette fois ajouté les points expérimentaux. Nous avons choisi la valeur de $C_m = 4.6 \cdot 10^{-4}$ (correspondant à $\tau = 6.0 \cdot 10^{-3}$) la plus petite possible pour que tous les points expérimentaux soient bien dans le domaine instable pour $E_g = 1.8$ (elle-même la valeur la plus "instable" possible).

Nous constatons que pour ce choix de (E_g, τ) qui respecte les deux critères $0 < E_g \leq 1.8$ et $\tau \leq 10^{-2}$ s, tous les points qui sont instables expérimentalement sont bien prédits instables par notre modèle simpliste.

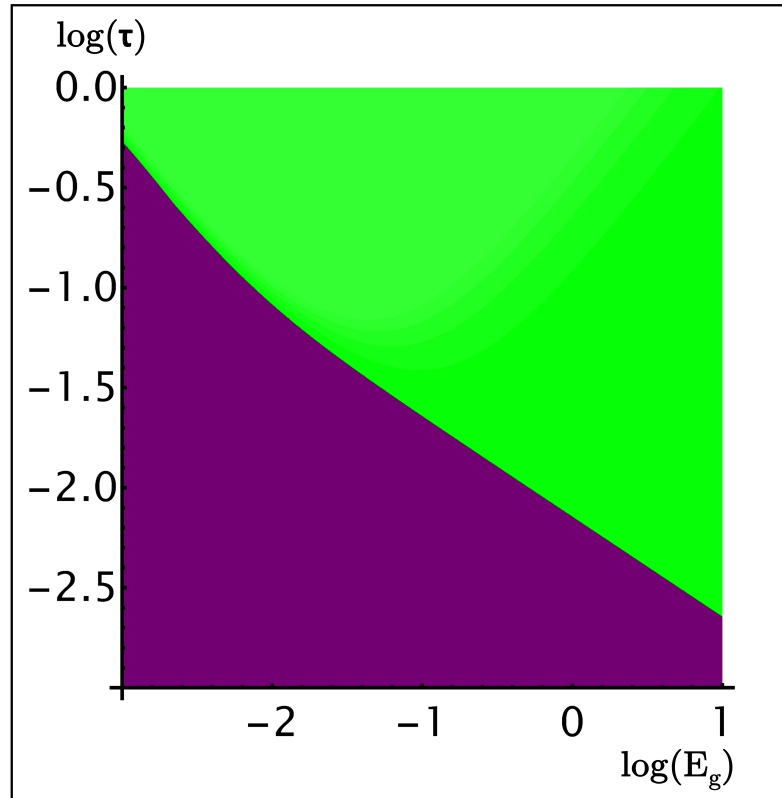


FIGURE 3.30 – Diagramme dans le plan $[\log(E_g), \log(\tau)]$ calculé numériquement, représentant les zones où les prédictions du modèle sont compatibles (vert) ou incompatibles (violet) avec les résultats expérimentaux obtenus sur la solution contenant 7% de butanol

Pour être plus exhaustif, nous représentons en vert sur la figure 3.30 les domaines de E_g et τ où tous les points expérimentaux sont bien prédits instables par la théorie et en violet ceux où ce n'est pas le cas. Comme vu précédemment, E_g et τ doivent être suffisamment grands pour que les prédictions du modèle soient en adéquation avec nos résultats expérimentaux.

2.3.3 Comparaison aux expériences avec des solutions contenant différents % de butanol

Nous discutons maintenant les prédictions du modèle que nous comparons aux résultats expérimentaux obtenus pour des solutions à plus faibles concentrations de butanol, notamment à 4%. En effet, cette expérience a montré de façon très intéressante que suivant la valeurs du débit de liquide injecté, des jets stables ou instables pouvaient être observés.

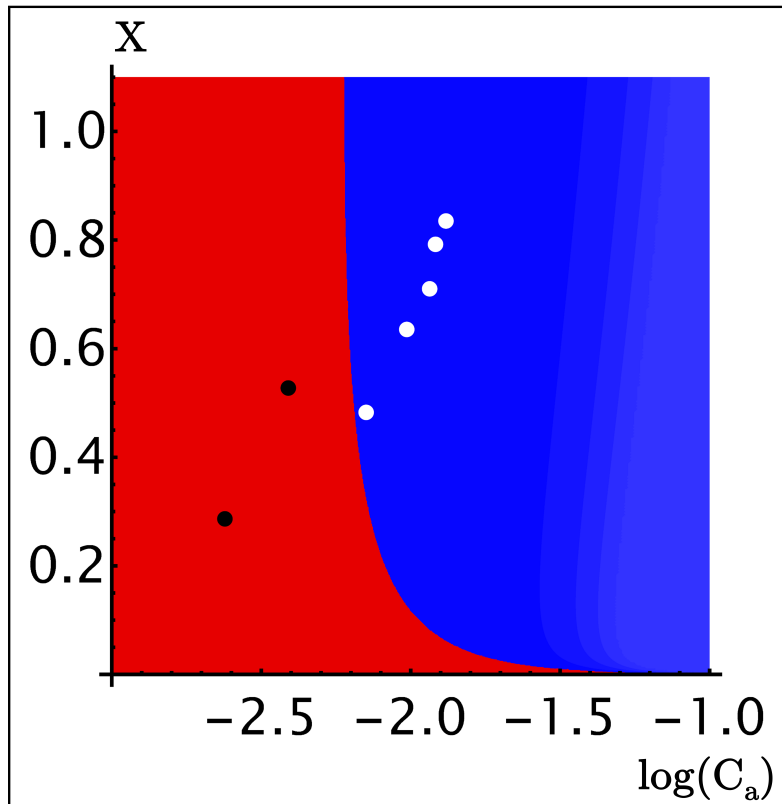


FIGURE 3.31 – Diagramme de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$, calculé numériquement pour $E_g = 1.8$ et $C_m = 0.001052$ (donc $\tau = 2.10^{-3}$). Les régions représentées en bleu sont les domaines instables et celles représentées en rouge sont les domaines stables. Les points correspondent aux conditions expérimentales de nos observations avec la solution contenant 4% de butanol, en noir pour les valeurs en régime J et en blanc pour les valeurs en régime P (voir Fig.3.16)

Nous voyons sur ce diagramme de stabilité dans le plan $[\log(C_a), X]$ où l'on a représenté les points expérimentalement stables en noir et ceux instables en blanc, qu'il existe une plage bien précise de valeurs de E_g et C_m (ou τ) pour laquelle les prédictions du modèle sont en adéquation avec nos résultats expérimentaux.

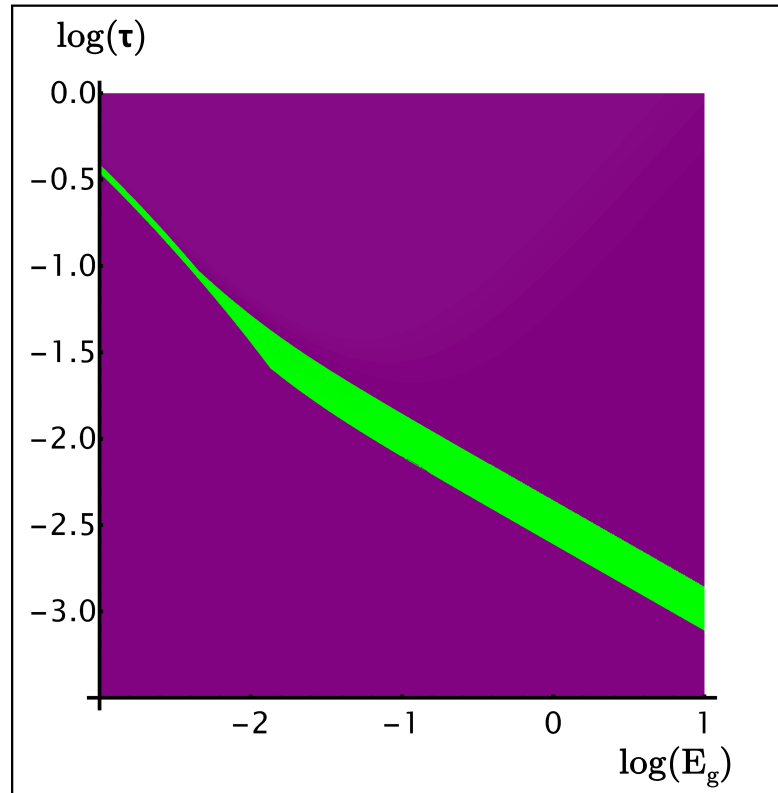


FIGURE 3.32 – Diagramme dans le plan $[\log(E_g), \log(\tau)]$ calculé numériquement, représentant les zones où les prédictions du modèle sont compatibles (vert) ou incompatibles (violet) avec les résultats expérimentaux obtenus avec une solution contenant 4% de butanol.

Pour être à nouveau plus exhaustif, nous représentons en vert sur la figure 3.32 les domaines de E_g et τ où les prédictions du modèle sont en bonne adéquation avec nos résultats expérimentaux. Cette fois, la présence de jets stables et instables permet de réduire fortement le domaine de E_g et τ . Il est cependant difficile, comme nous l'avons expliqué plus haut, d'estimer la valeur réelle de τ et E_g et de les comparer à leurs valeurs dans le cas d'une solution à 7% de butanol.

Pour terminer sur l'analyse du modèle nous pouvons, en plus de s'intéresser à l'existence ou non d'un mode instable (de $R_e(s) > 0$), s'intéresser à la longueur d'onde du mode le plus instable prédit par le modèle linéaire.

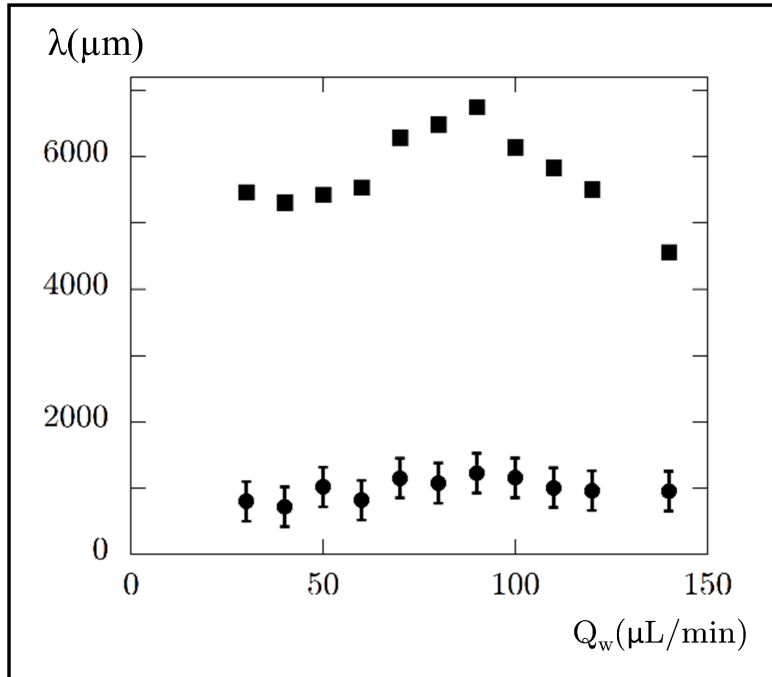


FIGURE 3.33 – Valeur de la longueur d’onde du mode le plus instable prévue par le modèle (■) et valeur expérimentale de la longueur d’onde observée (●).

La figure 3.33 montre la valeur de la longueur d’onde du mode le plus instable prévue par le modèle comparée à la valeur expérimentale, déterminée avec la solution contenant 7 % de butanol. Nous constatons la présence d’un facteur 5 environ entre les deux, avec une longueur d’onde de l’ordre d’un millimètre constatée pour une longueur d’onde prédite autour de 5 mm. Cet écart reste toutefois acceptable pour une simple analyse de stabilité linéaire.

3 Résumé et conclusion du chapitre

En conclusion, nous avons vu que l’ajout d’une quantité suffisante de butanol à la phase liquide d’un système microfluidique de formation de bulles en flow-focusing pouvait entraîner une déstabilisation d’un jet 2D-confiné. Cette déstabilisation est due à l’effet Marangoni généré par ces molécules qui s’adsorbent très rapidement à l’interface. Un modèle simple basé sur une analyse de stabilité linéaire a été développé et a permis de mieux comprendre les mécanismes de déstabilisation et les paramètres mis en jeu. Ce travail a fait l’objet d’une publication (Physics of Fluids 35, 042111 (2023)) jointe en Annexe 2.

Chapitre 4

Étude millifluidique de la stabilité d'une mousse et criblage de tensioactifs

Objectifs

Nous étudions un nouveau montage à l'échelle millifluidique cette fois, qui permet de générer une mousse, de faire varier continûment son débit fractionnaire, et d'étudier sa stabilité lors de son écoulement en fonction du tensioactif utilisé. Cette étude étant encore en cours au moment de l'écriture de ce manuscrit, les résultats présentés ici ne sont que préliminaires.

Sommaire

1	Introduction	98
2	Aspects expérimentaux	98
	2.1 Matériel et méthode	98
	2.2 Échec du premier montage	100
	2.3 Résultats et analyses	101
3	Résumé et conclusion du chapitre	123

1 Introduction

Les études microfluidiques des deux chapitres précédents nous ont apporté quelques réponses sur les facteurs influençant la formation de mousse dans un milieu poreux. Cependant, ils ont surtout montré l'influence de la mousse déjà en écoulement sur la formation de celle-ci en amont par un processus de "rétroaction" hydrodynamique. Il est donc difficile de découpler les études de formation de la mousse de celles de son écoulement, et à fortiori de sa destruction lors de son transport. Ce constat est ce qui a principalement motivé le changement d'échelle de la microfluidique à la millifluidique. En effet, le montage présenté ci-après a la particularité de faire s'écouler la mousse dans un tube dont la longueur est très supérieure à la taille des bulles créées (et donc pendant une durée élevée). Du fait de la compressibilité du gaz, les bulles voient leurs volumes augmenter le long de l'écoulement puisque la pression locale diminue. Ce montage permet ainsi de faire varier continûment le débit fractionnaire du gaz le long de l'écoulement. Il est donc ainsi possible, comme nous allons le voir, d'étudier la coalescence de la mousse lors de son transport, et de comparer l'influence de différents tensioactifs sur cette dernière.

2 Aspects expérimentaux

2.1 Matériel et méthode

La montage utilisé (voir schéma figure 4.1) est constitué :

- d'une arrivée de gaz à pression $P_g = P_0 + \delta P$ imposée par un contrôleur de pression *OB1 MK3+* (Elvesys, France) relié à un réservoir d'azote pressurisé. Le débit de gaz résultant est mesuré par 2 débitmètres à gaz *El-Flow Select F-111B* et *F-110C* (Bronkhorst, EUA) montés en série qui permettent de mesurer des débits entre 0.01 et 10 *mL/min*. La sortie se trouve à pression atmosphérique P_0 .

- d'une arrivée de liquide à un débit imposé, mais cette fois non pas par un pousse-seringue *Nexus 3000* qui a une gamme de débits bien trop réduite et une capacité maximale (autour de 120 *mL*) bien trop faible pour nos études conduites en millifluidique, mais par une pompe haute performance *SyriXus* (Teledyne ISCO, EUA) de contenance 500 *mL*.

Ces deux arrivées se rejoignent à une jonction en T commerciale (*IDEX*, EUA), et la sortie est reliée à un tuyau en FEP (*IDEX*, EUA) d'une longueur de 5.5 *m*. Notons que ce matériau est hydrophile et transparent. Ce tuyau est enroulé sur lui-même en plusieurs boucles de rayons d'environ 40 *cm*, de manière à pouvoir filmer simultanément avec un champ de 10 *cm*² l'écoulement de la mousse, à une distance x de 0.8, 1.8, 2.8, 3.8 et 4.8 *m* de la jonction en T où les bulles se forment. La caméra utilisée est une caméra rapide *FASTCAM Mini AX100* (*Photron*, Japon) dont la fréquence d'acquisition des images est fixée pour nos études à 2000 images par seconde. Munie d'un objectif Macro, la caméra ainsi que le tube sont positionnés fermement à l'aide de diverses pièces mécaniques *Thorlabs* (EUA) afin que la prise d'image s'effectue en tout point du tube

dans le même plan.

Le liquide utilisé est de l'eau déminéralisée à laquelle nous ajoutons toujours 1 g/L de NaCl (Sigma Aldrich) ainsi que 10 g/L (1% en masse) de divers tensioactifs, et des additifs (voir figure 4.2). Les expériences sont menées à température ambiante.

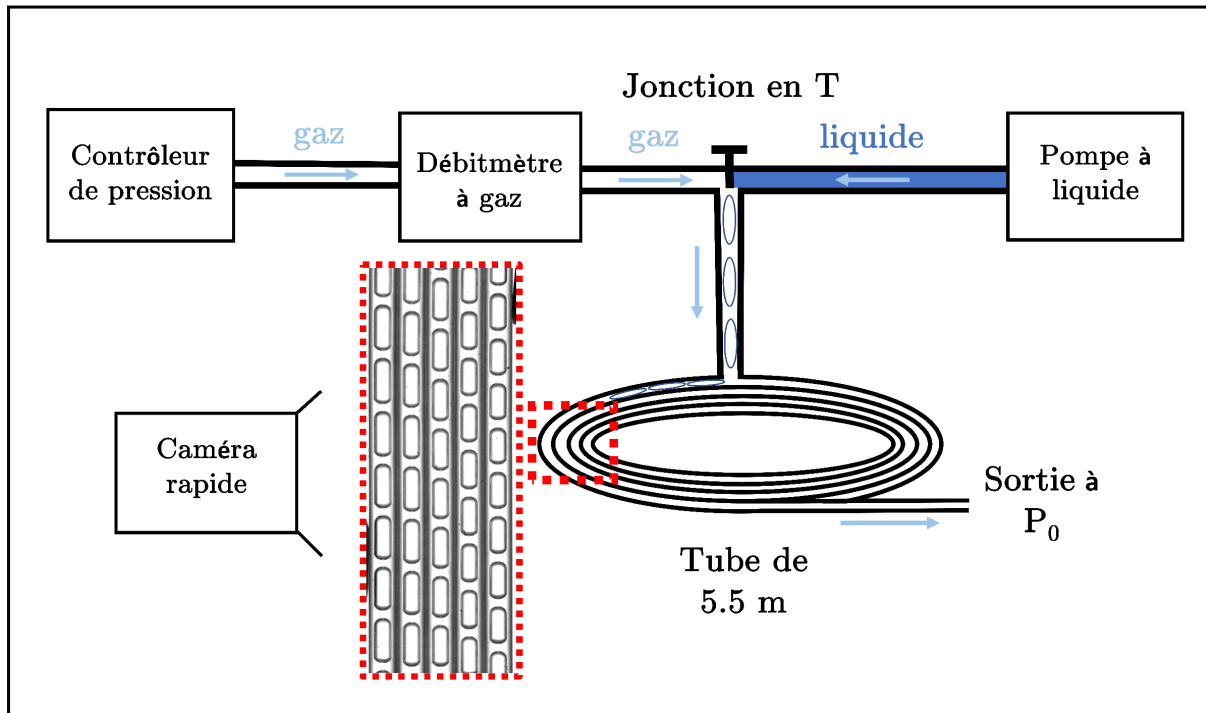


FIGURE 4.1 – Schéma 2D du montage de millifluidique. La position le long du tube est notée x . Cet axe a son origine au niveau de la jonction en T.

Nom	Tensioactif	Concentration	Additif	Concentration
T0	Tween 20	1%	NON	
T1	Tween 20	1%	butan-1-ol	1%
T3	Tween 20	1%	butan-1-ol	3%
I1	IOS S2	1%	NON	

FIGURE 4.2 – Descriptions des différentes solutions utilisées.

L'expérience consiste à injecter du gaz à une pression $P_g = 1.35$ bar fixée et à faire varier le débit d'injection de liquide Q_w . Nous avons fait le choix de commencer par injecter le liquide à un débit très élevé (> 10 mL/min) et de faire ensuite décroître la valeur de ce débit progressivement, en attendant quelques minutes à chaque fois afin de s'assurer qu'un état stationnaire soit bien atteint. En procédant ainsi, il est possible d'obtenir sans difficulté et rapidement un

état stationnaire initial reproductible où des bulles monodisperses sont générées. Une fois un état stationnaire atteint, nous enregistrons deux vidéos, l'une d'une durée de 5 s en plein champ (10 cm^2), et l'autre d'une durée de 50 s sur un champ très réduit en longueur (1 cm^2), afin de réduire la taille des vidéos tout en filmant un nombre suffisant de bulles pour nos analyses statistiques ultérieures. Cette durée est toujours supérieure ou égale au temps nécessaire à une bulle pour parcourir toute la longueur du tube, et permet de plus de filmer entre plusieurs centaines et un millier de bulles, ce qui permet après analyse d'obtenir des valeurs moyennes robustes de nos différentes mesures avec de faibles écarts quadratiques moyens.

Notons que le choix de la pression $\delta P = 350 \text{ mbar}$ a été dicté par deux impératifs :

- la gamme de fonctionnement des débitmètres utilisés ne permet pas de dépasser 10 mL/min au cours de l'expérience, P_g ne doit donc pas être trop élevée.
- si la pression P_g est trop faible, le système peut se "bloquer" au cours de l'expérience ; lors de l'assèchement de la mousse et donc l'augmentation de sa viscosité effective, cette dernière peut devenir telle que la pression d'entrée ne permet plus de mettre la mousse en mouvement. Les bulles cessent alors d'avancer et le débit de gaz Q_g tombe à zéro.

2.2 Échec du premier montage

Il est intéressant de mentionner notre première tentative de montage millifluidique. Dans celui-ci, sur les conseils du fabricant des débitmètres Bronkhorst, nous avons rajouté deux flacons d'une contenance de 500 mL avant et après ces derniers, le reste du montage restant identique. Il s'est rapidement révélé que la présence de ces deux flacons jouant le rôle de tampons perturbaient fortement les résultats de nos expériences ; en effet, comme nous le voyons sur la figure 4.3, le débit de gaz mesuré présentait des oscillations parasites. Celles-ci étaient vraisemblablement dues à des effets de compressibilité du gaz et de remplissage-dé-remplissage des flacons lors des brusques changements de débits. Nous avons donc fait le choix de retirer ces bouteilles, et cet effet parasite a disparu.

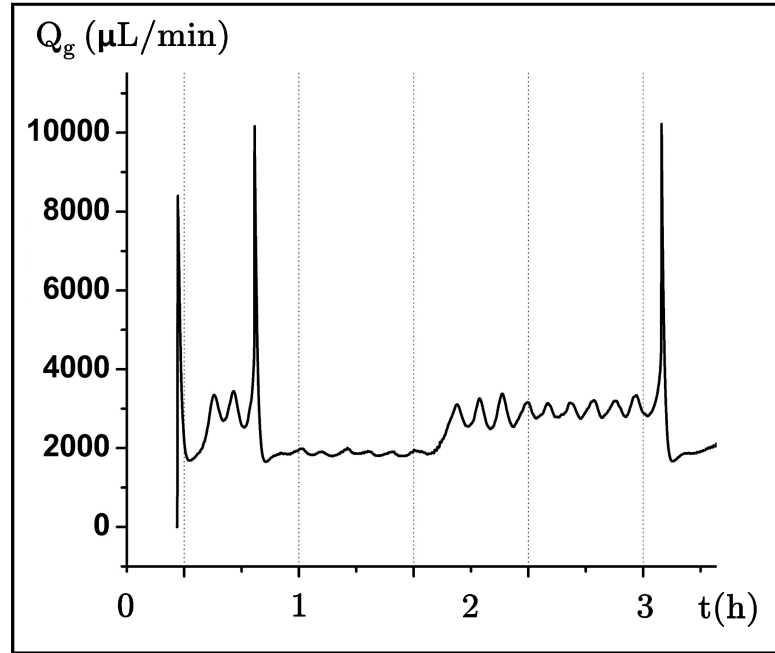


FIGURE 4.3 – Évolution temporelle du débit de gaz Q_g lors d'une expérience test. t représente le temps. Les oscillations observées entre 2 et 3 h sont observées uniquement en présence des flacons tampons dans le montage, alors que les valeurs du débit de liquide et de la surpression de gaz imposés sont maintenus à des valeurs fixes.

2.3 Résultats et analyses

2.3.1 Expériences avec la solution T0

Commençons par observer l'allure de la mousse en écoulement à divers Q_w , pour l'expérience utilisant la solution de *Tween* 20 à 1% et sans additif (solution T0) :

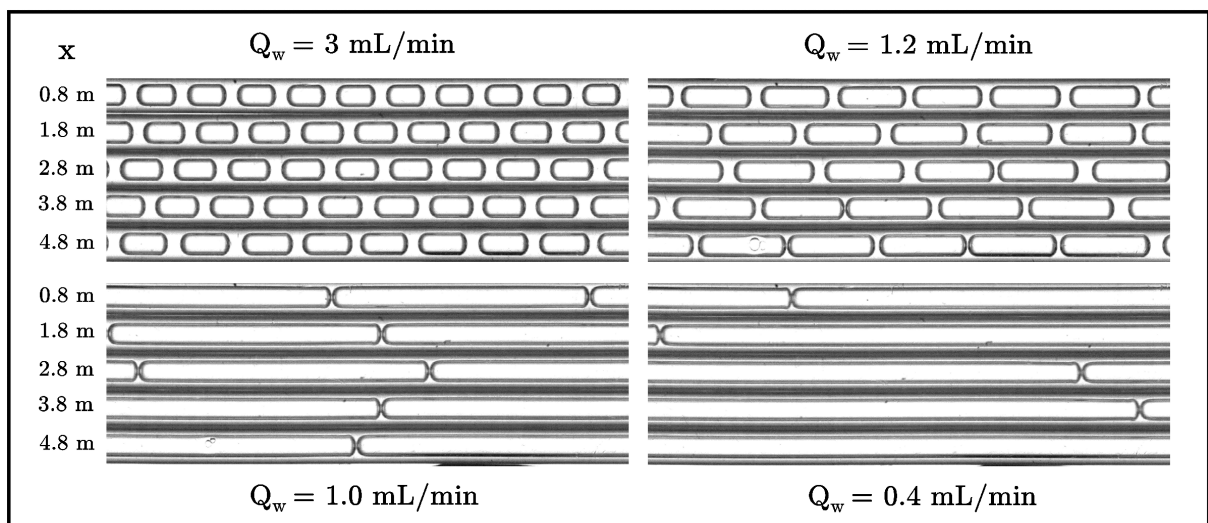


FIGURE 4.4 – Images de la mousse stationnaire observée à différentes positions x le long de l'écoulement, pour différents débits de liquide Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0.

Deux observations viennent immédiatement à la vue de la figure 4.4 :

- la taille de bulles augmente logiquement lorsque la quantité de liquide injecté est réduite. Cependant, cette augmentation de taille ne semble pas linéaire, avec une augmentation très brusque à partir de $Q_w = 1.1 \text{ mL/min}$ environ.
- la taille de bulles augmente légèrement le long du tube, plus précisément leur surface vue du dessus augmente de 15 à 20% après 4.8 m de parcours. Cet effet est directement relié à la compressibilité du gaz, en effet la pression du gaz vaut $P_g = 1.35 \text{ bar}$ à l'entrée et seulement $P_g = 1.0 \text{ bar}$ à la sortie, et a comme conséquence de faire augmenter le débit fractionnaire de gaz au cours du transit des bulles.

Voyons plus en détail comment les différentes caractéristiques de l'écoulement évoluent le long du tube :

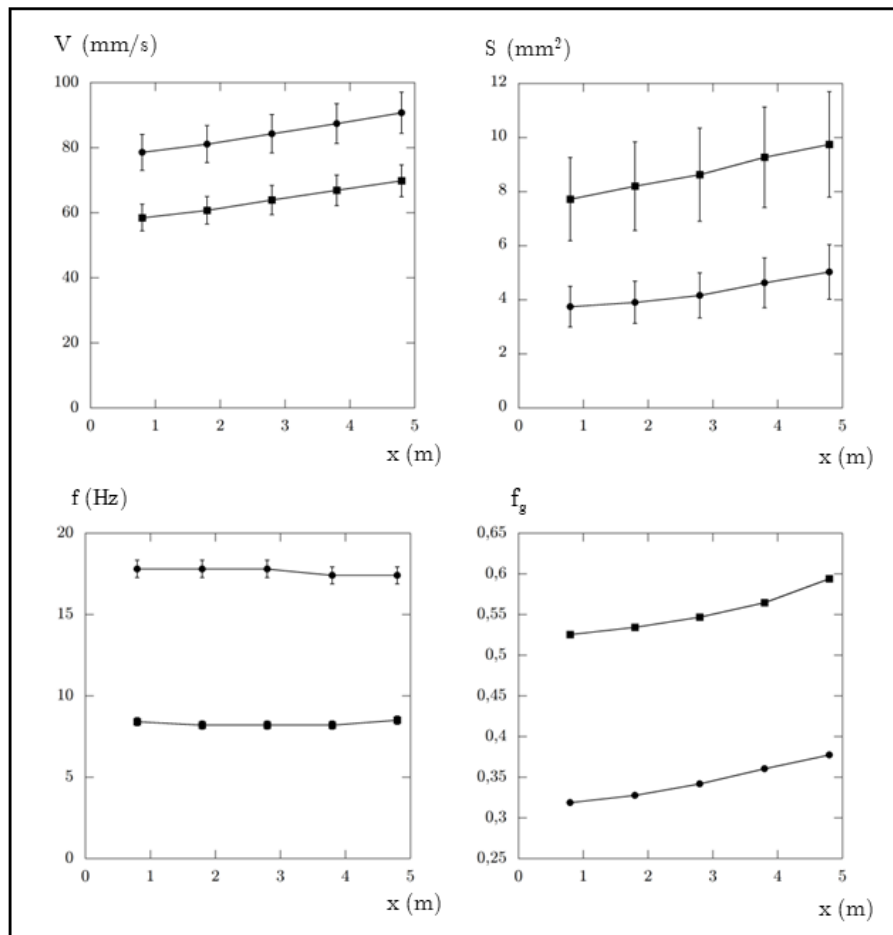


FIGURE 4.5 – Évolution avec la position le long du tube, x , de la vitesse moyenne V des bulles, de la surface moyenne S des bulles, de la fréquence moyenne de passage f des bulles et du débit fractionnaire local de gaz f_g de la mousse, pour l'expérience utilisant la solution T0 et pour l'état stationnaire à $Q_w = 3 \text{ mL/min}$ (●) et $Q_w = 1.2 \text{ mL/min}$ (■).

Puisque nous travaillons à pression de gaz fixée et non à débit de gaz imposé, une variable pertinente pour étudier notre mousse est le débit fractionnaire de gaz $f_g = \frac{Q_g}{Q_g + Q_w}$, car elle tient compte de Q_w et de Q_g . Nous constatons sur la figure 4.5 qu'avant la transition, la vitesse et la taille de bulles augmente le long du tube, de 10 à 20% entre le début et la fin de celui-ci. La fréquence de passage des bulles à un endroit donné reste cependant constante. Ceci est normal car s'il n'y a pas de coalescence entre bulles, la fréquence de passage des bulles pour chaque position x doit être égale à la fréquence de production de celles-ci. Nous déduisons des deux observations précédentes que le débit fractionnaire de gaz local devrait augmenter également lors de l'écoulement le long du tube, ce qui est bien le cas figure 4.5. En régime stationnaire, le débit de liquide (qui est incompressible) ne dépend pas de la position x , tandis que le débit de gaz lui en dépend puisque le volume et la vitesse des bulles augmentent avec x . Dans la suite du chapitre, sauf indication contraire, la mention de f_g se rapportera à sa valeur à l'entrée du tube (à $x = 0$).

Notons que l'augmentation de la vitesse d'écoulement des bulles va qualitativement entraîner une augmentation de l'épaisseur du film de Bretherton, puisque celle-ci est comme on l'a vu proportionnelle au nombre capillaire $C_a^{2/3}$ et donc à la vitesse $V^{2/3}$ [36]. Cette augmentation de l'épaisseur du film devrait entraîner une diminution de la quantité d'eau séparant les bulles, et donc un rapprochement progressif de celles-ci lors de l'écoulement (ceci est discuté plus bas, figure 4.12).

Voyons maintenant comment f_g et Q_g évoluent au cours de nos expériences qui, nous le rappelons, sont menées en diminuant progressivement la valeur de Q_w :

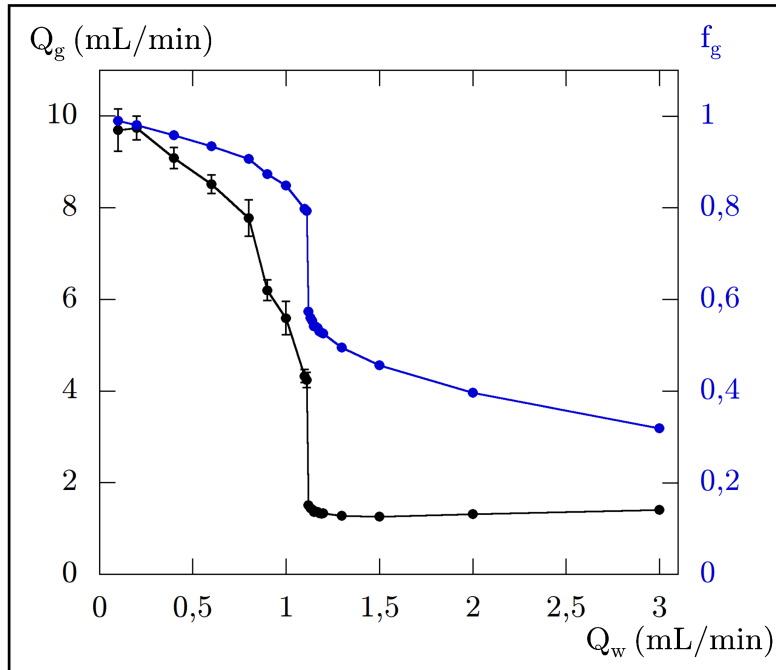


FIGURE 4.6 – Évolution du débit de gaz injecté Q_g et du débit fractionnaire de gaz injecté f_g avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0.

Si le débit de gaz Q_g semble au départ décroître très légèrement lorsque Q_w diminue, ce qui se traduit par une augmentation lente et linéaire de f_g , nous observons une transition très abrupte à $Q_w = 1.11 \text{ mL/min}$ (voir figure 4.6). La valeur du débit de gaz double soudainement, et f_g passe d'une valeur de 60 % à 80 %. Une fois cette transition passée, f_g reprend son augmentation plus lente et assez linéaire. Notons cependant que les barres d'erreur après cette transition augmentent très fortement également, car le débit de gaz mesuré présente des variations fortes (de plusieurs centaines de $\mu\text{L/min}$) et rapides (sur une échelle de temps de l'ordre de la seconde).

Cette augmentation rapide de f_g quand $Q_w = 1.11 \text{ mL/min}$ s'accompagne d'une augmentation à la fois de la taille des bulles et de leur vitesse :

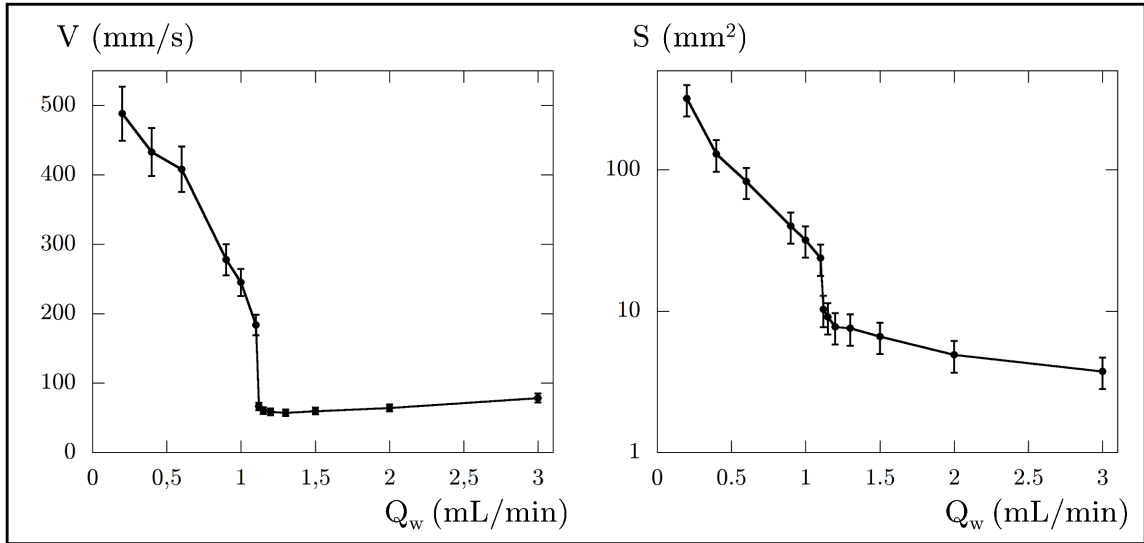


FIGURE 4.7 – Gauche : évolution de la vitesse moyenne des bulles à $x = 0.8$ m avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0. Droite : évolution de la surface moyenne des bulles (axe en échelle logarithmique) à $x = 0.8$ m avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0.

La transition entre $Q_w = 1.12$ et 1.10 mL/min se traduit par une augmentation soudaine de la surface moyenne des bulles de 10 à 23 mm² et de leur vitesse de 66 à 184 mm/s (cf. figure 4.7). Leur surface et leur vitesse augmentent ensuite très rapidement quand Q_w diminue.

Nous mesurons également leur fréquence de génération :

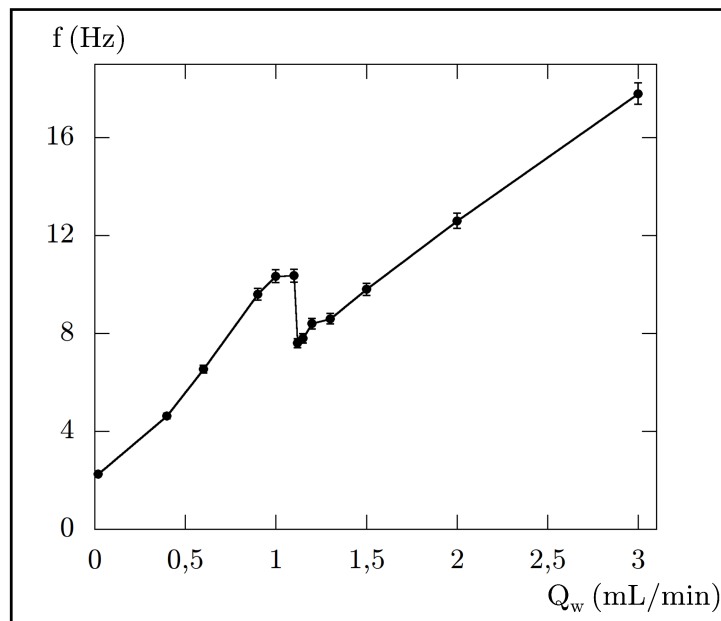


FIGURE 4.8 – Évolution de la fréquence moyenne de génération (mesurée à $x = 0.8$ m) des bulles avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0.

La fréquence de génération des bulles décroît dans un premier temps linéairement quand Q_w décroît (voir figure 4.8). Cependant, la transition très abrupte à $Q_w = 1.11 \text{ mL/min}$ se traduit par une augmentation de cette fréquence de génération, avant une décroissance à nouveau linéaire avec Q_w mais un peu plus rapide qu'avant la transition.

Nous nous sommes intéressés jusqu'ici aux valeurs moyennes des caractéristiques des bulles, moyennées sur des effectifs de plusieurs centaines de bulles. Voyons maintenant le détail de celles-ci :

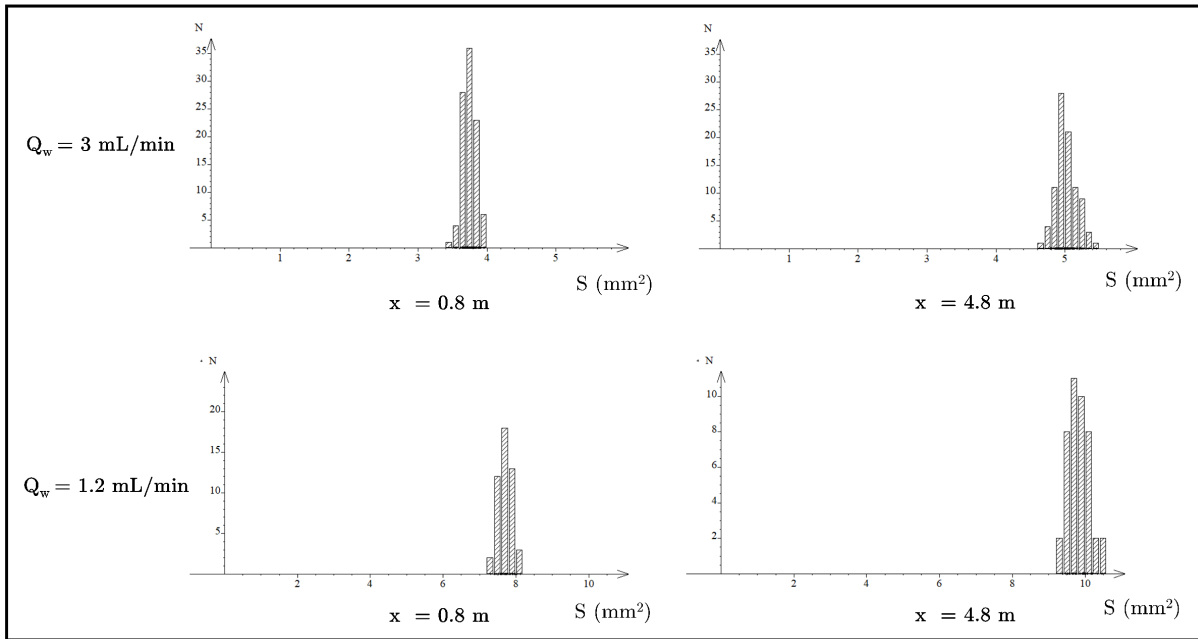


FIGURE 4.9 – Distributions des surfaces de bulles pour les états stationnaires à $Q_w = 3 \text{ mL/min}$ et à $Q_w = 1.2 \text{ mL/min}$, au début ($x = 0.8 \text{ m}$) et à la fin ($x = 4.8 \text{ m}$) du tube, pour l'expérience utilisant la solution T0.

La figure 4.9 montre les distributions de surfaces des bulles pour 2 états stationnaires avant la transition, déterminées à deux positions distinctes le long de l'écoulement : au début ($x = 0.8 \text{ m}$) et à la fin ($x = 4.8 \text{ m}$) du tube. Nous observons que l'écart-type de cette distribution est faible, et que la surface des bulles augmente bien en moyenne d'une vingtaine de pourcent après 4 m parcourus, cette augmentation étant due à la compressibilité du gaz.

Les résultats sont cependant bien différents après la transition :

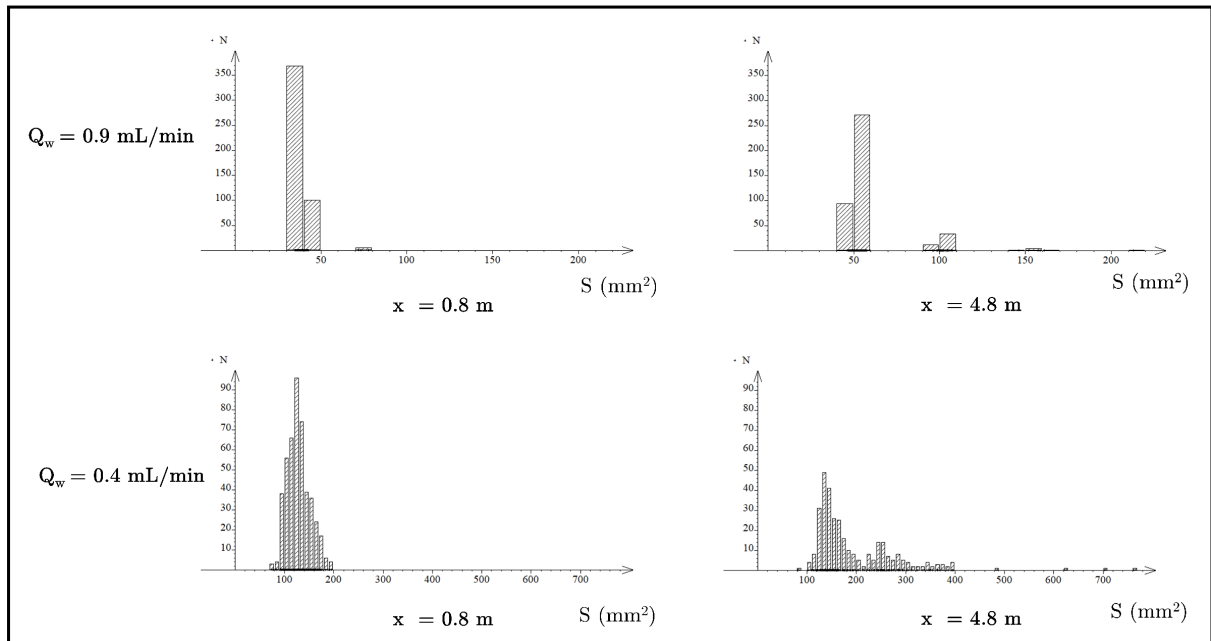


FIGURE 4.10 – Distribution des surfaces des bulles pour les états stationnaires à $Q_w = 0.9 \text{ mL/min}$ et à $Q_w = 0.4 \text{ mL/min}$, au début ($x = 0.8 \text{ m}$) et à la fin ($x = 4.8 \text{ m}$) du tube, pour l'expérience utilisant la solution T0.

Nous observons sur la figure 4.10 que si, au début de l'écoulement ($x = 0.8 \text{ m}$), presque toutes les bulles ont la même taille aux fluctuations près -soit $S_0 = 40 \pm 10 \text{ mm}^2$ à $Q_w = 0.9 \text{ mL/min}$ et $S_0 = 140 \pm 40 \text{ mm}^2$ à $Q_w = 0.4 \text{ mL/min}$ -, plus loin dans le tube à $x = 4.8 \text{ m}$, certaines bulles ont des surfaces qui sont le double, le triple, etc. de S_0 . Ces doubles, triples, etc. bulles sont clairement issues d'un, deux, etc. évènements de coalescence, s'étant produits lors de l'écoulement.

Pour vérifier cela, nous dénombrons les bulles qui passent à différentes positions le long du tube pendant une même durée donnée de 50 secondes :

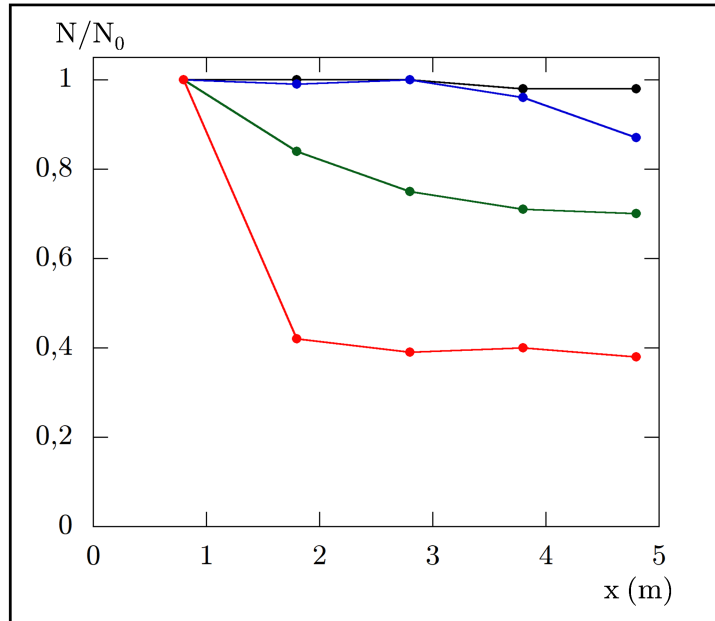


FIGURE 4.11 – Évolution du rapport entre le nombre de bulles N détectées à différentes positions le long du tube et le nombre N_0 de bulles détectées au début ($x = 0.8$ m) du tube, pour $Q_w = 3$ (noir), 0.9 (bleu), 0.4 (vert) et 0.2 (rouge) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T0.

Il est clair sur la figure 4.11 qu'après la transition, les bulles coalescent lors de leur écoulement dans le tube, et ce d'autant plus et d'autant plus tôt que la mousse est initialement sèche.

L'absence de coalescence avant la transition peut s'expliquer par la distance qui sépare les bulles ; en effet, nous voyons bien sur la figure 4.4 qu'à $Q_w = 3$ mL/min , les bulles sont séparées par une épaisse lamelle de liquide. Puisqu'elles ne sont pas en contact, elles ne peuvent donc pas coalescer. Cependant, à l'approche de la transition à $Q_w = 1.11$ mL/min , les bulles se rapprochent, notamment à $x = 4.8$ m (car elles sont alors plus grandes). Plus encore, après la transition, les bulles sont extrêmement proches et l'épaisseur de liquide qui les sépare est alors infime :

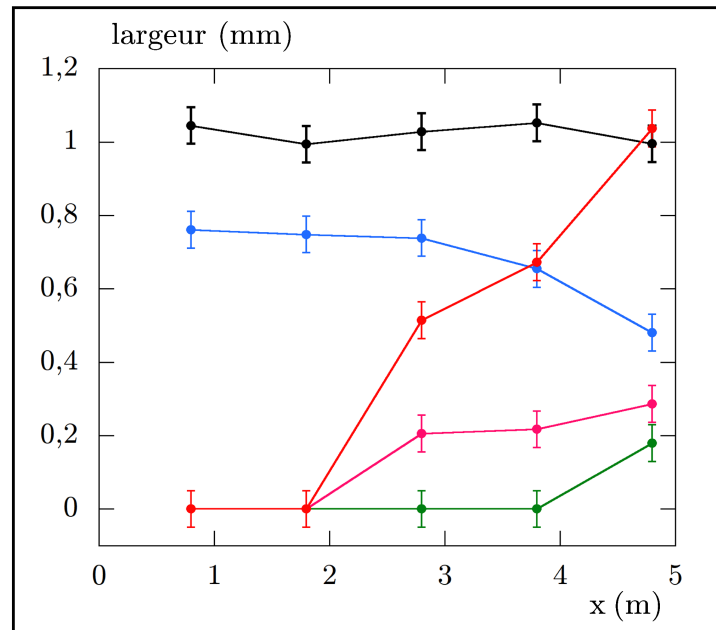


FIGURE 4.12 – Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles à différentes positions x le long du tube, pour $Q_w = 3$ (noir), 1.2 (bleu), 1 (vert), 0.6 (rose) et 0.2 (rouge) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T0.

Nous observons bien sur la figure 4.12 deux types d'évolution de la largeur des lamelles séparant les bulles :

- avant la transition, pour $Q_w = 3$ (noir) ou 1.2 (bleu) mL/min , les lamelles sont très larges, avec une épaisseur de l'ordre du millimètre, et celle-ci est plus ou moins constante le long du tube pour $Q_w = 3 mL/min$ et décroissante le long du tube pour $Q_w = 1.2 mL/min$. Ceci peut probablement être expliqué par l'augmentation de la quantité d'eau dans les films de Bretherton décrite plus haut.

- après la transition, pour $Q_w = 1$ (vert), 0.6 (rose) ou 0.2 (rouge) mL/min , les bulles sont au contact au début du tube, ce qui permet leur coalescence. Cependant, la distance moyenne entre les bulles augmente le long du tube. La comparaison avec la figure 4.11 permet de comprendre cette augmentation : celle-ci est due à la coalescence des bulles. En effet, un événement de coalescence entre deux bulles supprimant une lamelle, ceci libère logiquement une quantité d'eau qui va accroître la largeur des lamelles restantes. Remarquons que pour $Q_w = 0.2 mL/min$ (rouge), le nombre de bulles qui coalescent est tellement élevé que les lamelles s'épaississent très rapidement, jusqu'à atteindre une taille qui rend la coalescence impossible, ce qui explique la saturation observée figure 4.11.

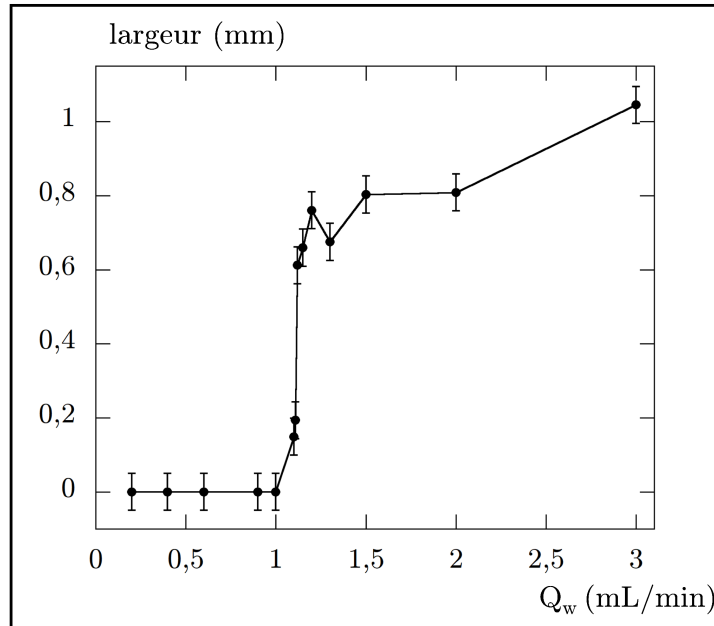


FIGURE 4.13 – Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles au début ($x = 0.8 m$) du tube avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0.

L'observation, figure 4.13, de l'évolution de la largeur moyenne des lamelles au début du tube ($x = 0.8 m$) -là où les événements de coalescence sont encore très rares- avec Q_w montre que lors de la transition, celle-ci passe d'environ $0.6 mm$ à $0.2 mm$. Il semble que c'est bien ce qui permet la coalescence entre les bulles.

Notre montage semble donc très intéressant pour étudier l'écoulement d'une mousse et sa coalescence lors de celui-ci. Voyons maintenant s'il est pertinent pour discriminer les différents tensioactifs et leurs capacités à former une mousse stable sous un écoulement confiné.

2.3.2 Influence de l'ajout de butanol à la phase liquide

Nous commençons par rajouter à notre solution de *Tween* 20 du butanol en diverses proportions (voir figure 4.2).

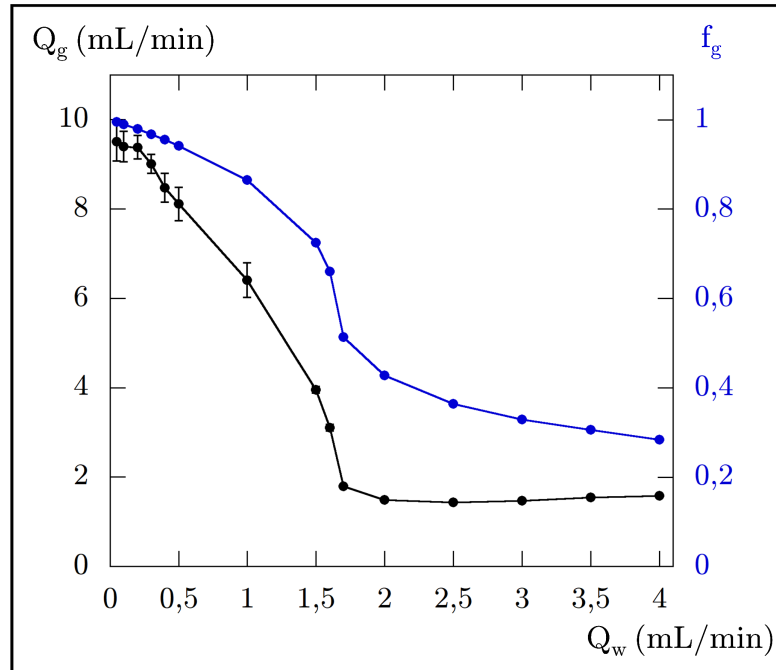


FIGURE 4.14 – Évolution du débit de gaz injecté Q_g et du débit fractionnaire de gaz injecté f_g avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T1.

L'ajout de 1% de butanol dans la solution de *Tween* 20 influence déjà notablement les résultats : si une transition, où l'on observe un début de croissance du débit de gaz Q_g , est toujours observée, celle-ci n'est plus aussi brusque que celle reportée sur la figure 4.6. De plus, si avec la solution T0 celle-ci avait lieu à $Q_w = 1.1 \text{ mL/min}$, avec la solution T1 elle se produit désormais à $Q_w = 1.7 \text{ mL/min}$.

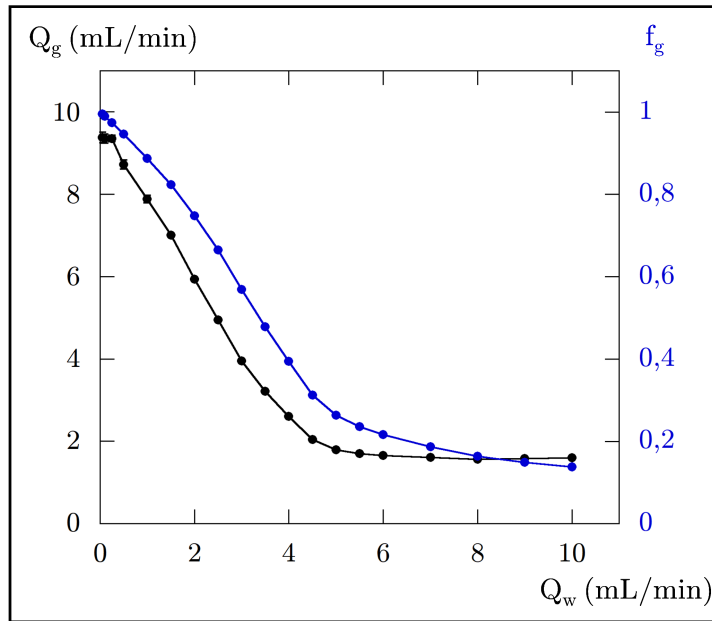


FIGURE 4.15 – Évolution du débit de gaz injecté Q_g et du débit fractionnaire de gaz injecté f_g avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T3.

L'ajout de 3% de butanol se traduit par : (i) un déplacement important de la transition entre le régime à Q_g constant et celui où Q_g augmente quand Q_w diminue, puisque cette transition se produit désormais pour $Q_w = 5 \text{ mL/min}$, et (ii) l'absence de saut pour Q_g lors de cette transition.

Voyons plus en détail comment cela se traduit en terme de taille et de vitesse des bulles :

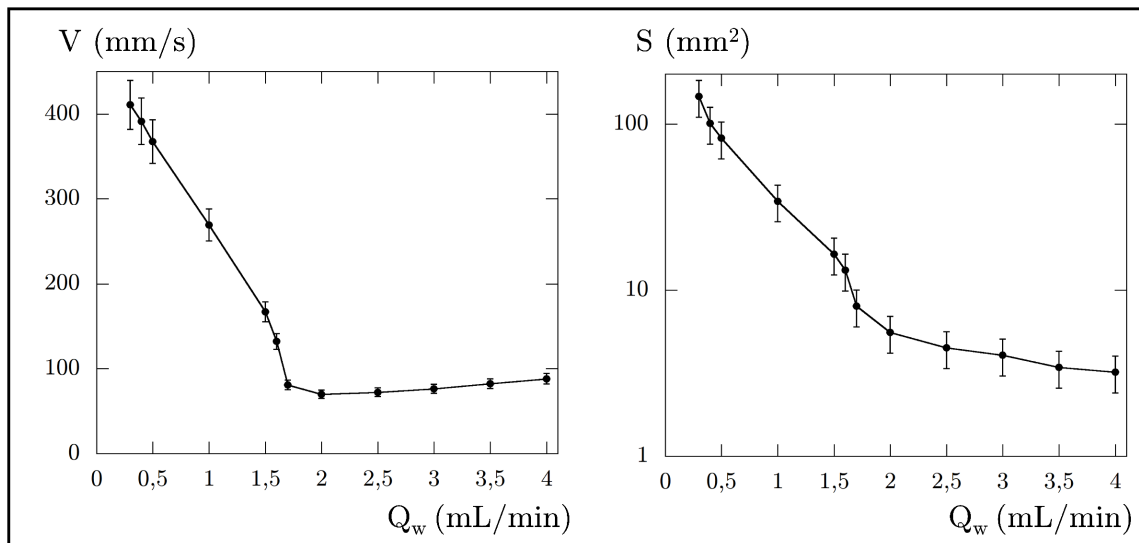


FIGURE 4.16 – Gauche : Évolution de la vitesse moyenne des bulles à $x = 0.8 \text{ m}$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T1. Droite : évolution de la surface moyenne des bulles (axe en échelle logarithmique) à $x = 0.8 \text{ m}$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T1.

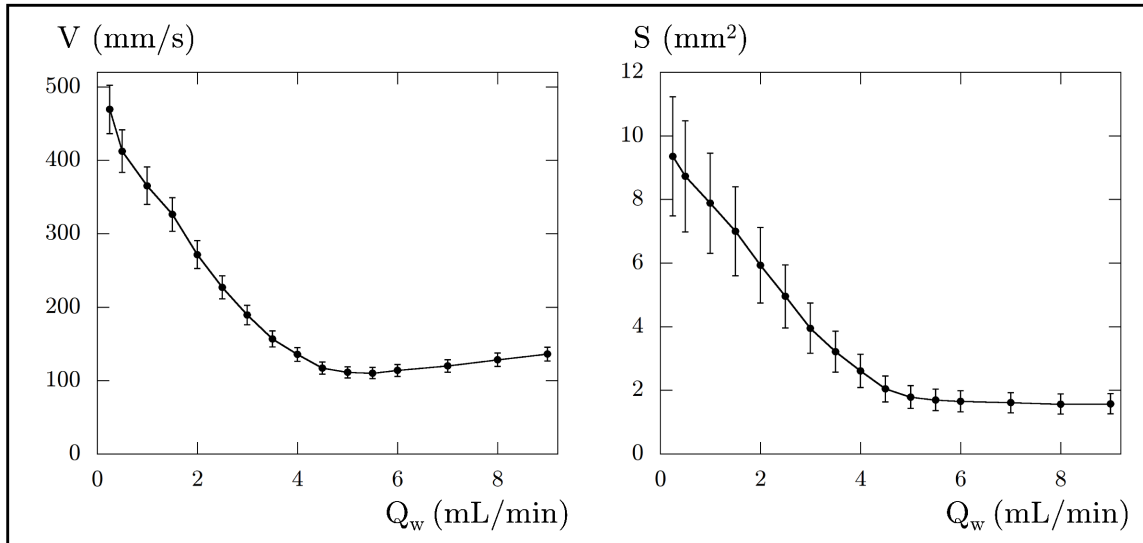


FIGURE 4.17 – Gauche : Évolution de la vitesse moyenne des bulles à $x = 0.8 \text{ m}$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T3. Droite : évolution de la surface moyenne des bulles à $x = 0.8 \text{ m}$ avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T3.

La variation de Q_w avec Q_g devient de moins en moins marquée lorsque la fraction massique de butanol dans la solution augmente, de même que les variations de la surface et de la vitesse des bulles (cf. figures 4.16 et 4.17). De plus, il est intéressant de noter que l'ajout d'une grande quantité de butanol (solution T3) empêche la formation de bulles de très grande taille.

Nous mesurons également leur fréquence de génération :

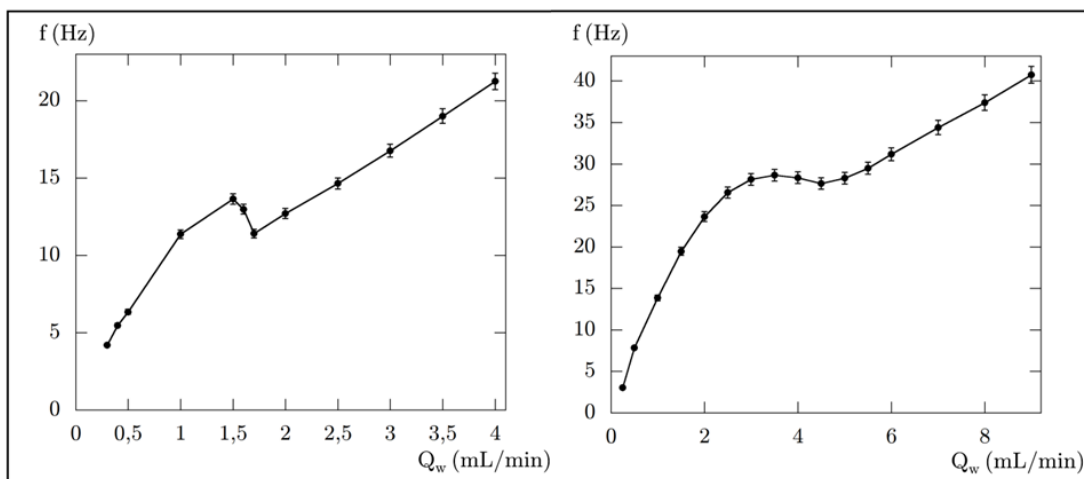


FIGURE 4.18 – Évolution de la fréquence moyenne de génération (mesurée à $x = 0.8 \text{ m}$) des bulles avec Q_w , pour les expériences utilisant la solution T1 (gauche) et T3 (droite).

A nouveau l'allure des courbes d'évolution de la fréquence de génération des bulles (voir figure

4.18) est similaire, avec toujours une évolution bien plus progressive pour les expériences menées avec une grande quantité de butanol (solution T3). De plus, avec cette solution, les bulles sont de taille bien plus faible mais sont également générées plus rapidement.

Intéressons-nous maintenant à la coalescence des bulles :

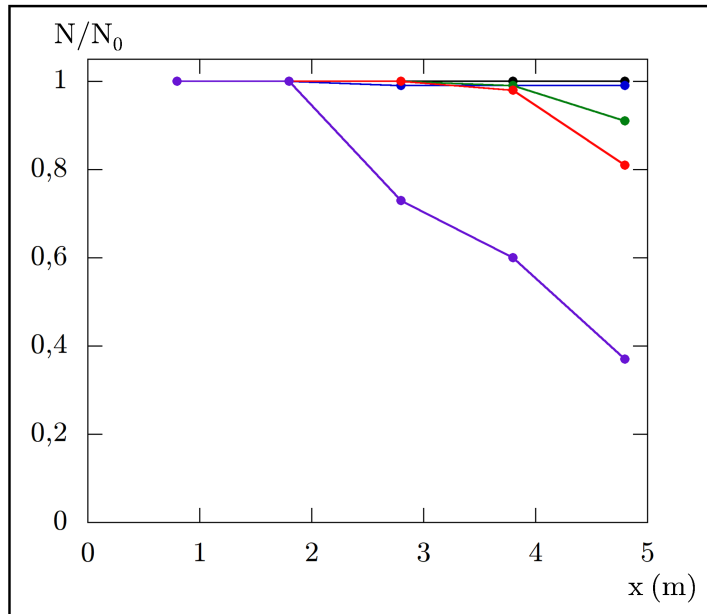


FIGURE 4.19 – Évolution du rapport entre le nombre N de bulles détectées à la position x le long du tube et le nombre N_0 de bulles détectées au début ($x = 0.8 \text{ m}$) de celui-ci, pour $Q_w = 4$ (noir), 1.5 (bleu), 1 (vert), 0.4 (rouge) et 0.3 (violet) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T1.

Rappelons que la transition se produit pour la solution T1 à $Q_w = 1.7 \text{ mL}/\text{min}$. Ainsi nous observons que la coalescence des bulles ne commence pas à apparaître dès celle-ci. Il est en effet nécessaire que le débit de liquide atteigne une valeur de $Q_w = 1 \text{ mL}/\text{min}$, ce qui correspond à un débit fractionnaire de gaz à l'entrée du tube de $f_g = 86.5\%$, pour que quelques événements de coalescence soient observés, à l'extrémité de sortie du tube. L'ajout de butanol semble de manière très inattendue avoir inhibé la coalescence des bulles.

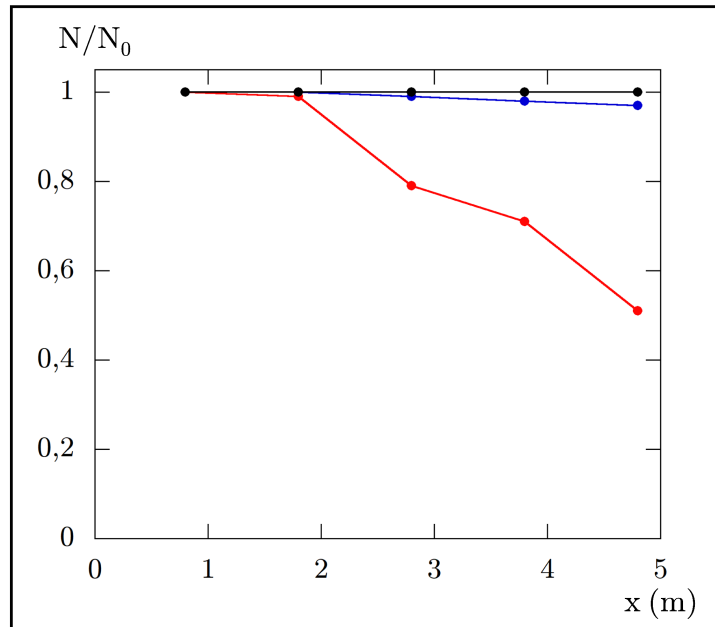


FIGURE 4.20 – Évolution du rapport entre le nombre N de bulles détectées à la position x le long du tube et le nombre N_0 de bulles détectées au début ($x = 0.8 \text{ m}$) du tube, pour $Q_w = 1.5$ (noir), 0.5 (bleu), 0.25 (rouge) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T3.

Rappelons que la transition a lieu, pour la solution T3, à $Q_w = 5 \text{ mL}/\text{min}$. L'effet est encore plus spectaculaire avec cette solution, puisqu'aucune coalescence n'est observée pour des débits de liquide supérieurs à $Q_w = 0.25 \text{ mL}/\text{min}$, ce qui correspond à un débit fractionnaire de gaz à l'entrée du tube de $f_g = 97.3\%$. L'ajout de 3% de butanol a presque totalement éliminé le phénomène de coalescence entre bulles.

Voyons comment évolue la largeur moyenne de l'épaisseur de liquide (lamelle) entre les bulles :

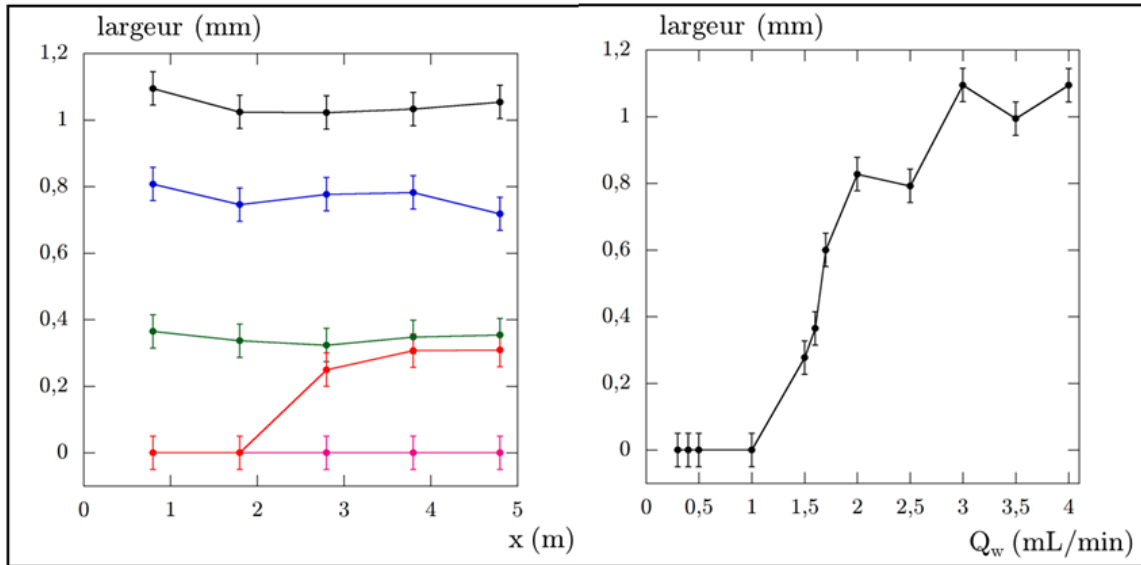


FIGURE 4.21 – Gauche : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles à différentes positions x le long du tube, pour $Q_w = 3$ (noir), 2 (bleu), 1.6 (vert), 0.5 (rose) et 0.3 (rouge) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T1. Droite : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles au début ($x = 0.8 m$) du tube avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T1.

Nous voyons sur la figure 4.21 que pour l'expérience conduite avec la solution T1, la largeur moyenne séparant les bulles diminue avec Q_w , jusqu'à même devenir quasiment nulle (bulles au contact) quand $Q_w = 1 mL/min$. Cependant, celle-ci reste constante le long du tube (indiquant qu'il n'y a pas de coalescence) sauf pour $Q_w = 0.3 mL/min$, quand les bulles commencent à coalescer, ce qui comme on l'a vu libère du liquide et fait augmenter cette largeur moyenne.

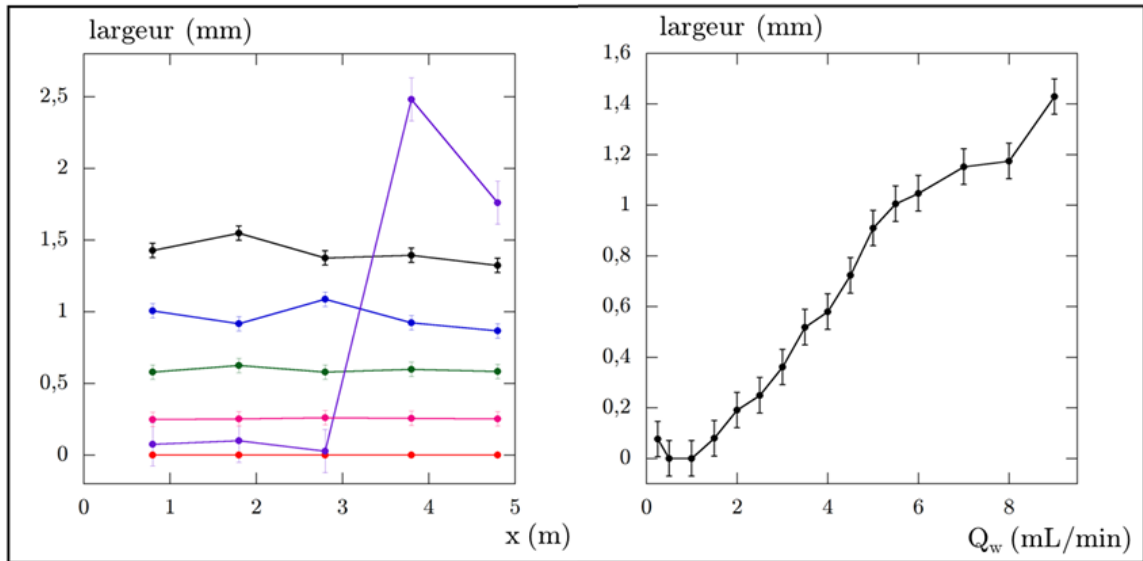


FIGURE 4.22 – Gauche : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles à différentes positions x le long du tube, pour $Q_w = 9$ (noir), 5.5 (bleu), 4 (vert), 2.5 (rose), 0.5 (rouge) et 0.25 (violet) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution T3. Droite : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles au début ($x = 0.8$ m) du tube avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T3.

De la même manière pour l'expérience avec la solution T3, la largeur moyenne séparant les bulles diminue progressivement avec Q_w , jusqu'à devenir nulle (bulles au contact) quand $Q_w = 1$ mL/min (cf. figure 4.22). Pour $Q_w = 0.25$ mL/min , les bulles coalescent rapidement ce qui fait augmenter de même cette largeur moyenne de liquide séparant les bulles.

Nous avons également réalisé la même expérience en utilisant d'autres quantités de butanol, toujours entre 0 et 3 %. Cependant, au moment d'écrire ce manuscrit, ces expériences n'ont pu être analysées complètement. Nous pouvons cependant étudier l'évolution du débit fractionnaire de gaz à l'entrée du tube avec Q_w :

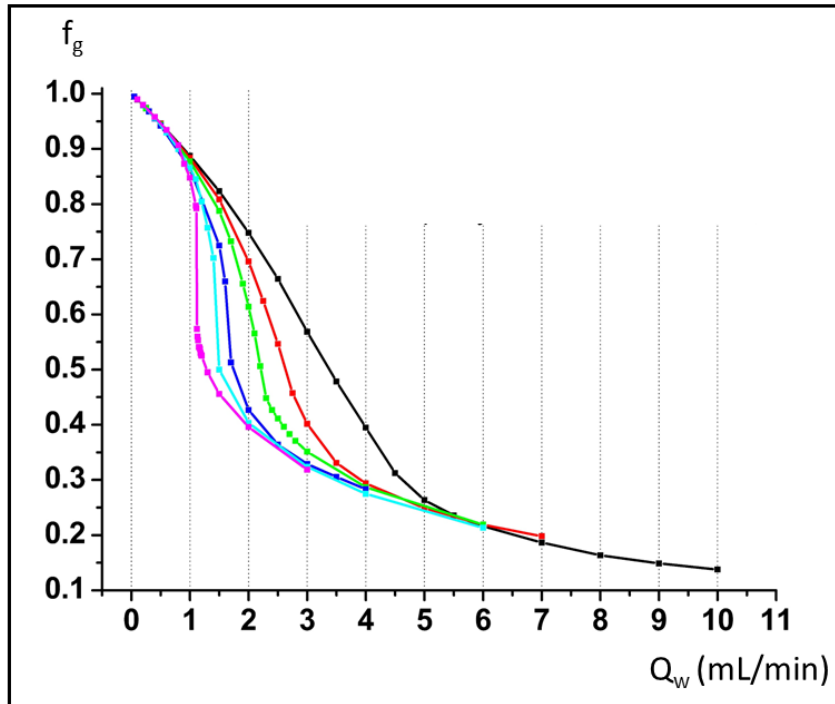


FIGURE 4.23 – Évolution du débit de gaz injecté Q_q et du débit fractionnaire de gaz injecté f_g avec Q_w , pour les expériences utilisant la solution avec 0 (rose), 0.5 (cyan), 1 (bleu), 1.5 (vert), 2 (rouge) et 3 (noir) % de butanol.

L'effet progressif de l'ajout progressif de butanol est clairement visible : il consiste à diminuer la taille des bulles - peut être avec un phénomène en lien avec celui expliqué au chapitre précédent - et à lisser la transition. Nous n'avons pas eu le temps de pousser notre analyse plus loin pour comprendre ces résultats.

2.3.3 Comparaison entre différents tensioactifs

Nous avons ensuite réalisé la même expérience en utilisant cette fois le tensioactif industriel IOS S2, à 1% en masse (solution I1) :

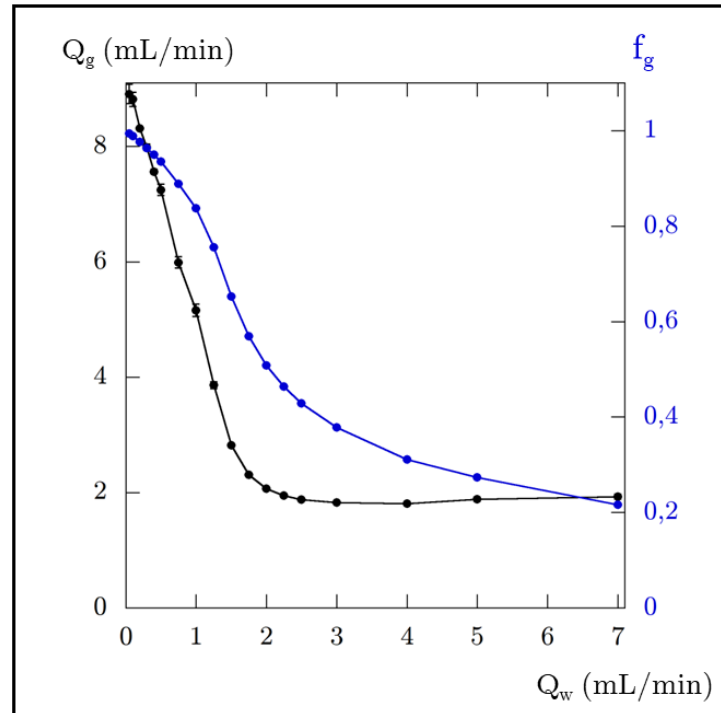


FIGURE 4.24 – Évolution du débit de gaz injecté Q_g et du débit fractionnaire de gaz injecté f_g avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution I1.

De manière étonnante, l'évolution de Q_g et de f_g avec Q_w montre une absence de saut à la transition, qui se produit pour un débit de liquide de $Q_w = 2 \text{ mL/min}$. Ce comportement le rapproche plus de la solution T3 que de la solution T0, avec cependant un Q_w de transition différent :

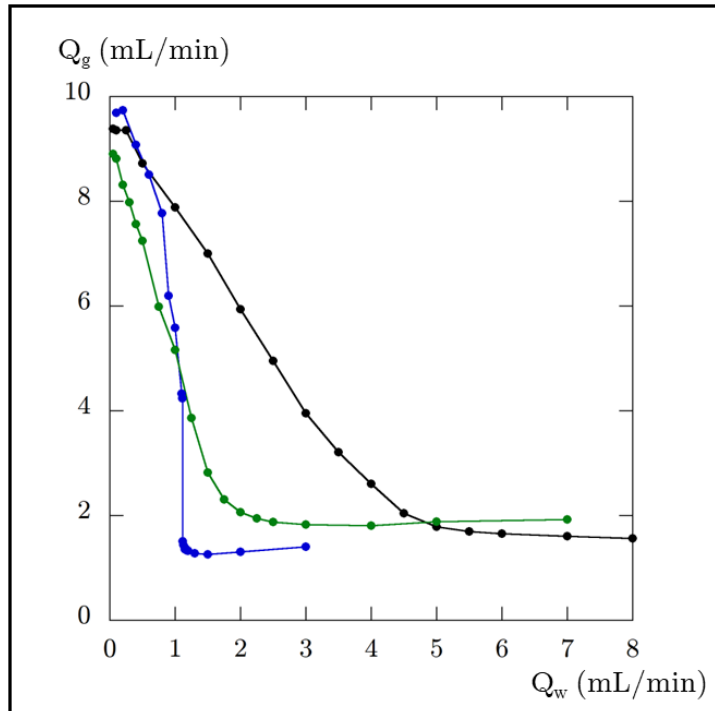


FIGURE 4.25 – Évolution du débit de gaz injecté Q_g et du débit fractionnaire de gaz injecté à l'entrée du tube f_g avec Q_w , pour les expériences menées avec les solutions T0 (bleu), T3 (noir) et I1 (vert).

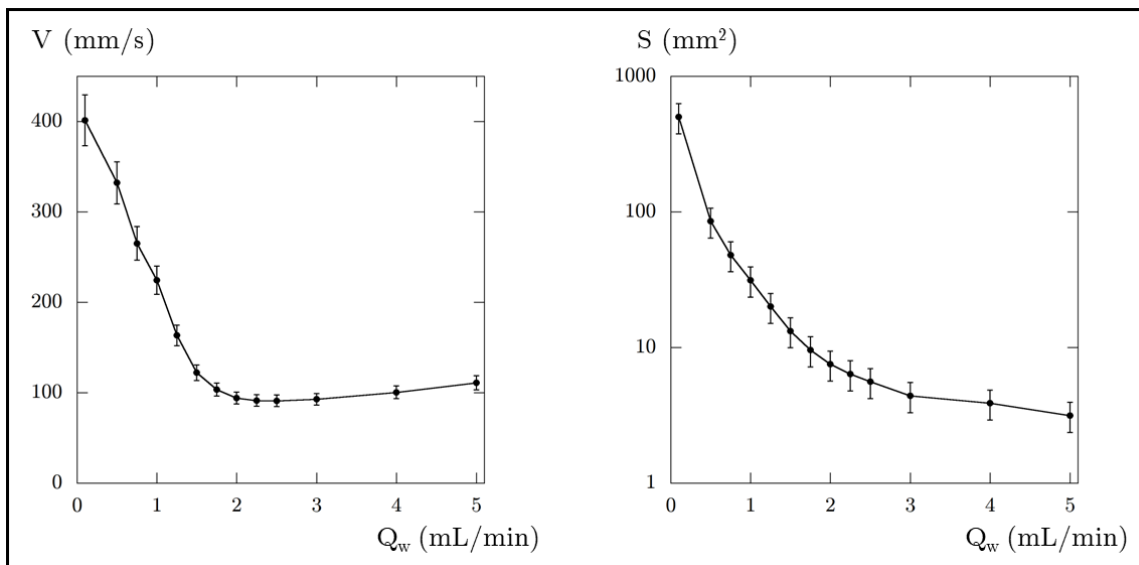


FIGURE 4.26 – Gauche : Évolution de la vitesse moyenne des bulles à $x = 0.8$ m avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution T0. Droite : évolution de la surface moyenne des bulles (axe en échelle logarithmique) à $x = 0.8$ m avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution I1.

Si l'évolution de la vitesse moyenne et de la surface moyenne des bulles avec Q_w est également très progressive, nous remarquons cependant sur la figure 4.26 que des bulles de tailles très

importantes sont formées à haut débit fractionnaire de gaz, de manière similaire à ce qui est obtenu avec la solution T0.

Nous mesurons également la fréquence de génération de ces bulles :

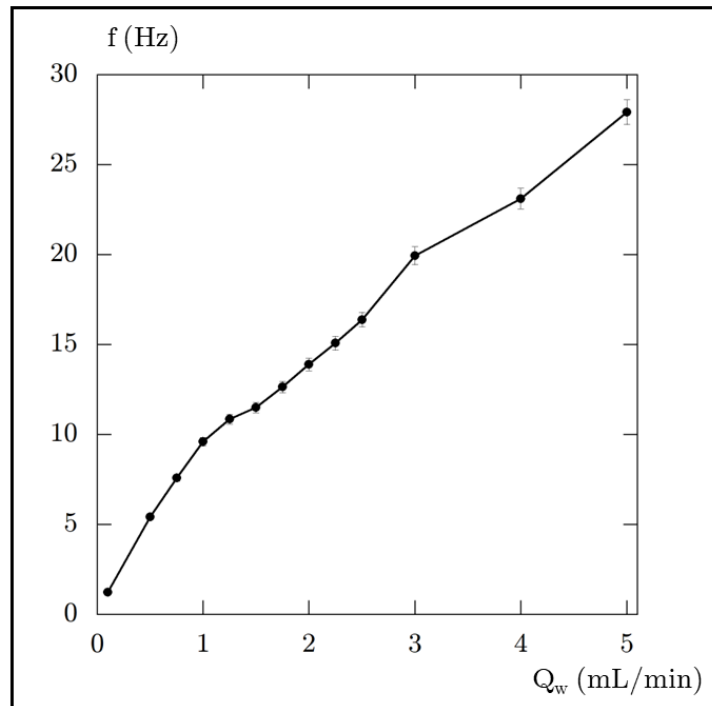


FIGURE 4.27 – Évolution de la fréquence moyenne de génération (mesurée à $x = 0.8$ m) des bulles avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution II.

La fréquence de génération est plutôt élevée comparée aux expériences conduites avec la solution T0 (environ deux fois plus), avec cependant une décroissance globalement linéaire.

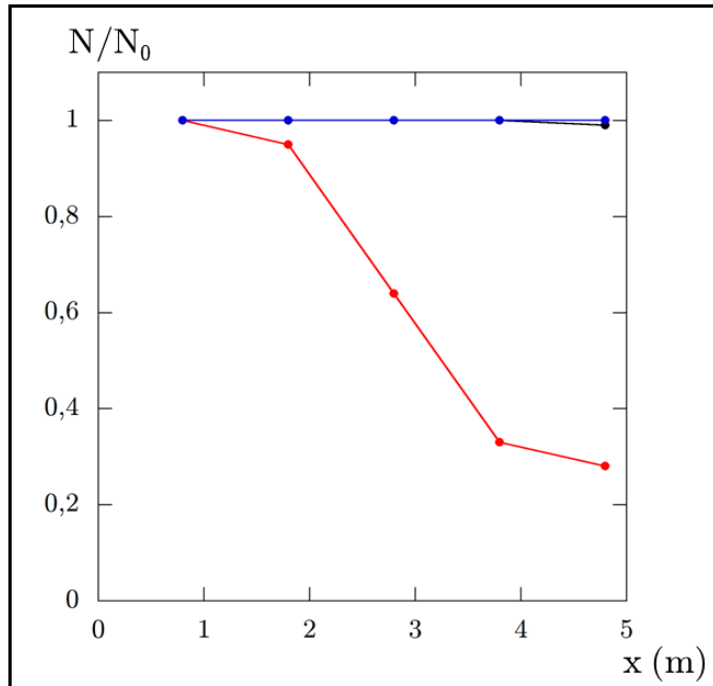


FIGURE 4.28 – Évolution du rapport entre le nombre N de bulles détectées au long du tube et le nombre N_0 de bulles détectées au début ($x = 0.8 \text{ m}$) du tube, pour $Q_w = 5$ (noir), 0.5 (bleu), 0.1 (rouge) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution I1.

Rappelons que la transition se produit pour la solution I1 à $Q_w = 2 \text{ mL}/\text{min}$. Ainsi nous observons qu'il est nécessaire, pour que des bulles coalescent, que le débit de liquide atteigne une valeur extrêmement faible de $Q_w = 0.1 \text{ mL}/\text{min}$, ce qui correspond à un débit fractionnaire de gaz de $f_g = 98.8\%$. Le tensioactif IOS S2 semble donc empêcher fortement la coalescence des bulles lors de l'écoulement.

Voyons si la largeur moyenne de l'épaisseur de liquide (lamelle) entre les bulles permet de mieux comprendre cette absence de coalescence :

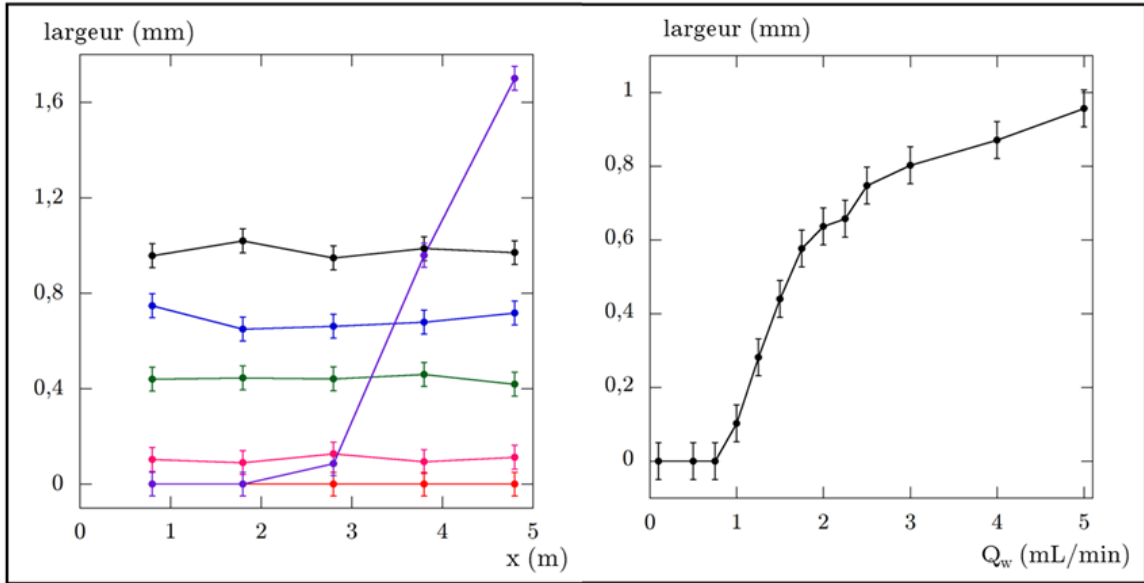


FIGURE 4.29 – Gauche : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles à différentes positions x le long du tube, pour $Q_w = 5$ (noir), 2.5 (bleu), 1.5 (vert), 1 (rose) et 0.5 (rouge) et 0.1 (violet) mL/min , pour l'expérience utilisant la solution I1. Droite : Évolution de la largeur moyenne des lamelles séparant les bulles au début ($x = 0.8$ m) du tube avec Q_w , pour l'expérience utilisant la solution I1.

Lors de l'expérience avec la solution I1, la largeur moyenne séparant les bulles diminue progressivement avec Q_w , jusqu'à devenir nulle (bulles au contact) quand $Q_w = 0.5$ mL/min (cf. figure 4.29). Pour $Q_w = 0.1$ mL/min , les bulles coalescent rapidement lors de leur transport dans le tube ce qui conduit à augmenter la largeur moyenne des lamelles de liquide séparant les bulles. Ce comportement rapproche cette expérience de celle réalisée avec la solution T3.

3 Résumé et conclusion du chapitre

Pour conclure, comparons les différents débits fractionnaires de gaz critiques qui apparaissent dans nos expériences :

- le débit fractionnaire f_{pre} du dernier état stationnaire avant la transition à partir duquel le débit de gaz passe d'un régime où il est constant ou très légèrement décroissant quand Q_w diminue, à un régime où il devient fortement croissant, avec parfois un saut. Cette augmentation de débit de gaz s'accompagne d'une augmentation de la taille de bulles et de leur vitesse, et d'une diminution de leur fréquence de production.
- le débit fractionnaire f_{post} du premier état stationnaire après ce saut.

- le débit fractionnaire de coalescence f_{coal} , à partir de laquelle les premières coalescences sont observées, notamment en premier lieu à la fin du tube ($x = 4.8 m$).

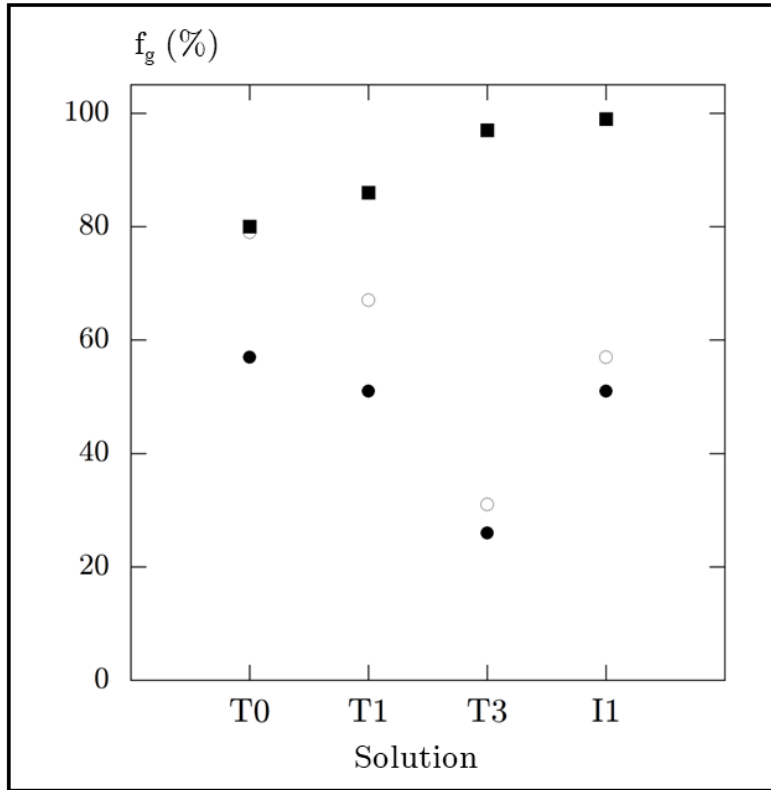


FIGURE 4.30 – Valeurs de f_{pre} (●), f_{post} (○) et f_{coal} (■) pour nos 4 expériences.

Nous assistons à une grande diversité de comportements selon le tensioactif et les additifs utilisés. Avec la solution comportant du *Tween* 20 à environ 100 fois sa Concentration Micellaire Critique (CMC), la transition a lieu à $f_{pre} = 0.57$, et donne lieu à un saut à $f_{post} = 0.79$. Presque immédiatement, les bulles commencent à coalescer ($f_{post} \simeq f_{coal}$).

L'ajout de butanol à cette solution conduit à une décroissance de la valeur de f_{pre} , à une réduction de l'amplitude du saut (f_{post} devient plus proche de f_{pre}), et à une augmentation de la valeur de f_{coal} , ce qui veut dire que la mousse doit être plus sèche pour commencer à coalescer.

Finalement, l'utilisation d'un tensioactif industriel que l'on sait très efficace en milieu poreux, l'IOS S2, à une concentration d'environ 15 fois sa CMC, montre un comportement encore différent : la transition a lieu à $f_{pre} = 0.51$, proche de celle de l'expérience avec uniquement du *Tween* 20, cependant elle ne s'accompagne de presque aucun saut ($f_{pre} \simeq f_{post}$), ce qui la rapproche de l'expérience avec 3% de butanol ajoutés. De plus, la coalescence des bulles devient presque impossible, puisque $f_{coal} = 98\%$, ce qui la rapproche encore de l'expérience menée avec la solution contenant 3% de butanol.

Ces expériences préliminaires démontrent qualitativement que notre montage millifluidique permet de discriminer différents tensioactifs. Cependant le rôle joué par les différents paramètres hydrodynamiques et physico-chimiques sur les divers comportements observés et notamment sur les valeurs obtenues pour les débits fractionnaire de gaz caractéristiques reste à élucider.

Annexes

1 Annexe : Modèle de l'instabilité avec champ de vitesse bidirectionnel

Dans cette annexe, nous établissons cette fois le modèle de l'instabilité comme dans le chapitre 3 mais avec un champ de vitesse plus général bidirectionnel $\vec{v} = v(x, y, t) \vec{e}_x + v(x, y, t) \vec{e}_y$. Les autres hypothèses sont identiques.

Nous utilisons aussi une analyse linéaire : les différentes grandeurs varient selon :

- $\Gamma(x, t) = \bar{\Gamma} + \delta\Gamma e^{ikx+st}$
- $\gamma(x, t) = \bar{\gamma} + \delta\gamma e^{ikx+st}$
- $\zeta(x, t) = \bar{\zeta} + \delta\zeta e^{ikx+st}$
- $P(x, y, t) = \bar{P} + \delta P(y) e^{ikx+st}$
- $v_x(x, y, t) = \bar{v} + \delta v_x(y) e^{ikx+st}$
- $v_y(x, y, t) = \delta v_y(y) e^{ikx+st}$

Nous savons que $\Delta\delta\bar{P} = 0$ d'où $-k^2\delta P + \frac{d^2\delta P}{dy^2} = 0$. δP est donc de la forme $\delta P(y) = C_1 e^{ky} + C_2 e^{-ky}$. Nous cherchons δv_x et δv_y de la même forme.

Grâce aux équations $\eta\Delta\vec{v} = \overrightarrow{grad} \delta\bar{P}$ et $div \delta\vec{v}$ nous trouvons que :

$$\delta\bar{v}_x(y) = \frac{iy}{2\eta}[Ae^{ky} - Be^{-ky}] + i\left(\frac{A-B}{4\eta k}\right)[e^{ky} - e^{-ky}] \quad (5.1)$$

et

$$\delta\bar{v}_y(y) = \frac{y}{2\eta}[Ae^{ky} + Be^{-ky}] - \left(\frac{A+B}{4\eta k}\right)[e^{ky} - e^{-ky}] \quad (5.2)$$

Nous avons 4 variables : A, B, $\delta\zeta$ et $\delta\gamma$.

Nous cherchons 4 équations :

En lubrification, l'équation vectorielle (3.3) donne :

$$\frac{\partial \delta \Gamma}{\partial t} + ikV_0 \delta \Gamma + \Gamma_0 ik \delta v_x = -\delta \Gamma / \tau \quad (5.3)$$

En utilisant l'équation d'Eberhart's $\Gamma(\gamma) = \frac{\gamma - \gamma_{but}}{\gamma_{eau} - \gamma_{but}}$ et l'équation (5.3), nous trouvons facilement que l'équation cinétique qui décrit l'évolution de $\gamma(x, t)$ s'écrit au premier ordre :

$$-iE_g k \bar{\gamma} \delta v_x + \delta \gamma (i\bar{V}k + s + \frac{1}{\tau}) = 0 \quad (5.4)$$

avec $E_g = \frac{\gamma - \bar{\gamma}}{\bar{\gamma}}$ le module d'élasticité de Gibbs, sans dimension.

L'équilibre des contraintes tangentielles à l'interface s'écrit $(\bar{\sigma} \cdot \bar{n}) \bar{t} = \bar{\nabla}_s \gamma$ qui devient $\eta \frac{\partial \bar{v}_x}{\partial y} + \eta \frac{\partial \bar{v}_y}{\partial x} = \frac{\partial \gamma}{\partial x} \bar{e}_x$, car la viscosité du gaz $\eta_g = 0.017 \text{ mPa.s}$ est bien plus faible que la viscosité du liquide $\eta = 1.1 \text{ mPa.s}$.

Nous obtenons au premier ordre :

$$\eta \frac{\partial \delta \bar{v}_x}{\partial y} + \eta ik \delta \bar{v}_y = \frac{\partial \gamma}{\partial x} \quad (5.5)$$

P la pression dans le liquide est la somme de la pression du gaz et de la pression de Laplace : $P = P_g - \frac{2\gamma}{H} - \gamma \frac{\partial^2 \zeta}{\partial x^2}$ (équation 3.2).

Au premier ordre :

$$-\frac{2\delta \gamma}{H} + \gamma k^2 \delta \zeta = Ae^{k\bar{\zeta}} + Be^{-k\bar{\zeta}} \quad (5.6)$$

Nous fermons le problème en écrivant l'équation de conservation volumique du liquide $\frac{\partial \zeta}{\partial t} + \frac{\partial Q}{\partial x} = 0$ qui devient au premier ordre :

$$s\delta \zeta - ik\delta Q = s\delta \zeta - ik(\delta \zeta V + \frac{ie^{\zeta_0(-k)} (-e^{2\zeta_0 k} (-2a\zeta_0 k + a + b) + a + 2b\zeta_0 k + b)}{4\eta k^2}) = 0 \quad (5.7)$$

Nous avons avec les équations (5.3-5.7) quatre équations pour les quatre inconnues A , B , $\delta\gamma$ et $\delta\zeta$.

Étant donné la complexité du système, nous utilisons par la suite le logiciel Mathematica®, logiciel de calcul formel très puissant de la société Wolfram Research.

La matrice de ce système linéaire a été calculée mais est trop grande pour rentrer sur cette page.

Nous résolvons cependant le système en calculant $\det(M) = 0$, nous obtenons l'équation :

$$\begin{aligned}
& (e^{-2q} (-4iC_a^2 q (q^2 + 2e^{2q} (q^2 - 1) + e^{4q} (q^2 + 1) + 1) - 2C_a (2C_m (2q^2 S + 2e^{2q} (2q^2 S + q^2 - S - 1) \\
& + e^{4q} (2q^2 S + q^2 + S + 1) + q^2 + S + 1 + 4e^{2q} q^4 (2E_g X + E_g - 1) + 8E_g e^{2q} q^2 X + (E_g + 1) (e^{4q} - 1) q^3 - 2E_g \\
& (e^{2q} - 1)^2 X + iq (4C_m^2 (e^{2q} + 1)^2 S(S + 1) + 2C_m q (4e^{2q} q (S(2E_g X + E_g - 1) - 1) + e^{4q} \\
& (E_g S + S + 1) - ((E_g + 1)S) - 1 - E_g q^2 (e^{2q} (4q^2 + 2) - e^{4q} - 1) (\frac{1}{8C_m^2 q^2})) \\
& = 0 \quad (5.8)
\end{aligned}$$

qui est du second degré en s . Nous cherchons maintenant à connaître le signe de la partie réelle de s , $Re(s)$, car une instabilité n'apparaît que s'il existe un mode propre pour lequel $Re(s) > 0$.

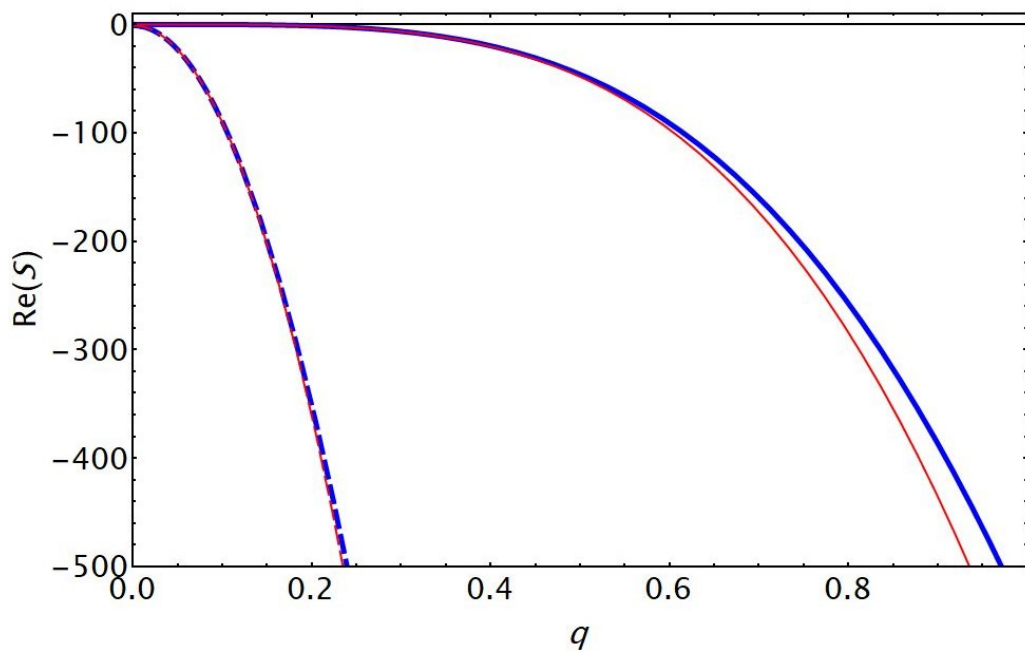


FIGURE 5.31 – Comparaison entre les modèles uni- (bleu) et bi-directionnel (rouge) pour des valeurs arbitraires de $C_a = 7.10^{-3}$, $C_m = 10^{-4}$, $E_g = 0.88$ et $X = 0.01$.

Nous voyons sur la figure 5.31 que la différence entre le modèle uni- (en bleu) et bi-directionnel (en rouge) n'est visible qu'à q très élevé et n'a pas d'influence sur la stabilité du système.

2 Annexe : Article publié dans Physics of Fluids

Marangoni destabilization of bidimensional-confined gas-liquid co-flowing streams in rectangular microfluidic channels

Accepted Manuscript: This article has been accepted for publication and undergone full peer review but has not been through the copyediting, typesetting, pagination, and proofreading process, which may lead to differences between this version and the Version of Record.

Cite as: Physics of Fluids (in press) (2023); <https://doi.org/10.1063/5.0145178>

Submitted: 03 February 2023 • Accepted: 01 April 2023 • Accepted Manuscript Online: 03 April 2023

 Mattéo Clerget,  Alexandra Klimenko,  Maurice Bourrel, et al.




View Online



Export Citation



CrossMark



Physics of Fluids
Special Topic: Shock Waves
Submit Today!

Marangoni destabilization of bidimensional-confined gas-liquid co-flowing streams in rectangular microfluidic channels

M. Clerget,^{1,2} Alexandra Klimenko,² Maurice Bourrel,² François Lequeux,³ and Pascal Panizza^{*3,4}

¹*Laboratoire Physico-Chimie des Interfaces Complexes, Bâtiment CHEMSTARTUP, RD 817, 64170 Lacq, France*

²*TotalEnergies S.E., Pôle d'Etudes et de Recherches de Lacq, BP 47, 64170 Lacq, France*

³*Laboratoire Sciences et Ingénierie de la Matière Molle, ESPCI Paris, PSL University, Sorbonne Université, CNRS UMR 7615, 75005 Paris, France*

⁴*IPR, UMR CNRS 6251, Campus Beaulieu, Université Rennes 1, 35042 Rennes, France*

(*corresponding author : pascal.panizza@univ-rennes1.fr)

(Dated: 17 March 2023)

In microchannels, the stability of a fluid jet injected into another immiscible fluid strongly depends on its degree of geometric confinement. When the width of the jet, w , is larger than the channel height, H , the surface tension driven Rayleigh-Plateau instability is suppressed so that the 2D (bidimensional)-confined jet is absolutely stable and never collapses into bubbles (or drops) in contrast to what occurs when $w \leq H^{1,2}$. We here demonstrate both experimentally and theoretically, that this picture is indeed no longer valid when Marangoni effects are considered. We experimentally show that the addition of small length alcohol molecules into the liquid phase destabilizes a 2D-confined gas-water microfluidic stream ($w > H$) leading to the generation of steady non-linear waves and further to the production of bubbles. Using a simple hydrodynamic model, we show through a linear analysis that the destabilization of the gas stream may result from a Marangoni instability due the fast adsorption of the alcohol molecules which occurs on a time scale comparable to that of the microfluidic flow.

I. INTRODUCTION:

The breakup of a cylindrical unconfined fluid jet injected into another immiscible fluid is a natural phenomenon that each of us witnesses daily when having a shower, drinking at a water fountain or blowing soap bubbles³, for instance. This phenomenon which has to be either controlled or avoided in many industrial and technological applications including polymer extrusion⁴, spray atomization^{5,6}, ink jet printing^{7,8}, emulsification^{9,10} or foam generation¹¹, has been a major topic of research in hydrodynamics and soft matter for more than two centuries¹². Since the seminal works of Plateau and Rayleigh^{13,14}, it is acknowledged that quiescent fluid cylinders are unstable and break-up into drops or bubbles as a result of the surface tension driven Rayleigh-Plateau instability. However, the effect of geometric confinement on the stability of co-flowing systems made of two immiscible fluids may drastically change this picture^{1,2,15}. Confined co-flows have drawn great interest over the last two decades^{16–22} because of their relevance for the microfluidic production of highly monodisperse droplets^{23–26} or bubbles.^{27–31} Two standard microfluidic methods to produce monodisperse droplets or bubbles are the cross-flow geometry which consists of an intersection of a main channel with two symmetrical side ones and the axisymmetric flow focusing geometry where a needle is centred into a capillary tube. By injecting the dispersed liquid (or gas) through either the main channel or the needle and the outer fluid through either the side channels or the outer gap between the needle and the tube, one obtains of central liquid (or gas) stream that is stable or breaks up into monodisperse droplets, depending on the operating conditions (e.g. flow conditions, physico-chemical parameters of the fluid and geometrical parameters of the device). Since the pioneering works of and Cramer *et al.*³² and Anna *et al.*²³, a tremendous

amount of works^{33–38} has been devoted to the study of the influence of these operating parameters on the jet/droplet (or bubble) transition, as well as on the size of the droplets produced or the width of the stable jets that are formed. The existence of two regimes of breakup: dripping in which droplet pinch off near the location where the two immiscible fluids meet (respectively the cross flow junction or the tip of the needle) and jetting in which the droplet pinch off from an extended thread downstream have been identified^{17,18}. Using a lubrication approximation and neglecting inertial terms, Guillot *et al.*¹⁷ have performed a linear stability analysis on the developed flow profile for an axisymmetric jet and shown that the transition from dripping to jetting is related to an absolute convective transition of the Rayleigh plateau instability, a conclusion that was also reached by Utada *et al.*¹⁹. Using this approach and neglecting the angular dependence of the perturbations, they have also numerically investigated the case of a co-flowing jet confined in a rectangular conduct that is the most encountered geometry in microfluidic experiments and shown that the stability of such a jet strongly depends on its degree of geometric confinement. When the width of the inner thread, w , is larger than the channel height, H , the surface tension driven Rayleigh-Plateau instability is suppressed so that the 2D-confined jet is absolutely stable and never collapses into drops or bubbles in contrast to what occurs when $w \leq H^{1,2}$. This theoretical prediction has been experimentally checked by Humphry *et al.*¹⁵ and de Saint Vincent *et al.*³⁹ for liquid/liquid coflows as well as by Dollet *et al.*¹ for non-wetting gas 2D-confined streams. It has also been theoretically confirmed by Cabezas *et al.*²⁰ using a more refined hydrodynamic theoretical model.

In this article, we investigate the effect of surface active molecules on the stability of a 2D-confined gas-liquid jet. We show that the behaviour of the jet changes drastically when

small length alcohol molecules are added into the liquid phase leading to its destabilization and to the formation of steady non-linear waves, although the jet is $2D$ -confined and should therefore be stable. Using a simple hydrodynamic model, we show through a linear stability analysis that this red new reported phenomenon may result from a Marangoni instability due to the fast adsorption of the alcohol molecules onto the gas-water interface as it occurs on a timescale comparable to that of the microfluidic flow.

II. EXPERIMENTAL SECTION:

A. Materials

In our experiments, we work with mixtures of butan-1-ol (Sigma Aldrich) and deionized water containing 1 g/L of NaCl (Sigma Aldrich). In order to ensure the wettability of the microfluidic channels, we have added $1 \text{ wt } \%$ of Tween 20 (Fisher Scientific). In our study, x_{but} , the mass fraction of butanol is either 0 or 7 %. The water/butan-1-ol solution is first prepared and then mixed with Tween 20 and stirred to obtain an homogeneous mixture. All our experiments are performed at $T=23^\circ\text{C}$. The viscosities of the system with and without butanol measured with a Rheometer *Low shear* 400 from Lamy rheology are respectively 1.1 and $0.96 \text{ mPa}\cdot\text{s}$. The values of the equilibrium surface tension of these liquid solution with N_2 are respectively 33.6 and $25.4 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$ for the system without and with butanol. These values are determined with a tensiometer (*TrackerTM* from Teclis Scientific, France) that measures the shape of rising N_2 bubbles formed in the liquid solutions⁴⁰. The time to reach the equilibrium value surface tension value is very short for the butanol system (less than 1 s the resolution of this apparatus) whereas it takes several minutes for the system without butanol. Using a commercial maximum bubble pressure tensiometer, *BPA2S* (SINTERFACE Technologies, Germany), we characterize the dynamic surface tension of the solutions at much shorter times. This apparatus⁴¹ permits to estimate very short adsorption times from dynamic surface tension data acquired in a bubble lifetime t_{life} interval from 10^{-2} s up to 10 s , and even down to $t_{life} = 10^{-3} \text{ s}$ for solutions with water as solvent^{42,43}. In Fig. 1, we observe that the adsorption of butanol molecules onto the gas/liquid interface is much faster than that of the Tween 20 surfactant molecules. At $t_{life} = 10^{-2} \text{ s}$, the value of the surface tension for gas/solution with butanol system is roughly the equilibrium one indicating that the adsorption of the butanol molecules on the gas interface at this timescale is already total. In contrast, at $t_{life} = 10^{-2} \text{ s}$, the value of the surface tension for the gas/solution without butanol system, which has not relaxed yet to its equilibrium value, is still large indicating that the adsorption process of Tween 20 surfactant molecules onto the gas interface is red much slower. From additional experiments conducted at $t_{life} \simeq 10^{-3} \text{ s}$ on the Tween 20 surfactant solution with no butanol, we deduce that Tween 20 surfactant molecules do barely not absorb on the gas/liquid interface at on the millisecond time scale since the value of the measured surface tension remains close to that of water

$$\gamma_w = 72.4 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}.$$

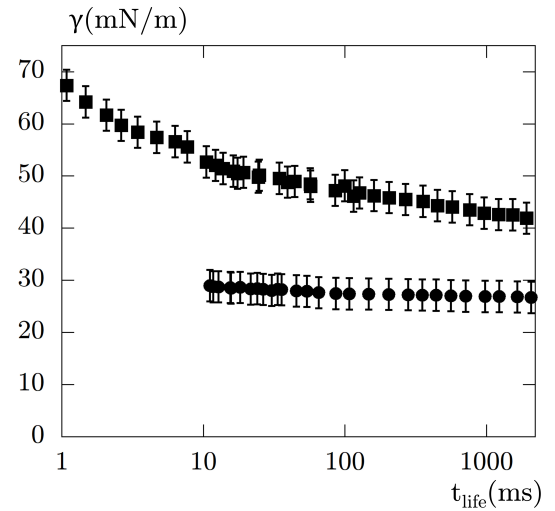


FIG. 1. Dynamic surface tensions measured for the surfactant solution made of $1 \text{ wt } \%$ of Tween 20 with $0 \text{ wt } \%$ (■) and $7 \text{ wt } \%$ (●) butanol over the interval $1 \text{ ms} - 2000 \text{ ms}$ using the maximum bubble pressure method. Values under 10 ms for the $7 \text{ wt } \%$ butanol solution cannot be obtained due to technical limitations of the apparatus^{42,43}.

B. Microfluidic experiments

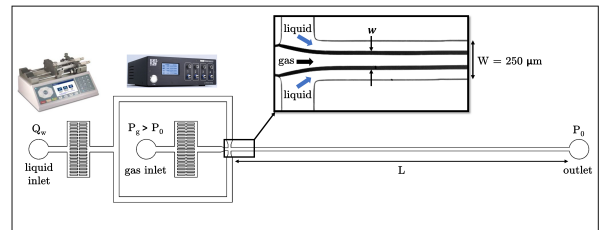


FIG. 2. Top view sketch of the set-up and definition of the geometric parameters characterizing the channel and the gas jet. Insets : images of the syringe pump (Nexus 3000 from Chemyx, USA) and the gas pressure controller (OB1 MK3+ from Elvexsys, France) used to conduct our experiments. Inset: image of the inner gas stream that forms at the cross junction where gas and liquid meet.

Our microfluidic experiments are carried out in planar microchannels, fabricated by soft lithography techniques⁴⁴: a molding of poly(dimethylsiloxane), PDMS (Sylgard 184 Silicone Elastomer, Dow Corning) is sealed to a smooth PDMS slab using a plasma treatment, which also makes the channel surfaces hydrophilic. Laminar gas-liquid co-flowing streams are formed at a symmetrical cross flow junction (see inset of Fig. 2). The inner dimensions of the main channel are $H=63 \mu\text{m}$, $W=250 \mu\text{m}$ and $L=2.4 \text{ cm}$. The gas (N_2) is introduced through the central channel and the liquid from the two lateral channels, respectively, as depicted in Fig. 2. The liquid

flow rate, Q_w , is controlled by a syringe pump *Nexus 3000* (Chemyx, USA) whereas N_2 is delivered through the gas inlet from a pressurized tank (pressure $P_0 + \Delta P$) by means of a pressure controller *OB1 MK3+* (Elvesys, France). The main channel outlet is at atmospheric pressure, P_0 . The set-up is placed under an inverted microscope *DM IL LED* (Leica, Germany) with a 5–10 x objective, which is connected to a high-speed camera *FASTCAM Mini AX 100* (Photron, Japan). The rate of acquisition is 20000 frames per second and the field of view is $600 \times 1200 \mu\text{m}^2$. All images shown in the article are extracted from videos taken with this framerate. Image processing and analysis were performed using mainly “Resclone”, “Measure” and “Analyse particles” functions of the ImageJ software.

C. Observations and results

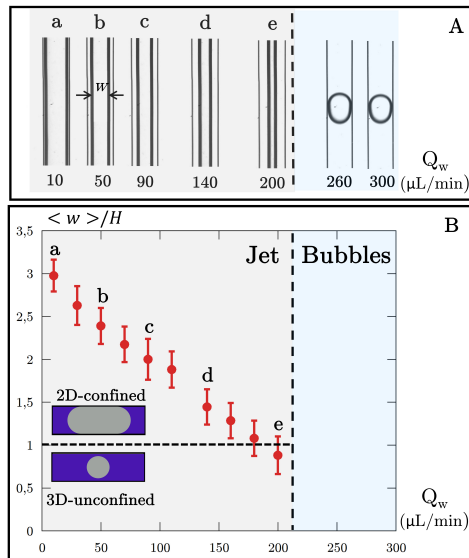


FIG. 3. A) Images of the two-phase flow observed for $\Delta P=300 \text{ mbar}$ and different values of Q_w for the system without butanol. The vertical dashed line separates the domains for which a gas stream or gas bubbles are observed. B) Variation of the ratio between the gas jet mean width $\langle w \rangle$ and H as a function of Q_w . Insets of B: sketches of 2D-confined and 3D-unconfined jets represented in a vertical cross-section of the rectangular channel. The horizontal dashed line corresponds to the transition from a 2D-confined to a 3D-unconfined jet.

For the two liquid systems (without and with butanol), we work at a constant ΔP value in the range [100–300] mbar while increasing Q_w from 10 to 300 $\mu\text{L}/\text{min}$. Fig. 3A shows the evolution of the two-phase flow as a function of Q_w with no butanol. For low values of Q_w , we observe a stable jet whose uniform width, w , continuously decreases with Q_w (see Fig. 3B) until it becomes comparable to H where the jet, which is now 3D-unconfined, takes a cylindrical shape. As this shape is unstable with respect to the surface tension driven Rayleigh-Plateau instability, the jet then breaks and

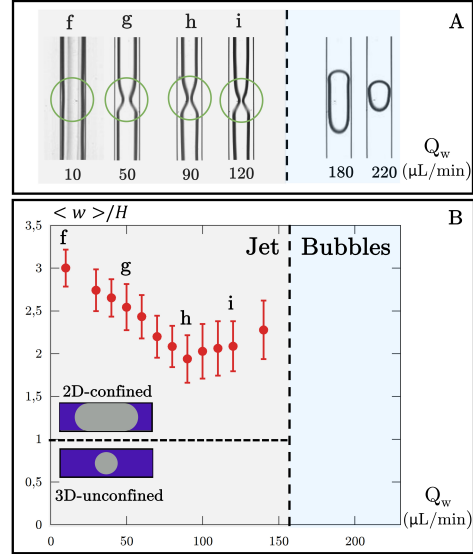


FIG. 4. A) Images of the two-phase flow observed for $\Delta P=300 \text{ mbar}$ and different values of Q_w for the system with butanol. The green circles locate necks that spread without deforming. Multimedia views of images g and f are available. B) Variation of the ratio between the width of the gas jet $\langle w \rangle$ and H as a function of Q_w . Insets of B: sketches of 2D-confined and 3D-unconfined jets represented in a vertical cross-section of the rectangular channel. The horizontal dashed line corresponds to the transition from a 2D-confined to a 3D-unconfined jet.

forms monodisperse bubbles that are periodically emitted in a dripping regime (Fig. 3A). Such a behavior has been reported by Dollet¹ on a different gas/liquid surfactant system.

Very surprisingly, when butanol is added to the liquid phase, the behaviour and the stability of the gas jet drastically differ, as displayed in Fig. 4A. For small values of Q_w , a gas jet still forms, however, its width is no longer uniform along the channel as some localized narrow necks are clearly noticeable (see multimedia views of images g and f). The gas jet mean width, $\langle w \rangle$ (this value is obtained by averaging over time the width of the jet at a fixed position along the microchannel), varies with Q_w (Fig. 4B) up to a critical flow rate value, above which the non-uniform jet breaks into monodisperse bubbles, although it is still globally 2D-confined.

To get a better understanding of the mechanism of destabilization of the gas stream phenomenon, we next study the width of a short neck as it is convected. As shown in Fig. 5, the amplitude of the disturbance δw , measured at different x positions along the main channel, increases until it reaches a steady state whose value depends on Q_w , as reported in Fig. 6. Surprisingly, we note that for $Q_w > 50$, the disturbed jet does not break into bubbles even though w_{min} is smaller than H and the jet therefore adopts a circular cross-section, locally.

In this steady state regime, the neck propagates at a constant velocity (Fig. 7A) while maintaining its shape (see multimedia views of images g and f). Interestingly, this non-linear thickness disturbance, localized in space and time, bears some sim-

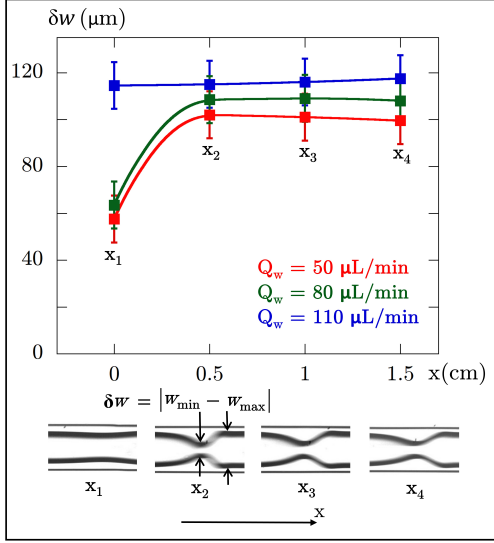


FIG. 5. Evolution of the amplitude of a neck, $\delta w = w_{max} - w_{min}$ that is observed for the system with butanol as a function of x (in cm), the channel position, for different values of Q_w . Insets: Images of the necks observed at different x for $Q_w = 50 \mu L/min$ and $\Delta P = 300$ mbar. Lines are only guide for the eyes.

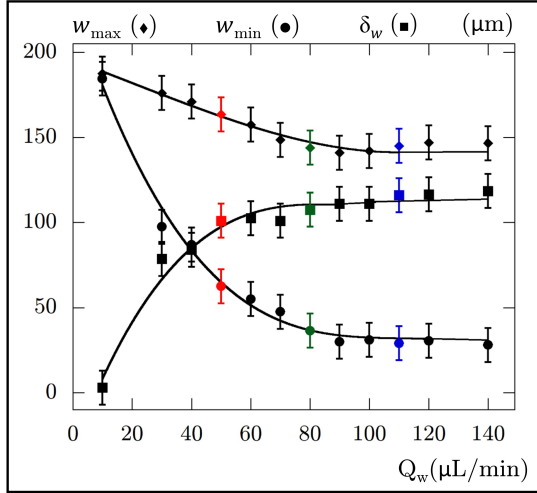


FIG. 6. Variation of the steady state values of w_{min} (\bullet), w_{max} (\blacklozenge) and $\delta w = w_{max} - w_{min}$ (\blacksquare) with Q_w when $\Delta P = 300$ mbar, for the butanol system. The values of these parameters (defined in Fig. 5) which characterize the neck geometry are measured at $x = 1$ cm . The values of Q_w for the symbols in red, green and blue are, as in Fig. 5, respectively 50, 80 and 110 $\mu L/min$. Lines are only guide for the eyes.

ilarities with a soliton. The formation of these necks occurs periodically and results from the growth of a small perturbation of the jet width that takes place near the cross-junction where the gas and the two liquid streams meet, very shortly after the laminar gas stream has been formed. Their mean

production rate increases with Q_w (see Fig. 8). The propagation velocity of these necks also increases with Q_w and, in our experiments conducted at $\Delta P = 300$ mbar, it varies from 0.5 to 1.5 $m.s^{-1}$. It is also very important to outline that all the phenomena reported herein are not triggered by the evaporation of butanol, as experimentally, we observe no difference whether the gas used for our experiments is or is not saturated with butanol. As evidenced in Fig. 7B, the hydrodynamic instability that destabilizes the gas microfluidic stream develops in a very short time, the order of magnitude of which is the millisecond.

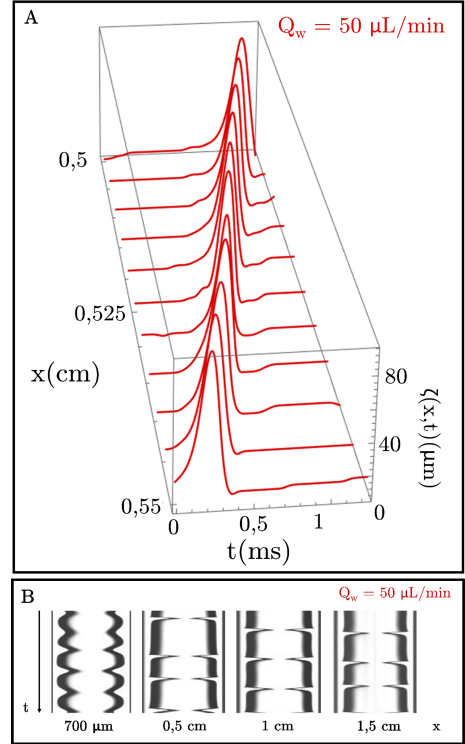


FIG. 7. A) The thickness profile of the liquid film, $\zeta = \frac{(W-w)}{2}$, along the x direction, is plotted at different times, t . The experimental variables are $\Delta P = 300$ mbar and $Q_w = 50 \mu L/min$. B) Temporal variation of the jet width at four different x positions taken along the channel for $\Delta P = 300$ mbar and $Q_w = 50 \mu L/min$.

III. THEORY:

A. A first qualitative explanation

To model the instability leading to the destabilization of the 2D-confined jet, it is first important to understand the effect of interfacial tension on the liquid pressure. Let us first consider the standard case, for which no Marangoni effects are considered (e.g. for which the surface tension remains constant). In a cylindrical 3D-unconfined geometry, any variation of the radius R of a gas thread having

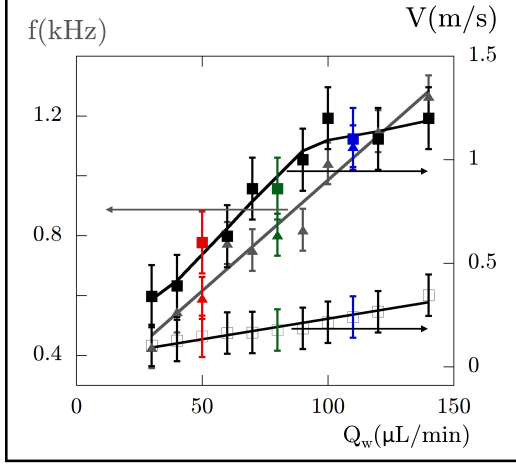


FIG. 8. Variations of the mean production rate, f (\blacktriangle), and velocity (\blacksquare), of the steady state necks with Q_w when $\Delta P=300$ mbar. Evolution of the fluid mean velocity, V_w (\square) with Q_w when $\Delta P=300$ mbar. The values of Q_w (given in $\mu\text{L}/\text{min}$) for the symbols in red, green and blue are, as in Fig. 5, respectively 50, 80 and 110. Lines are only guide for the eyes.

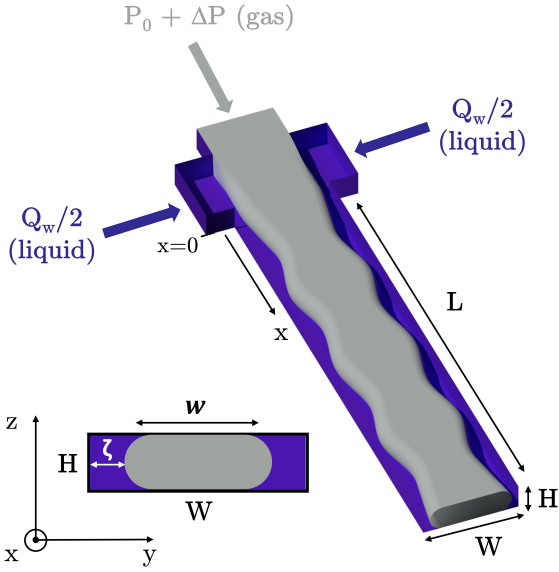


FIG. 9. Sketch of the cross-section of a 2D-confined gas stream in a vertical plane. Schematic representation of a 2D-confined gas stream for which the disturbance of the fluid thickness taken at half-height of the channel varies periodically along the flow direction x , accordingly to $\zeta(x)=\bar{\zeta}+\delta\zeta e^{ikx}$.

a constant pressure, P_0 , leads to two contributions for the Laplace pressure because of the two curvatures that characterize the gas-liquid interface. These contributions, which write $-\gamma/R(x)$ and $\gamma\frac{\partial^2 R(x)}{\partial x^2}$ with γ the gas/liquid surface tension, are respectively related to the curvature normal to the interface and to that along the x -axis. The first one is responsible for

the Rayleigh-Plateau instability as for a radius disturbance of the complex form, $R(x,t)=\bar{R}+\delta R e^{ikx}$, the pressure disturbance in the liquid writes in a linear approximation : $\delta P_\ell=\gamma(\frac{1}{\bar{R}^2}-k^2)\delta R e^{ikx}$ (\bar{R} and k are respectively the value of the radius of the unperturbed jet and the wavevector of the radius disturbance). The system is then always unstable since for $k\bar{R}<1$, the liquid pressure is larger in the liquid regions where $R(x,t)>\bar{R}$ than in the regions where $R(x,t)<\bar{R}$ so that a liquid flow results leading to an increase of the amplitude of the disturbance, δR . The gas stream is then unstable and breaks into gas bubbles.

For a 2D-confined jet, the situation is however different as the cross section of the jet is, to a good approximation, a rectangle of dimensions $(w-H)\times H$ bounded with two half circles of radius $H/2$, as illustrated in Fig. 9. Such an approximation holds because the capillary numbers at play in our experiments, $Ca=\eta V/\gamma\ll 1$ and because the gas does not wet the PDMS surface¹. One of the two curvature radii of the interface is therefore constant and equal to $H/2$ so that the Laplace pressure contribution now writes:

$$P_L = -\gamma\frac{2}{H} + \gamma\frac{\partial^2 w/2}{\partial x^2} \quad (1)$$

where w is the width of the jet.

When γ is constant, for a disturbance of the form $w(x,t)=\bar{w}+\delta w e^{ikx}$, the pressure disturbance in the liquid writes in a linear approximation : $\delta P_\ell=-\gamma k^2\delta w e^{ikx}$ (\bar{w} and k are respectively the width of the unperturbed jet and the wavevector of the width disturbance). The system is therefore always stable as for any k value, the liquid pressure is larger in the regions where $w(x,t)<\bar{w}$ than in the regions where $w(x,t)>\bar{w}$. As a result of this liquid pressure gradient, a flow of liquid from the former regions to the latter ones occurs and leads to a decrease of the amplitude of the disturbance, δw that hence always stabilizes the system.

The simple Rayleigh-Plateau picture depicted above well rationalizes our observations made on the Tween 20 surfactant system with no butanol for which the gas stream becomes unstable only when it becomes 3D-unconfined (i.e. with a circular cross-section, as depicted in inset of Fig. 4B). However, it fails to explain why, for the system with butanol, the gas stream may destabilize although it is still 2D-confined and therefore should be stable.

Interestingly, maximum bubble pressure measurements reveal that the total adsorption of butanol molecules on the gas/liquid interface occurs faster than 10 ms (the resolution of this apparatus for such a solution) in contrast to the Tween 20 surfactant molecules of our systems. The destabilization of the 2D-confined gas microfluidic stream, which occurs on a millisecond time scale, may therefore result from Marangoni effects as butanol molecules may have time to partially adsorb onto the gas/liquid interface. The Marangoni effect is responsible for froth in liquid mixtures⁴⁵. The interface of a liquid mixture is always enriched by the molecules exhibiting the lowest surface tension (butanol here) as compared to the bulk. Under surface extension, the surface concentration

evolves and leads to an increase of γ , the surface tension. The system after extension retrieves its thermodynamic equilibrium, through an exchange of molecules between the bulk and the interface and the value of γ becomes again equals to $\bar{\gamma}$. Along this line, a disturbance of the complex form $w(x,t)=\bar{w}+\delta w e^{ikx}$, generates an excess surface that modifies the local surface area fraction of the butanol molecules and hence leads to a disturbance of the local surface tension that in the linear regime takes the complex form $\gamma(x,t)=\bar{\gamma}+\delta\gamma e^{ikx}$. From Eq.(1), it therefore follows that the pressure liquid disturbance computed in the linear regime has now two terms as it is given by $\delta P_l=(\delta\gamma\frac{2}{H}-\bar{\gamma}k^2\delta w)e^{ikx}$. The second term is always stabilizing whereas the first term may possibly become destabilizing if the real part of the complex amplitude, $\delta\gamma$, is positive. A full analysis of the problem is not straightforward as it requires to theoretically describe the kinetics of adsorption of the butanol molecules on the disturbed interface. As this phenomenon involves an advection flux, it necessitate to compute the fluid velocity that strongly depends on the boundary Marangoni condition set by the adsorption of the butanol molecules⁴⁶. In the next paragraph, we detail this approach.

B. Modelling of the instability of a 2D-confined gas stream.

To check this plausible scenario, we perform a linear analysis of the stability of a thin layer of liquid of constant thickness, ζ , by considering a thickness disturbance of the form $\zeta(x,t)=\bar{\zeta}+\delta\zeta e^{ikx+st}$ and assuming that at the millisecond time scale of our microfluidic experiments, only the butanol molecules have time to adsorb at the gas/liquid interface (the Tween 20 molecules hence do not play any role for the destabilization phenomenon that we experimentally witness). In the linear regime, the surface concentration of the butanol molecules at the gas liquid interface writes $\Gamma(x,t)=\bar{\Gamma}+\delta\Gamma e^{ikx+st}$ so that the local surface tension varies accordingly to $\gamma(x,t)=\bar{\gamma}+\delta\gamma e^{ikx+st}$ where $\bar{\gamma}$ is the value of the gas/liquid surface tension for a butanol surface concentration equal to $\bar{\Gamma}$ that of the gas/liquid interface for the unperturbed liquid layer. Although evaporation may induce Marangoni effects⁴⁷⁻⁴⁹, we do not consider in our model the transfer by evaporation of the butanol molecules from the liquid to the gas. This simplification is justified, as we have experimentally checked that the destabilization of the 2D-confined gas jet is not triggered by the evaporation of butanol. Since the exchange of butanol molecules between the bulk and the interface is rather complex to theoretically describe, we decide to make the following three simplifying assumptions. Firstly, we consider that the adsorption/desorption kinetics of the butanol molecules at the interface from the bulk is mono-exponential, with a characteristic time, τ . Such an approximation which corresponds to a first order kinetics of adsorption is expected for a Langmuir model. We therefore consider that the butanol mass transfer mechanism is kinetically controlled and not diffusion controlled⁵⁰⁻⁵². Such assumption seems justified as the weight fraction of butanol in the bulk, 7 %, is quite large. Secondly, at the gas/liquid interface, we neglect the surface diffusive flow in front of the advective flow. This as-

sumption is valid as long as the Peclet number at play which is the inverse ratio between these two fluxes satisfies the following condition: $P_e=V\lambda/D\gg 1$ (V , λ and D are the fluid velocity at the gas/liquid interface, the wavelength of the surface disturbance and the surface diffusion coefficient of the butanol molecules (that we estimate to be similar to the bulk one), respectively^{46,53}. For our experiments this condition is well satisfied as $V\simeq 1\text{ ms}^{-1}$ and $\lambda\simeq 10^{-3}\text{ m}^{-1}$ (see Fig. 8) and $D\simeq 2,5\cdot 10^{-10}\text{ s}^2$, leading to Peclet numbers of the order of 10^7 . Thirdly, we consider that the surface tension of the water/butanol mixture obeys the Eberhart's equation⁵⁵ so that: $\gamma(\Gamma)=\Gamma\gamma_w+(1-\Gamma)\gamma_{but}$ where γ_w and γ_{but} are respectively the surface tension of water and of butanol with N_2 . With these ingredients, the kinetic evolution of Γ is given by⁴⁶:

$$\frac{\partial\Gamma}{\partial t}+\nabla_s\cdot(\mathbf{v}_{int}\Gamma)=\frac{\bar{\Gamma}-\Gamma}{\tau} \quad (2)$$

where \mathbf{v}_{int} is the fluid velocity vector at the gas/liquid interface) and where $\nabla_s=(\mathbf{I}-n\mathbf{n})\cdot\nabla$ and $(\mathbf{I}-n\mathbf{n})$ are respectively the surface gradient operator and the surface identity tensor, (\mathbf{n} is the normal to the gas/liquid interface pointing towards the gas). The second term of the left hand side represents the advective flux of butanol at the interface. To determine \mathbf{v}_{int} , one must analytically solve the fluid flow within the cell. This is a difficult task because of the rectangular channel geometry, so we describe the physics of the problem by approximating the 3D velocity by a 2D one, at half-height of the channel. Although, such an approximation may seem severe as it necessitates that $(\frac{\zeta}{H})^2\ll 1$, it however permits to identify the physical origin of the instability that we witness as we will show below. Using a lubrication approximation (valid for $k\delta\zeta\ll 1$), we approximate the velocity field by a bidimensionnal one, oriented along the x direction, varying only in the (x,y) plane. Because of the no-slip condition at the wall and Marangoni effects, the velocity field within the liquid writes:

$$\mathbf{v}(x,y,t)=V(x,t)\frac{y[2\zeta(x,t)-y+b(x,t)]}{\zeta(x,t)^2}\mathbf{e}_x \quad (3)$$

where $\frac{b(x,t)}{2}$ is the distance between the gas-liquid interface and the apex position of this parabolic profile (see Fig. 10). In the linear regime, $b(x,t)$ and $V(x,t)$ vary accordingly to $\bar{b}+\delta b e^{ikx+st}$ and $\bar{V}+\delta V e^{ikx+st}$, respectively. Note that: (i) \bar{V} is the liquid velocity at the gas/liquid interface if the thickness of the liquid layer is constant and (ii) $\bar{b}=0$ (for the unperturbed state, there is no Marangoni effect as the butanol surface concentration at the gas/liquid interface is constant). For the perturbed state, the fluid velocity vector at the gas/liquid interface, \mathbf{v}_{int} , is $\mathbf{v}(x,\zeta,t)=V_{int}(x,t)\mathbf{e}_x$ where:

$$V_{int}(x,t)=V(x,t)[1+b(x,t)/\zeta(x,t)] \quad (4)$$

With the lubrication approximation, Eq.(2) simplifies to:

$$\frac{\partial\Gamma}{\partial t}+\frac{\partial}{\partial x}(V_{int}\Gamma)=\frac{\bar{\Gamma}-\Gamma}{\tau} \quad (5)$$

By using Eberhart's equation, and Eq.(5), it is straightforward to derive that the kinetic equation that monitors the evolution of $\gamma(x,t)$ writes:

$$\frac{\partial \gamma}{\partial t} + V_{int} \frac{\partial \gamma}{\partial x} = \frac{\bar{\gamma} - \gamma}{\tau} + E_g \bar{\gamma} \frac{\partial V_{int}}{\partial x} \quad (6)$$

where E_g is the dimensionless Gibbs elasticity modulus given by $E_g = \frac{\bar{\gamma} - \gamma}{\bar{\gamma}}$.

Because of the great viscosity difference between air and the liquid, the contribution of the gas to the interface stress is negligible compared to that of the liquid; so that the tangential stress balance at the gas-liquid interface writes:

$$\eta \frac{bV}{\zeta^2} - \frac{\partial \gamma}{\partial x} = 0 \quad (7)$$

Writing the Navier-Stokes equation within the lubrication approximation and the above expression of the velocity field, yields the following equation:

$$2\eta \frac{V}{\zeta^2} + \frac{\partial P}{\partial x} = 0 \quad (8)$$

where the pressure P in the liquid is the sum of the Laplace pressure $P_L = -\frac{2\gamma}{H} - \gamma \frac{\partial^2 \zeta}{\partial x^2}$ given in Eq.(1) and the pressure of the gas.

We close the problem by writing the volume conservation of the liquid:

$$\frac{\partial \zeta}{\partial t} + \frac{\partial Q}{\partial x} = 0 \quad (9)$$

where the flux $Q = \int_0^{\zeta(x,t)} v(x,y) dy = bV/2 + 2V\zeta/3$.

We perform a linear stability analysis on the set of equations 6, 7, 8, and 9 that monitors the spatio-temporal response of the system (e.g. of the disturbances δV , $\delta \zeta$, $\delta \gamma$ and δb that are proportional to e^{ikx+st} with k and s complex numbers that represent the wavevector and the growth rate of the fluctuations, respectively).

Because of the great viscosity difference between air and the liquid, the amplitude of the gas pressure perturbation is negligible compared to that of the liquid¹, with this convention, arranging the first order term of Eq.(8), using Eq.(1), leads to the following equation:

$$2\eta \frac{\bar{\zeta} \delta V - 2\bar{V} \delta \zeta}{\bar{\zeta}^3} + ik(k^2 \bar{\gamma} \delta \zeta - 2 \frac{\delta \gamma}{H}) = 0 \quad (10)$$

The conservation of the liquid volume yields at first order to:

$$s \delta \zeta + ik \left(\frac{2}{3} (\bar{\zeta} \delta V + \bar{V} \delta \zeta) + \frac{\bar{V} \delta b}{2} \right) = 0 \quad (11)$$

The stress continuity at the interface writes:

$$\eta \bar{V} \frac{\delta b}{\bar{\zeta}^2} - ik \delta \gamma = 0 \quad (12)$$

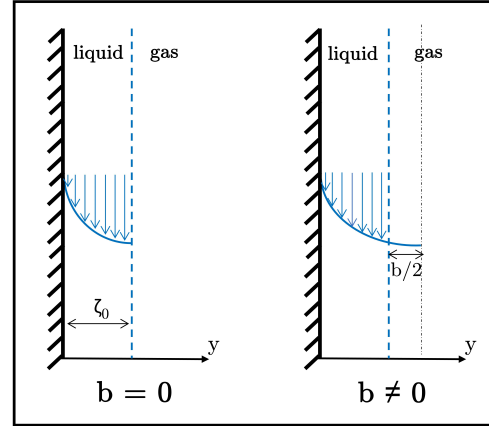


FIG. 10. Schematic representation of the parabolic velocity profile for the cases where $b=0$ and where $b \neq 0$. In the former case, there is no surface tension gradient at the interface and therefore no Marangoni effects.

Developing Eq.(4) at first order and using Eq.(6) gives the last equation:

$$-iE_g k \bar{\gamma} (\delta V + \frac{\bar{V} \delta b}{\bar{\zeta}}) + \delta \gamma (i\bar{V}k + s + \frac{1}{\tau}) = 0 \quad (13)$$

Eqs.(10-13) are a set of four linear equations for the four variables of the problem. The matrix of this linear system writes:

$$\begin{vmatrix} \frac{2\eta}{\bar{\zeta}^2} & 0 & ik^3 \bar{\gamma} - 4 \frac{\eta \bar{V}}{\bar{\zeta}^3} & -\frac{2ik}{H} \\ \frac{2ik\bar{\zeta}}{3} & \frac{ik\bar{V}}{2} & s + \frac{2ik\bar{V}}{3} & 0 \\ 0 & \frac{\bar{V}\eta}{\bar{\zeta}^2} & 0 & -ik \\ -iE_g k \bar{\gamma} & -\frac{ikE_g \bar{V} \bar{\gamma}}{\bar{\zeta}} & 0 & s + ik\bar{V} + \frac{1}{\tau} \end{vmatrix} \quad (14)$$

An instability appears if there is an eigen-mode for which s has a positive real part. A quick analysis of the problem reveals four dimensionless physical parameters, listed here: a capillary number, defined as $C_a = \eta \bar{V} / \bar{\gamma}$, another number $C_m = \frac{H\eta}{\bar{\gamma}\tau}$ that is the ratio of the water/butanol migration velocity H/τ to the capillary velocity, the ratio of the film thickness to the channel height, $X = \bar{\zeta}/H$, and E_g . We next introduce $q = k\bar{\zeta}$ and $S = s\tau$, the dimensionless wave-vector and growth rate of the fluctuation, respectively. By cancelling the determinant of the matrix given in (14), we then obtain a second order polynomial equation for S , shown below:

$$\begin{aligned} & -24C_a^2 q^2 + 4S(9iC_a C_m X q + \\ & C_m^2 X^2 + 3C_m E_g q^2 X(X+1) + C_m X q^4) + \\ & 4iC_a(6C_m X q + E_g q^3(2X+3) + q^5) + \\ & 12C_m^2 X^2 S^2 + 4C_m X q^4 + E_g q^6 = 0 \end{aligned} \quad (15)$$

By solving this dispersion equation using Mathematica, we extract two roots for $S(q)$ and hence $s(q)$. In the case where E_g vanishes, the two analytical solutions are:

$$s_1 = -\frac{1}{\tau} - ik\bar{V} \quad (16a)$$

and

$$s_2 = -\frac{k^4 \bar{\gamma} \bar{\zeta}^3}{3\eta} - 2ik\bar{V}\eta \quad (16b)$$

They correspond to surfactant density waves and capillary waves, two fluctuation modes that are both damped and convected.

In Fig. 11, we plot, $Re(S)$, the real part of $S(q)$, for these two modes as a function of q for an illustrative case where Marangoni effects take place (i.e., $E_g \neq 0$) and another case with no Marangoni effects (i.e., $E_g = 0$). As expected, when $E_g = 0$, these two modes are always stable as $Re(S) < 0$ for all q values. However, when $E_g \neq 0$, our model very interestingly demonstrates that one of the two modes becomes unstable as it exhibits a q domain where $Re(S) > 0$ whereas the other mode remains stable. Four dimensionless numbers are at play in our problem. To investigate the influence of (\bar{V}) and $\bar{\zeta}$ on the stability of the liquid layer for a given liquid system, we numerically establish a stability diagram in the $[\log(C_a), X]$ plane, where we report domains where the system is stable (i.e., $Re(S) < 0$) and unstable (i.e., $Re(S) > 0$), the values of $C_m = \frac{H\eta}{\bar{\gamma}\tau}$ and E_g being kept constant as they only depend on the physico-chemical properties of the gas/fluid system considered (η , $\bar{\gamma}$, τ and E_g) and of H . In Fig. 12, we report such stability diagrams established for four different values of E_g and the same value of C_m . Our numerical results show that for $E_g = 0$ (for which there is no Marangoni effects), the liquid layer is always stable whatever the flow conditions. When $E_g \neq 0$, for any X value, the system becomes unstable when the capillary number is large enough. These diagrams show that as the value of E_g increases, the unstable region becomes wider on the stability diagrams.

C. Results and discussion

In our microfluidic experiments, the destabilization of the gas/liquid interface occurs on a millisecond time scale (see Fig. 7B). On such a short timescale, for our liquid systems, Tween 20 molecules do not have time to adsorb on this interface. For the system with no butanol, the value of the surface tension $\bar{\gamma}$ at this gas/liquid interface is therefore constant and roughly equal to that of water $\gamma_w = 72.4 \text{ mN.m}^{-1}$. Any disturbance of this gas/liquid surface therefore does not generate Marangoni effects as the surface coverage by Tween 20 surfactant molecules (and hence the value of γ , the surface tension) is not able to vary significantly during such a short time. We therefore conclude that Marangoni effects induced by the sole adsorption of Tween 20 surfactant molecules are unable to destabilize the 2D-confined microfluidic jet for our

surfactant system with no butanol. Experimentally, this is exactly what we observe as the gas stream becomes unstable and forms bubbles only when it becomes 3D-unconfined.

For the system with butanol, the physical situation is very different as the butanol molecules may now have time to adsorb on the gas liquid interface since their adsorption time is very short (as revealed with the maximum bubble pressure tensiometer: at 10 ms, the adsorption of the butanol molecules is quasi-total). Unfortunately because of the time resolution of the maximum bubble pressure apparatus, we have no experimental means to characterize the adsorption of the butanol molecules on the gas/liquid interface (and henceforth the gaz/liquid surface tension) for times shorter than 10 ms. Because of these experimental limitations, we can only qualitatively compare our model predictions to our experimental findings as the values of $\bar{\gamma}$, E_g and τ are impossible to determine exactly. Experimentally, we can just state that $\tau \leq 10^{-2} \text{ s}$. Under the fast extension of the gas/liquid surface induced by a disturbance, as the newly created surface is populated by the molecules present in the bulk, its composition is that of the bulk. Using a cuboid approximation and the Eberhart's approximation⁵⁵ for computing the surface tension, the value of the dynamic surface tension at $t=0 \text{ s}$ is estimated to $\gamma_0 = 70.9 \text{ mN.m}^{-1}$. As $\gamma_0 > \bar{\gamma} \geq \gamma_{but}$ it therefore follows that $0 < E_g \leq 1.8$.

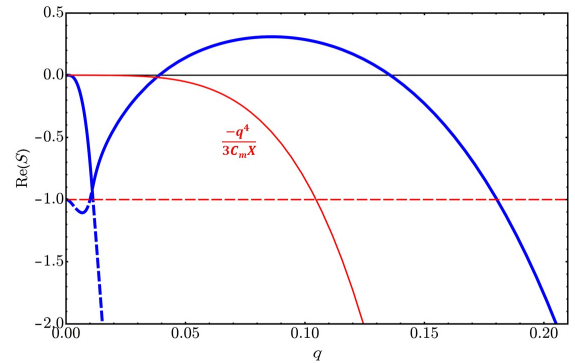


FIG. 11. $Re(S)$ of the two fluctuation modes as a function of q for a system with and without Marangoni effects for which the values of E_g are respectively 0.2 (blue curves) and 0 (red curves). For both systems $C_a = 8 \cdot 10^{-3}$, $C_m = 1 \cdot 10^{-4}$ and $X = 0.4$. The dashed and continuous lines correspond to surfactant density waves and capillary waves, respectively.

In Fig. 12, we indicate in the $[\log(C_a), X]$ plane, the domains where the system is stable (i.e., $Re(S) < 0$) and unstable (i.e. $Re(S) > 0$), for a fixed value of $C_m = 4.6 \cdot 10^{-4}$ (which corresponds to $\tau = 6 \cdot 10^{-3} \text{ s}$) and four different values of E_g . Very interestingly, we note that for $E_g = 0$ the jet is always stable whereas it may become unstable when the value of E_g is different from zero. The diagram obtained for $E_g = 1.8$ show an excellent agreement between theoretical predictions and our experimental observations while respecting $\tau \leq 10^{-2} \text{ s}$ and $0 < E_g \leq 1.8$.

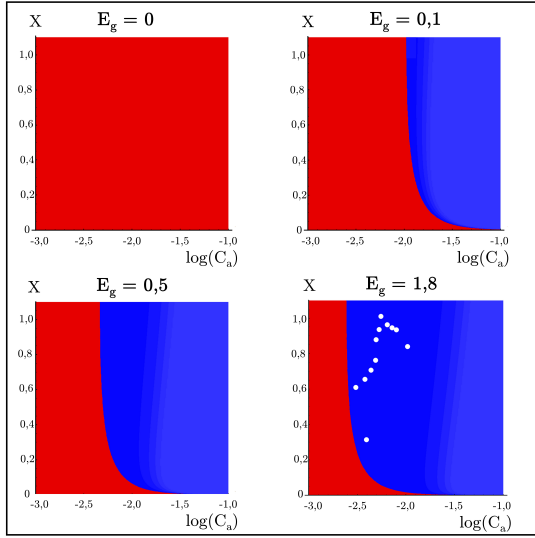


FIG. 12. Stability diagrams in the $[\log(C_a), X]$ plane, numerically computed with $C_m = 4.6 \cdot 10^{-4}$ (which corresponds to $\tau = 6 \cdot 10^{-3}$ s) and 4 different E_g . The blue (resp. red) areas correspond to unstable (resp. stable) regions. In the last diagram, the white circles correspond to the experimental conditions of our experiments conducted at $\Delta P = 300$ mbar, for all Q_w value in the jet regime (i.e. between 10 and 140 $\mu\text{L}/\text{min}$) (see Fig.4).

IV. CONCLUSION:

In closing, despite its simplicity, our model seems to well corroborate our experimental observations. We therefore believe that we have identified the key ingredients at play in the destabilization of 2D-confined microfluidic gas streams. This phenomenon only occurs when the adsorption time of the chemical species promoting such effects is of the order of the characteristic time of the microfluidic flow, that is typically $\simeq 1\text{ms}$. Experimentally, we have shown that the addition of a few % of butanol in the surfactant solution phase permits to witness such effects. We anticipate that this experimental system may also lead to Marangoni effects on various physical phenomena such as droplet impacts, splashes to name a few⁵⁶ for which the characteristic hydrodynamic timescales at play are also very short.

ACKNOWLEDGMENTS

This work was funded by a CIFRE Fellowship (2020-1424) from TotalEnergies S.E. We thank A. Saint-Jalmes for his help for surface tension measurements and A. Colin and B. Dollet for fruitful discussions.

¹B. Dollet, W. van Hoeve, J. Raven, P. Marmottant, and M. Verluis, "Role of the channel geometry on the bubble pinch-off in flow-focusing," Phys. Rev. Lett. **100**, 034504 (2008).

²P. Guillot, A. Colin, and A. Ajdari, "Stability of a jet in confined pressure-driven biphasic flows at low reynolds number in various geometries," Phys. Rev. E **78**(1), 016307 (2008).

- ³L. Salkin, A. Schmit, P. Panizza, and L. Courbin, "Making soap bubbles by blowing air onto a soap film," Phys. Rev. Lett. **116**(7), 077801 (2016).
- ⁴L. Tan, W. Zhu, and K. Zhou, "Recent progress on polymer materials for additive manufacturing," Adv. Funct. Mater. **30**(43), 2003062 (2020).
- ⁵S. Lin and R. Reitz, "Drop and spray formation from a liquid jet," Annu. Rev. Fluid Mech. **30**, 85–105 (1998).
- ⁶J. Lasheras and E. Hopfinger, "Liquid jet instability and atomization in a co-axial gas stream," Annu. Rev. Fluid Mech. **32**, 275 (2000).
- ⁷R. Ruo, F. Chen, C. Chang, and M. Chang, "Three-dimensional response of unrelaxed tension to instability of viscoelastic jets," J. Fluid Mech. **682**, 558–576 (2011).
- ⁸E. Antonopoulou, O. Harlen, M. Rump, T. Segers, and M. Walkley, "Effect of surfactants on jet break-up in drop-on-demand inkjet printing," Phys. Fluids **33**, 072112 (2021).
- ⁹H. Grace, "Monodisperse fragmentation in emulsions :mechanisms and kinetics," Europhys. Lett. **61**(5), 708–714 (2003).
- ¹⁰C. Mabilbe, F. Leal-Calderon, J. Bibette, and V. Schmitt, "Monodisperse fragmentation in emulsions :mechanisms and kinetics," Europhys. Lett. **61**(5), 708–714 (2003).
- ¹¹W. Drenckhan and A. Saint-Jalmes, "The science of foaming," Phys. Rev. Lett. **222**, 228–259 (2015).
- ¹²J. Montanero and A. Ganan-Calvo, "Dripping, jetting and tip streaming," Rep. Prog. Phys. **83**(9), 097001 (2020).
- ¹³J. Plateau, *Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires* (Gauthier-Villars:Paris, France, 1873).
- ¹⁴L. Rayleigh, "On the capillary phenomena of jets," Proc. R. Soc. London. **29**, 71–97 (1879).
- ¹⁵K. Humphry, A. Ajdari, A. Fernandez-Nieves, H. Stone, and D. Weitz, "Suppression of instabilities in multiphase flow by geometric confinement," Phys. Rev. E **79**(5), 056310 (2009).
- ¹⁶W. Engl, K. Ohata, P. Guillot, A. Colin, and P. Panizza, "Selection of two-phase flow patterns at a simple junction in microfluidic devices," Phys. Rev. Lett. **96**, 134505 (2006).
- ¹⁷P. Guillot, A. Colin, A. Utada, and A. Ajdari, "Stability of a jet in confined pressure-driven biphasic flows at low reynold numbers," Phys. Rev. Lett. **99**(10), 104502 (2007).
- ¹⁸A. Utada, A. Fernandez-Nieves, H. Stone, D. Weitz, A. Utada, and A. Ajdari, "Dripping to jetting transitions in coflowing streams," Phys. Rev. Lett. **99**(9), 094502 (2007).
- ¹⁹A. Utada, A. Fernandez-Nieves, H. Stone, D. Weitz, A. Utada, and A. Ajdari, "Absolute instability of a liquid jet in a coflowing stream," Phys. Rev. Lett. **100**(1), 014502 (2008).
- ²⁰G. Cabezas, M. Herrada, and M. Montanero, "Stability of a jet moving in a rectangular microchannel," Phys. Rev. E **100**(5), 053104 (2019).
- ²¹S. Vagner, S. Patlazhan, C. Serra, D. Funfschilling, and V. Kulichikhin, "Dripping and jetting of semi-dilute polymer solutions in co-axial capillaries," Phys. Fluids **33**(6), 062002 (2021).
- ²²K. Mu, R. Qiao, T. Si, X. Cheng, and H. Dinh, "Interfacial instability and transition of jetting and dripping modes in a co-flow focusing process," Phys. Fluids **33**, 052118 (2021).
- ²³S. Anna, N. Bontoux, and H. Stone, "Formation of dispersions using flow focusing in microchannels," Appl. Phys. Lett. **82**(3), 364 (2003).
- ²⁴P. Garstecki, H. Stone, and G. Whitesides, "Mechanism for flow-rate controlled breakup in confined geometries: a route to monodisperse emulsions," Phys. Rev. Lett. **94**(16), 164501 (2005).
- ²⁵W. Engl, R. Backov, and P. Panizza, "Controlled production of emulsions and particles by milli and microfluidic techniques," Curr. Opin. Colloid Interface Sci. **13**(4), 206–216 (2008).
- ²⁶P. Zhu and L. Wang, "Passive active droplet generation with microfluidics: a review," Lab Chip **17**(11), 34–75 (2017).
- ²⁷T. Cubaud, M. Tatini, X. Zhong, and C. Ho, "Bubble dispenser in microfluidic devices," Phys. Rev. E **72**(3), 037302 (2005).
- ²⁸P. Garstecki, M. Fuerstman, H. Stone, and G. Whitesides, "Formation of droplets and bubbles in a microfluidic t-junction-scaling and mechanism of break-up," Lab Chip **6**(5), 437–446 (2006).
- ²⁹W. van Hoeve, B. Dollet, J. Gordillo, M. Verluis, L. van Wijngaarden, and D. Lohse, "Bubble size prediction in coflowing streams," Eur. Phys. Lett. **94**(6), 64001 (2011).
- ³⁰S. Anna, "Droplets and bubbles in microfluidic devices," Annu. Rev. Fluid Mech. **48**, 285–309 (2016).

- ³¹M. Mein, C. L. Men, K. Loubière, G. Hebrard, and N. Dietrich, "Taylor bubble formation and flowing in a straight millifluidic channel with a cross inlet: Part i bubble," *Chem. Eng. Sci.* **255**, 117609 (2022).
- ³²C. Cramer, P. Fisher, and E. Windhab, "Drop formation in a co-flowing ambient fluid," *Chem. Eng. Sci.* **59**, 3045–3058 (2004).
- ³³H. Liu and Y. Zhang, "Droplet formation in microfluidic cross-junction," *Phys. Fluids* **23**, 082101 (2011).
- ³⁴L. Ngo, S. Joo, and C. Byon, "Effects of junction angle and viscosity ratio on droplet formation in microfluidic cross-junctions," *J Fluids Eng.* **138**, 051202 (2016).
- ³⁵W. Yu, X. Liu, Y. Zhao, and Y. Chen, "Droplet generation hydrodynamics in the microfluidic cross-junction with different junction angles," *Chem. Eng. Sci.* **203**, 259–284 (2019).
- ³⁶T. Dinh and T. Cubaud, "Role of the interfacial tension on viscous multiphase flows in coaxial microfluidic channels," *Langmuir* **37**, 7420–7429 (2021).
- ³⁷T. Cubaud, B. Conry, X. Hu, and T. Dinh, "Diffusive and capillary instabilities of viscous fluids threads in microchannels," *Phys. Rev. Fluids* **6**, 094202 (2021).
- ³⁸Z. Liu, Y. Ma, X. Wang, Y. Pang, Y. Ren, and D. Li, "Experimental and theoretical studies on neck thinning dynamics of droplets in cross junctions microchannels," *Exp. Therm. Fluid Sci.* **139**, 110739 (2022).
- ³⁹M. de Saint Vincent, H. Chraïbi, and J. Delville, "Optical flow focusing: light-induced destabilization of a stable liquid thread," *Phys. Rev. App.* **4**, 044005 (2015).
- ⁴⁰P. Cheng, D. Li, L. Boruvka, Y. Rotenberg, and A. Neuman, "Automation of axisymmetric drop shape analysis for measurement of interfacial tensions and contact angles," *Colloid Surf. A* **43**, 151–167 (1990).
- ⁴¹R. Bendure, "Dynamic surface tension determination with the maximum bubble pressure method," *J. Colloid Interface Sci.* **35**(2), 238–248 (1971).
- ⁴²V. Fainerman, V. Kazakov, S. Lylyk, and A. M. R. Miller, "Dynamic surface tension measurements of surfactant solutions using the maximum bubble pressure method – limits of applicability," *Colloid Surfaces A* **250**, 97–102 (2004).
- ⁴³V. Fainerman, V. Mys, A. Makievski, J. Petkovic, and R. Miller, "Dynamic surface tension of micellar solutions in the millisecond and submillisecond time range," *J. Colloid Interface Sci.* **302**, 40–46 (2006).
- ⁴⁴D. Duffy, J. McDonald, O. Schueller, and G. Whitesides, "Rapid prototyping of microfluidic systems in poly(dimethylsiloxane)," *Anal. Chem.* **37**, 357–392 (1998).
- ⁴⁵H. P. Tran, M. Arangalage, L. Jorgensen, N. Passade-Boupat, F. Lequeux, and L. Talini, "Understanding frothing of liquid mixtures: a surfactant effect at the origin of enhanced liquid film lifetimes," *Phys. Rev. Lett.* **125**, 178002 (2020).
- ⁴⁶H. Manikantan and T. Squires, "Surfactant dynamics: hidden variables controlling fluid flows," *J. Fluid Mech.* **892**, P1 (2020).
- ⁴⁷F. Wodlei, J. Sebilleau, J. Magnaudet, and V. Pimienta, "Marangoni-driven flower-like patterning of an evaporating drop spreading on a liquid substrate," *Nat. Commun.* **9**, 820 (2018).
- ⁴⁸R. Nazareth, G. Karapetsas, K. Sefiane, O. Matar, and P. Valluri, "The stability of slowly evaporating thin liquid films of binary mixtures," *Phys. Rev. Fluid* **5**, 104007 (2020).
- ⁴⁹H. Liu and J. Deng, "Influence of marangoni effects on heat and mass transfer during evaporation of sessile microdroplets," *Micromachines* **13**, 1968 (2022).
- ⁵⁰F. Jin, R. Balasubramaniam, and K. J. Stebe, "Surfactant adsorption to spherical particles: the intrinsic length scale governing the shift from diffusion to kinetic-controlled mass transfer," *J. Adhes.* **80**, 773–796 (2004).
- ⁵¹Q. Brosseau, J. Vignon, and J. C. Baret, "Microfluidic dynamic interfacial tensiometry (μ dit)," *Soft Matter* **10**, 3066–3076 (2014).
- ⁵²F. He, P. Yazhgur, A. Salonen, and D. Langevin, "Adsorption-desorption kinetics of surfactants at liquid interfaces," *Adv. Colloid Interface Sci.* **222**, 377–384 (2015).
- ⁵³T. Bickel, "Spreading dynamics of reactive surfactants driven by marangoni convection," *Soft Matter* **15**, 3644 (2019).
- ⁵⁴T. Cubaud, B. Conry, X. Hu, and T. Dinh, "Swelling of diffusive fluid threads in microchannels," *Phys. Rev. Lett.* **125**, 174502 (2020).
- ⁵⁵J. G. Eberhart, "The surface tension of binary liquid mixtures," *J. Phys. Chem.* **70**(4), 1183–1186 (1966).
- ⁵⁶G. Gillot, J. Gemeaux, L. Simon, and L. Benyahia, "Fast dynamics of surfactant probed by the acoustic of drop impact," *Phys. Fluids* **34**, 072107 (2022).

Conclusion générale et perspectives

1 Conclusions de l'étude

Au cours de ce travail de thèse, nous avons cherché à approfondir les connaissances sur les mécanismes de formation et de destruction de mousse en milieu poreux, en nous concentrant sur le principal mécanisme de formation, le snap-off, et le principal mécanisme de destruction, la coalescence de bulles en écoulement. Notre but a été de simplifier au maximum les situations grâce à des dispositifs modèles, à deux dimensions et surtout transparents, afin de permettre une observation in-situ de la microstructure de la mousse en écoulement. Surtout, nous avons voulu étudier l'influence de la physico-chimie, ainsi que comparer nos résultats avec ceux obtenus en milieu poreux, le but étant de voir les enseignements qui pouvaient en être tirés.

Dans le second chapitre, nous avons étudié la formation de mousse à travers un modèle de pore unique ayant une section rectangulaire. En effectuant des variations cycliques de débit de liquide pour une valeur fixe de pression de gaz, nous avons mis en évidence expérimentalement un phénomène d'hystérèse entre deux régimes hydrodynamiques stationnaires, à savoir un régime jet et un régime bulle, et l'existence d'une région bistable pour les valeurs intermédiaires de débit de liquide. Ce phénomène est aussi observé lors de l'injection dans des conditions similaires en milieu poreux. Il nous apprend qu'un test de balayage des débits fractionnaires de gaz injectés en milieu poreux a tout intérêt à être mené en partant d'un débit fractionnaire de gaz faible, afin de générer efficacement une mousse sèche dans ce dernier.

En utilisant un modèle hydrodynamique simple de l'écoulement du jet, nous avons prédit deux phénomènes, vérifiés expérimentalement :

- l'existence d'un seuil du gradient de pression local au niveau du pore ; la génération de bulles ne pouvant s'effectuer que lorsque le gradient local de pression est supérieur à ce seuil, sinon un simple jet de gaz continu -qui ne génère pas de viscosité apparente élevée- se forme. A partir de ce résultat, nous avons pu mettre en évidence et expliquer qualitativement un processus de

rétroaction hydrodynamique dû à la mousse en écoulement en aval, qui influe sur sa formation dans le pore situé en amont au travers de gradients de pression locaux, et conduit au phénomène d'hystérèse observé entre les régimes bulle et jet.

- l'existence d'un débit fractionnaire maximal de gaz pour la mousse générée, qui dépend de la géométrie et surtout du rapport d'aspect du pore modèle de section rectangulaire. Les résultats de notre étude, menée sur un pore unique, démontrent que les mousses les plus sèches sont formées en utilisant un pore de section carrée ou circulaire. On peut donc se demander si un tel résultat persiste en travaillant non plus avec un pore unique mais un milieu poreux, et s'il est donc plus simple de générer une mousse dans un milieu poreux pourvu de pores ayant un profil plutôt carré ou circulaire, par rapport à un milieu poreux contenant des pores très asymétriques.

L'absence éventuelle de génération de mousse au profit de la formation d'un jet continu de gaz conduit à une chute brutale de la viscosité apparente mesurée à débit fractionnaire de gaz élevé. Cette chute est également observée en milieu poreux et généralement attribuée à des phénomènes de coalescence entre les bulles lorsque la mousse devient trop sèche, en raison du dépassement de la pression capillaire critique. Nos observations nous conduisent à proposer un autre mécanisme expliquant cette chute : au delà d'un certain débit fractionnaire de gaz, la génération de mousse in situ devient impossible, ce qui conduit à une modification défavorable de sa texture. Ces résultats font l'objet d'un article scientifique intitulé "*Foam generation through a single pore with rectangular cross-section : hysteretic behaviour and geometric limitation of the volume fraction of bubbles*", en cours de soumission.

Bien que cette première étude nous ait permis d'approfondir les connaissances sur le rôle de la géométrie des pores dans le mécanisme de formation de mousse, elle ne nous a en revanche pas permis de mettre en évidence des différences de comportement lorsque différents tensioactifs sont utilisés, alors que nous savons pourtant que certains sont très efficaces en milieu poreux tandis que d'autres ne le sont pas. Nous avons donc choisi pour la suite de notre étude de changer totalement de montage et d'étudier la coalescence en écoulement, ce qui a fait l'objet du quatrième chapitre.

Cependant, cette première étude a bien permis de mettre en évidence l'influence qu'a l'ajout dans la phase liquide d'un additif anti-mousse, le butanol, sur la formation de mousse avec notre dispositif modèle. Cette piste a donc été explorée au troisième chapitre, en ajoutant cet additif en diverses proportions. Nous avons observé que l'ajout d'une quantité suffisante de butanol pouvait entraîner la déstabilisation d'un jet $2D$ -confiné, facilitant de manière assez inattendue la formation de mousse. Nous avons démontré que cette déstabilisation résulte probablement d'un effet Marangoni généré par ces molécules de butanol qui s'adsorbent très rapidement à l'interface contrairement aux molécules de tensioactifs. Un modèle simple basé sur une analyse de stabilité linéaire a été développé et a permis de mieux comprendre les mécanismes hydrodynamiques de

déstabilisation et le rôle joué par les différents paramètres physiques et physico-chimiques mis en jeu. Ce travail a fait l'objet d'un article scientifique "*Marangoni destabilization of bidimensional-confined gas-liquid co-flowing streams in rectangular microfluidic channels*" (Physics of Fluids 35, 042111 (2023)) joint en Annexe 2. Cependant, il convient de noter (voir les résultats du deuxième chapitre) que cet additif conduit également à une déstabilisation de la mousse formée et inhibe donc la formation de mousse "forte". Il n'est donc pas du tout conseillé de l'utiliser en milieu poreux.

Dans le chapitre 4, nous nous sommes intéressés à la coalescence de bulles en écoulement. Nous avons développé un nouveau dispositif millifluidique qui a la particularité de faire s'écouler une mousse $1D$ dans un tube dont la longueur est très supérieure à la taille des bulles créées, et donc pendant une durée élevée. Ce dernier permet de faire varier continûment le débit fractionnaire de gaz le long de l'écoulement, grâce à la compressibilité du gaz qui fait augmenter le volume des bulles. Nous avons pu mettre en évidence une très forte influence des tensioactifs et additifs utilisés sur le taux de coalescence des bulles en fonction du débit fractionnaire de gaz de la mousse. Le tensioactif industriel IOS S2, par ailleurs très efficace en milieu poreux réel, est également très efficace pour empêcher la coalescence des bulles dans notre dispositif, et ce même pour une mousse très sèche, au contraire du tensioactif modèle *Tween* 20, aussi peu efficace dans notre dispositif qu'en milieu poreux. Cependant, de manière inattendue, l'ajout de butanol a également pour effet d'inhiber la coalescence des bulles. Il faut cependant noter que cet additif modifie aussi grandement la taille des bulles formées, qui sont bien plus petites, ce qui a probablement une forte influence sur la coalescence. Ainsi, si ces expériences préliminaires démontrent qualitativement que notre montage millifluidique permet de discriminer différents tensioactifs, le rôle joué par les différents paramètres hydrodynamiques et physico-chimiques sur les divers comportements observés reste à élucider.

2 Ouverture et perspectives

Dans un premier temps, il faut souligner que l'étude du chapitre 4 n'en est encore qu'à un stade préliminaire, de nombreux résultats expérimentaux restant à analyser, et d'autres expériences restant à réaliser. De plus, une interprétation physique des phénomènes observés sera nécessaire à l'avenir. Cependant, les premiers résultats obtenus démontrent que ce montage millifluidique semble pertinent pour investiguer l'influence de la physico-chimie sur le transport et la destruction de mousse. Il est donc à ce titre prévu qu'il soit réutilisé pour des études futures qui seront menées en collaboration entre l'EPSCI et TotalEnergies.

Il est également possible de l'améliorer afin de l'utiliser pour étudier l'influence de diverses sollicitations des bulles en écoulement ; pour cela, le dispositif est d'abord utilisé pour générer et stocker dans le tube 5 m de mousse uniforme au débit fractionnaire de gaz souhaité. Ensuite, la

sortie du tube est branchée à un dispositif millifluidique réalisé soit à partir de plaques en Polyméthacrylate de méthyle (PMMA) découpées et entourées d'autre plaques percées, soit à partir d'un moulage en PDMS à partir de moules réalisés en impression 3D, et la mousse est poussée à l'intérieur à vitesse constante par la pompe à liquide. On peut alors observer l'écoulement de la mousse dans ces dispositifs de différentes géométries qui sollicitent les lamelles de fluide de différentes façons, par exemple en les étirant, tout en découplant totalement l'écoulement de la mousse de sa formation (voir figure 6.32). Les tests préliminaires se sont révélés prometteurs.

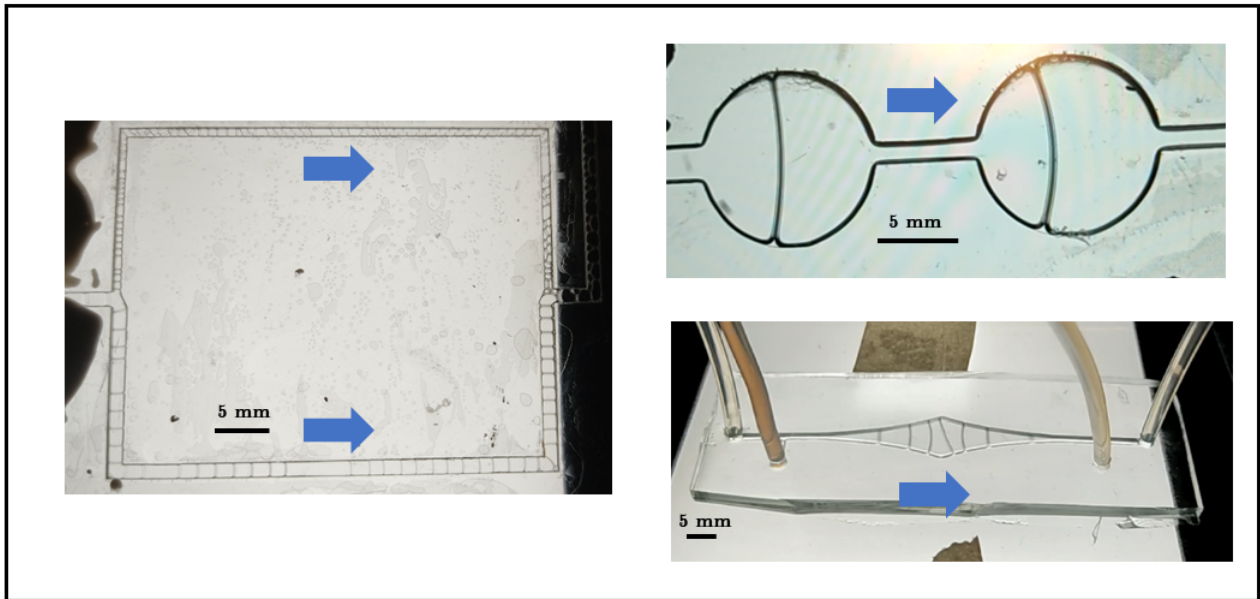


FIGURE 6.32 – Photographie de différents dispositifs de sollicitation de lamelles à l'échelle millifluidique. Les flèches bleues indiquent le sens de l'écoulement.

En ce qui concerne le montage de microfluidique, nous savons maintenant qu'il est possible de s'affranchir des effets de non-génération de mousse pour cause de gradient local de pression insuffisant en utilisant simplement des constriction de section carrée. Il serait alors possible de s'intéresser uniquement à la coalescence des mousses et de comparer différents tensioactifs.

Finalement, il faut mentionner que nous n'avons pu, faute de temps, nous intéresser à l'influence de la présence d'huile au contact de la mousse en écoulement -notamment sur la coalescence qui est grandement facilitée- ce qui est très fréquemment rencontré en milieu poreux. Des adaptations des dispositifs représentés figure 6.32 pour inclure de l'huile seraient envisageables à cette fin.

Liste des publications

Articles publiés dans des revues à comité de lecture

Mattéo Clerget, Alexandra Klimenko, Maurice Bourrel, François Lequeux, Pascal Panizza.
"*Marangoni destabilization of bidimensional-confined gas-liquid co-flowing streams in rectangular microfluidic channels (2023)*". *Physics of Fluids*.
DOI: [doi: 10.1063/5.0145178](https://doi.org/10.1063/5.0145178)

Mattéo Clerget, Alexandra Klimenko, Maurice Bourrel, François Lequeux, Pascal Panizza.
"*Foam generation through a single pore with rectangular cross-section : hysteretic behavior and geometric limitation of the volume fraction of bubbles (2024)*". *ACS Omega*.

Bibliographie

- [1] G. F. PINDER et W. G. GRAY. *Essentials of Multiphase Flow and Transport in Porous Media*. Wiley, 2008 (cf. p. 2).
- [2] A. MUGGERIDGE, A. COCKIN, K. WEBB, H. FRAMPTON, I. COLLINS, T. MOULDS et al. « Recovery rates, enhanced oil recovery and technological limits ». *Phil. Trans. R. Soc. A* 372 (2014), p. 20120320 (cf. p. 2, 3).
- [3] S. OMIRBEKOV. « Polluted soil remediation using surfactant foam injection : experiments and upscaling ». Thèse de doct. HESAM University, 2020 (cf. p. 2).
- [4] A. ORUJOV, K. CODDINGTON et S. A. ARYANA. « A Review of CCUS in the Context of Foams, Regulatory Frameworks and Monitoring ». *Energies* 16.7 (2023) (cf. p. 2).
- [5] A. MAURAY. « Etude des propriétés de transport de mousse dans des modèles de milieux poreux ». Thèse de doct. Université Grenoble Alpes, 2017 (cf. p. 2, 8, 9).
- [6] N. FATIN-ROUGE. « Utilisation des mousses pour le traitement des sites et sols pollués » (2019) (cf. p. 2, 5).
- [7] P. G. SAFFMAN et G. TAYLOR. « The Penetration of a Fluid into a Porous Medium or Hele-Shaw Cell Containing a More Viscous Liquid ». *Proceedings of the Royal Society of London Series A* 245.1242 (1958), p. 312-329 (cf. p. 3).
- [8] N. FOREY. « Mousses renforcées en polymère ou particules : application à la remédiation des sols pollués ». Thèse de doct. Bordeaux University, 2019 (cf. p. 3).
- [9] K. MA. « Transport of Surfactant and Foam in Porous Media for Enhanced Oil Recovery Processes ». Thèse de doct. Rice University, 2013 (cf. p. 4).
- [10] S.A. JONES, V. BENT, R. FARAJZADEH, W.R. ROSSEN et S. VINCENT-BONNIEU. « Surfactant screening for foam EOR : Correlation between bulk and core-flood experiments ». *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects* 500 (2016) (cf. p. 4, 10, 39).
- [11] A. H. FALLS, G. J. HIRASAKI, T. W. PATZEK, D. A. GAUGLITZ, D. D. MILLER et T. RATULOWSKI. « Development of a Mechanistic Foam Simulator : The Population Balance and Generation by Snap-Off ». *SPE Reservoir Engineering* 3.03 (1988), p. 884-892 (cf. p. 4, 5).
- [12] G.L. HIRASAKI et J.B. LAWSON. « Mechanisms of foam flow in porous media : apparent viscosity in smooth capillaries ». *SPE Journal* 25(02) (1985), p. 176-190 (cf. p. 5).
- [13] J. J. SHENG. *Enhanced Oil Recovery : Field Case Studies*. Gulf Professional Publishing, 2013 (cf. p. 5).
- [14] A. R. KOVSCEK M. M. ALMAJID. « Pore-level mechanics of foam generation and coalescence in the presence of oil ». *Advances in Colloid and Interface Science* 233 (2016), p. 65-82 (cf. p. 6).
- [15] Z. F. ZHANG, V. L. FREEDMAN et L. ZHONG. *Foam Transport in Porous Media - A Review*. 2009 (cf. p. 6).
- [16] A. R. KOVSCEK et C. J. RADKE. « Fundamentals of Foam Transport in Porous Media ». *Advances in Chemistry* 242 (1994) (cf. p. 6, 7).
- [17] T. J. PENA, M. S. CARVALHO et V. ALVARADO. « Snap-off of a liquid drop immersed in another liquid flowing through a constricted capillary ». *AIChE Journal* 55.8 (2009), p. 1993-1999 (cf. p. 6).
- [18] T. C. RANSOHOFF, P. A. GAUGLITZ et C. J. RADKE. « Snap-off of gas bubbles in smoothly constricted noncircular capillaries ». *AIChE Journal* 33.5 (1987), p. 753-765 (cf. p. 6).
- [19] B. DERJAGUIN et L. LANDAU. « The theory of stability of highly charged lyophobic sols and coalescence of highly charged particles in electrolyte solutions ». *Acta Physicochim. URSS* 14 (1941), p. 633-52 (cf. p. 7).
- [20] J. T. G. OVERBEEK. « Black Soap Films ». *J. Phys. Chem.* 64 (1960), p. 1178-83 (cf. p. 7).
- [21] I. CANTAT, S. COHEN-ADDAD, F. ELIAS, F. GRANER, R. HOHLER, O. PITOIS et al. *Foams : Structure and Dynamics*. Oxford University Press, 2013 (cf. p. 7, 51).

- [22] Z. I. KHATIB, G. J. HIRASAKI et A. H. FALLS. « Effects of capillary pressure on coalescence and phase mobilities in foams flowing through porous media ». *SPE Res. Eng.* 3(03) (1988), p. 919-926 (cf. p. 7-9, 39, 56).
- [23] E. VAVRA, C. BAI, M. PUERTO, K. MA, K. MATEEN, G. J. HIRASAKI et al. « Effects of velocity on N₂ and CO₂ foam flow with in-situ capillary pressure measurements in a high-permeability homogeneous sandpack ». *Scientific Reports* 13 (2023) (cf. p. 8).
- [24] L. DING et D. GUERILLOT. « A Simplified Mechanistic Population Balance Model for Foam Enhanced Oil Recovery (EOR) ». *ECMOR XVII 2020* (2020) (cf. p. 9).
- [25] A. R. KOVSCEK, T. W. PATZEK et C. J. RADKE. « A mechanistic population balance model for transient and steady-state foam flow in Boise sandstone ». *Chemical Engineering Science* 50 (1995) (cf. p. 9).
- [26] L. LABARRE et D. VIGOLO. « Microfluidics approach to investigate foam hysteretic behaviour ». *Microfluidics and Nanofluidics* 23 (2019) (cf. p. 9).
- [27] W. DRENCKHAN, S. J. COX, G. DELANEY, H. HOLSTE, D. WEAIRE et N. KERN. « Rheology of ordered foams-on the way to discrete microfluidics ». *Colloids Surf. A* 263 (2005), p. 52-64 (cf. p. 9).
- [28] E. CHEVALLIER, N. DEMAZY et A. CUENCA. « Correlation Between Foam Flow Structure in Porous Media and Surfactant Formulation Properties ». *Transp Porous Med* 131 (2020) (cf. p. 10).
- [29] J.-P. RAVEN et P. MARMOTTANT. « Periodic microfluidic bubbling oscillator : Insight into the stability of two-phase microflows ». *Phys. Rev. Lett.* 97 (2006), p. 154501 (cf. p. 14, 16, 23, 38, 40).
- [30] B. DOLLET, W. van HOEVE, J.-P. RAVEN, P. MARMOTTANT et M. VERSLUIS. « Role of the Channel Geometry on the Bubble Pinch-Off in Flow-Focusing Devices ». *Phys. Rev. Lett.* 100 (2008) (cf. p. 14, 40, 59, 65, 77, 79, 82).
- [31] P. GUILLOT, A. COLIN et A. AJDARI. « Stability of a jet in confined pressure-driven biphasic flows at low Reynolds number in various geometries ». *Physical review E* 78 (2008) (cf. p. 14, 15, 27).
- [32] David C. DUFFY, J. Cooper McDONALD et Olivier J. A. Schuellerand George M. WHITESIDES. « Rapid Prototyping of Microfluidic Systems in Poly(dimethylsiloxane) ». *Phys. Rev. Lett.* 70(23) (1998), p. 4974-4984 (cf. p. 16, 59).
- [33] P. GARSTECKI, I. GITLIN, W. DiLUZIO, G. M. WHITESIDES, E. KUMACHEVA et H. A. STONE. « Formation of monodisperse bubbles in a microfluidic flow-focusing device ». *Appl. Phys. Lett.* 85 (2004), p. 2649-2651 (cf. p. 16).
- [34] M. SULLIVAN et H. A. STONE. « The role of feedback in microfluidic flow-focusing devices ». *Phil. Trans. R. Soc. A* 366 (2008), p. 2131-2143 (cf. p. 23, 24, 26, 38).
- [35] P. GUILLOT, P. PANIZZA, J.-B. SALMON, M. JOANICOT, A. COLIN, C.-H. BUNEAU et al. « Viscosimeter on a Microfluidic Chip ». *Langmuir* 22(14) (2006), p. 6438-6445 (cf. p. 27).
- [36] F.B. BRETHERTON. « The motion of long bubbles in tubes ». *J. Fluid Mech.* 10 (1961), p. 166-188 (cf. p. 28, 103).
- [37] R. EYMARD, T. GALLOU et R. HERBIN. *Finite Volume Methods Handbook of Numerical Analysis*. Ciarlet P. G. et Lions J. L., 2000 (cf. p. 30).
- [38] Z. I. KHATIB, G. J. HIRASAKI et A. H. FALLS. « Effects of capillary pressure on coalescence and phase mobilities in foams flowing through porous media ». *SPE Res. Eng.* 3(03) (1988), p. 919-926 (cf. p. 35).
- [39] M. BELLOUL, W. ENGL, A. COLIN, P. PANIZZA et A. AJDARI. « Competition between Local Collisions and Collective Hydrodynamic Feedback Controls Traffic Flows in Microfluidic Networks ». *Phys. Rev. Lett.* 102(19) (2009), p. 194502 (cf. p. 38).
- [40] P. PARTHIBAN et S. A. KHAN. « Bistability in droplet traffic at asymmetric microfluidic junctions ». *Biomicrofluidics* 7 (2013), p. 044123 (cf. p. 38).
- [41] D. A. SESSOMS, M. BELLOUL, W. ENGL, L. COURBIN et P. PANIZZA. « Complex Dynamics of Droplet Traffic in a Bifurcating Microfluidic Channel : Periodicity, Multistability, and Selection Rules ». *Phys. Rev. Lett.* 105 (2010), p. 154501 (cf. p. 38).
- [42] A. SCHMIT, L. SALKIN, L. COURBIN et P. PANIZZA. « Cooperative breakups induced by drop-to-drop interactions in one-dimensional flows of drops against micro-obstacles ». *Soft Matter* 11 (2015), p. 2454-2460 (cf. p. 38).
- [43] L. SHENG, S. LI, K. WANG, Y. CHANG, J. DENG et G. LUO. « Gas-Liquid Microfluidics : Transition Hysteresis Behavior between Parallel Flow and Taylor Flow ». *Industrial & Engineering Chemistry Research* 61.50 (2022), p. 18567-18573 (cf. p. 38).
- [44] B. HENRIK. *Theoretical Microfluidics*. New-York : Oxford University Press, 2008 (cf. p. 38).
- [45] H.H. LIU et Y.H. ZHANG. « Droplet formation in microfluidic cross-junction ». *Phys. Fluids* 23(8) (2011), p. 082101 (cf. p. 40).
- [46] L.L. NGO, S.W. JOO et C. BYON. « Effects of junction angle and viscosity ratio on droplet formation in microfluidic cross-junctions ». *J Fluids Eng.* 138 (2016), p. 051202 (cf. p. 40).
- [47] M. G. CABEZAS, M. A. HERRADA et J. M. MONTANERO. « Stability of a jet moving in a rectangular microchannel ». *Phys. Rev. E* 100 (2019), p. 053104 (cf. p. 40).

- [48] M. CLERGET, A. KLIMENKO, M. BOURREL, F. LEQUEUX et P. PANIZZA. « Marangoni destabilization of bidimensional-confined gas-liquid co-flowing streams in rectangular microfluidic channels ». *Phys. Fluids* (2023) (cf. p. 40).
- [49] P. CHENG, D. LI, L. BORUVKA, Y. ROTENBERG et A.W. NEUMAN. « Automation of axisymmetric drop shape analysis for measurement of interfacial tensions and contact angles ». *Colloid Surf. A* 43 (1990), p. 151-167 (cf. p. 60).
- [50] R.L. BENDURE. « Dynamic surface tension determination with the maximum bubble pressure method ». *J. Colloid Interface Sci.* 35(2) (1971), p. 238-248 (cf. p. 62).
- [51] V.B. FAINERMAN, V.N. KAZAKOV, S.V. LYLYK et A.V. MAKIEVSKI R. MILLER. « Dynamic surface tension measurements of surfactant solutions using the maximum bubble pressure method – limits of applicability ». *Colloid Surf. A* 250 (2004), p. 97-102 (cf. p. 62).
- [52] V.B. FAINERMAN, V.D. MYS, A.V. MAKIEVSKI, J.T. PETKOVIC et R. MILLER. « Dynamic surface tension of micellar solutions in the millisecond and submillisecond time range ». *J. Colloid Interface Sci.* 302(1) (2006), p. 40-46 (cf. p. 62).
- [53] H. MANIKANTAN et T.M. SQUIRES. « Surfactant dynamics :hidden variables controlling fluid flows ». *J. Fluid Mech.* 892 (2020), P1 (cf. p. 78, 79).
- [54] F. WODLEI, J. SEBILLEAU, J. MAGNAUDET et V. PIMIENTA. « Marangoni-driven flower-like patterning of an evaporating drop spreading on a liquid substrate ». *Nat. Commun.* 9(1) (2018), p. 820 (cf. p. 79).
- [55] H. LIU et J. DENG. « Influence of Marangoni effects on heat and mass transfer during evaporation of sessile microdroplets ». *Micromachines* 13 (2022), p. 1968 (cf. p. 79).
- [56] Q. BROSSEAU, J. VRIGNON et J. C. BARET. « Microfluidic dynamic interfacial tensiometry ». *Soft Matter* 10(17) (2014), p. 3066-3076 (cf. p. 79).
- [57] F. HE, P. YAZHGUR, A. SALONEN et D. LANGEVIN. « Adsorption-desorption kinetics of surfactants at liquid interfaces ». *Adv. Colloid Interface Sci.* 222 (2015), p. 377-384 (cf. p. 79).
- [58] T. BICKEL. « Spreading dynamics of reactive surfactants driven by Marangoni convection ». *Soft Matter* 15(18) (2019), p. 3644-3648 (cf. p. 79).
- [59] T. CUBAUD, B. CONRY, X.Y. HU et T. DINH. « Swelling of diffusive fluid threads in microchannels ». *Phys. Rev. Lett.* 125(17) (2020), p. 174502 (cf. p. 79).
- [60] J. G. EBERHART. « The surface tension of binary liquid mixtures ». *J. Phys. Chem.* 70(4) (1966), p. 1183-1186 (cf. p. 79).
- [61] K. GRAESSEL, C. BÄCHER et S. GEKLE. « Rayleigh–Plateau instability of anisotropic interfaces. Part 1. An analytical and numerical study of fluid interfaces ». *J. Fluid Mech.* 910 (2021) (cf. p. 79).
- [62] E. GUYON, J.P. HULIN et L. PETIT. *Hydrodynamique Physique*. Paris : EDP Sciences, 2012 (cf. p. 82).

RÉSUMÉ

L'injection de mousse en milieu poreux est une technique très prometteuse pour de nombreuses applications comme le stockage de dioxyde de carbone, la dépollution des sols ou la récupération assistée du pétrole. L'écoulement de cette mousse en milieu confiné met en jeu différents processus de formation ou de destruction des bulles qui la composent. La compréhension des mécanismes physiques de ces processus est nécessaire à l'amélioration du procédé, notamment au travers de l'optimisation de la formulation de la phase liquide.

Notre approche consiste à découpler ces différents phénomènes, grâce à des dispositifs modèles d'écoulement à deux dimensions, à l'échelle de la micro- ou milli-fluidique. Leur transparence nous permet de visualiser la structure de la mousse en écoulement et de faire le lien avec ses propriétés macroscopiques. Différents tensioactifs et additifs sont systématiquement testés afin d'étudier la capacité de nos dispositifs à les discriminer, et les résultats obtenus sont systématiquement comparés aux résultats obtenus en milieu poreux.

Notre première expérience, qui étudie la formation de bulles lors du passage du co-écoulement gaz/liquide dans un pore microfluidique, met en évidence un phénomène d'hystérèse de formation expliqué par un processus de réaction hydrodynamique amorcé par l'écoulement en aval. Nous mettons également en évidence grâce à des simulations numériques l'existence d'une limite à la qualité de la mousse pouvant être formée, liée uniquement à la géométrie du pore. Différents tensioactifs sont étudiés, et ces résultats sont comparés à des mesures à la fois en volume et en milieu poreux à trois dimensions.

Notre seconde expérience étudie l'influence de l'ajout d'un additif sur cette formation, notamment au travers des effets Marangoni que celui-ci génère. Un modèle théorique simple est développé pour prendre en compte ces effets.

Nous décrivons enfin un montage de millifluidique permettant d'observer et d'étudier la destruction de mousse par coalescence de bulles. Nous montrons que les résultats diffèrent drastiquement en fonction des tensioactifs et additifs utilisés.

MOTS CLÉS

Mousse, écoulement, milieu poreux, microfluidique, millifluidique, hystérèse, instabilité hydrodynamique

ABSTRACT

Foam injection into porous media is a highly promising technique for a wide range of applications, including carbon dioxide storage, soil remediation, and enhanced oil recovery. The flow of this foam in a confined environment brings into play different processes of formation or destruction of the bubbles of which it is composed. Understanding the physical mechanisms of these processes is essential to improve this technique, in particular by optimizing the formulation of the liquid phase.

Our approach is to decouple these different phenomena, using two-dimensional flow model devices, at the micro- or millifluidic scale. Their transparency allows us to visualize the structure of the flowing foam and to relate it to its macroscopic properties. Various surfactants and additives are systematically tested to investigate the ability of our devices to screen them, and the results obtained are systematically compared with those obtained in porous media.

Our first experiment, which studies the formation of bubbles during the passage of a gas/liquid co-flow in a microfluidic pore, highlights a formation hysteresis phenomenon explained by a hydrodynamic feedback process initiated by the downstream flow. Using numerical simulations, we also demonstrate the existence of a limit to the quality of foam that can be formed, linked solely to the pore geometry. Different surfactants are investigated, and these results are compared with measurements both in volume and in three-dimensional porous media.

Our second experiment studies the influence of an additive on this formation, in particular through the Marangoni effect it generates. A simple theoretical model is developed to account for these effects.

Finally, we describe a millifluidic setup for observing and studying foam destruction by bubble coalescence. We show that the results vary drastically depending on the surfactants and additives used.

KEYWORDS

Foam, flow, porous medium, microfluidic, millifluidic, hysteresis, hydrodynamic instability

