Stabilité des suspensions fortement aérées

Benjamin Haffner

▶ **To cite this version:**

Benjamin Haffner. Stabilité des suspensions fortement aérées. Génie civil. Université Paris-Est, 2015. Français. NNT : 2015PESC1095 . tel-01234314

HAL Id: tel-01234314
https://pastel.hal.science/tel-01234314

Submitted on 26 Nov 2015

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.

THÈSE DE DOCTORAT DE
l'UNIVERSITÉ PARIS-EST

Spécialité

Physique

École Doctorale Sciences, Ingénierie et Environnement

Présentée par

Benjamin HAFFNER

Pour obtenir le grade de

Docteur

Stabilité des mousses de suspension

Soutenue le 18 septembre 2015 devant le jury composé de :

Mme Véronique SCHMITT	Présidente du jury
Mme Isabelle CANTAT	Rapportrice
Mme Emmanuelle RIO	Rapportrice
Mme Tamar SAISON	Examinatrice
M. Yacine KHIDAS	Co-Encadrant
M. Olivier PITOIS	Directeur de thèse

.

Nel mezzo del cammin di nostra vita mi ritrovai per una selva oscura, ché la diritta via era smarrita.

La Comedìa

Remerciements

Quatre saisons à Navier

Premier printemps, en forme de stage,
    Qui aurait pu me laisser coi
M'a appris un vieil adage
    Tourné dans ma tête mille fois

    L'été, sous le Soleil de Champs
Et ses 93 manips
    Pour mettre la Terreur en chant
Et la jouer depuis nos lippes

Déjà craquaient les feuilles mortes
    Sans faire brûler les feux de bois
Mais la mousse jusqu'à nos bottes
    Nous donnait de beaux résultats

    Alors qu'arrivent les flocons,
De ma thèse, se joue le trépas
    Derniers points tombés du camion
Le point final on le pose là.

Cette belle tranche de vie passée au laboratoire Navier fut à la fois ma dernière expérience d'étudiant et ma première tentative professionnelle. J'en garderai un souvenir saisissant. Si j'ai appris énormément : scientifiquement, sur le travail en équipe, sur la vie d'un laboratoire et sur tant d'autres choses, ces années ont été aussi pour moi l'occasion de belles rencontres. Je veux aujourd'hui remercier ceux avec qui j'ai travaillé, interagi ou simplement sympathisé.

Mes premiers remerciements vont aux chercheurs qui ont composé mon jury, Isabelle Cantat et Emmanuelle Rio qui ont accepté de rapporter ce travail, Tamar Saison et Véronique Schmitt comme examinatrices. Je remercie François Chevoir qui m'a accueilli au laboratoire pour mon stage de master et pour ma thèse.

Je suis très reconnaissant à Olivier, grâce à qui j'ai beaucoup appris, merci pour ta direction très impliquée, tes leçons de mousses et de vie toujours empreintes d'un franc pragmatisme. J'ai pu profiter pendant plus de trois ans de cet encadrement souple et ferme à la fois -comme dit la pub pour le fromage- qui m'a fait grandir à un âge déjà assez avancé. Je remercie sincèrement Yacine qui a apporté la minutie et le perfectionnisme indispensables à ce travail, je me souviendrai de tes conseils pertinents et des bons moments passés en salle de manip à vérifier les tailles des bulles ! Merci à vous deux, pour cette thèse, je suis heureux de voir que la "recherche pour tous" a donné naissance à un petit rejeton de plus, un enfant des mousses qui aujourd'hui s'en va défendre les valeurs tricolores outre-Manche.

Je tiens également à remercier Guillaume Ovarlez qui un jour, alors que je suivais un magistral cours de rhéologie dudit précepteur, m'a communiqué l'adresse du laboratoire pour me faire entrer dans le saint des saints de la matière molle. Merci à Xavier pour son écoute et son humour. Je remercie Élise pour l'encadrement de mon stage de master et pour son choix pléthorique de sujets de séminaire. Je remercie Florence pour sa bonne humeur et sa gentillesse.

Merci à David qui a fait preuve d'une réelle patience lors de la "mise en place du dispositif expérimental de drainage de mousses de suspension". Merci à Laurent et à Romain pour leurs cours de niçois, merci à Cédric et à Pascal. Merci à Carmen, Nathalie et Sandrine pour leur dévouement et leur efficacité face aux commandes, aux réservations et aux remboursements divers...

Je remercie Yves pour m'avoir fait partager sa science sur l'andouille de Guéméné et Christophe pour la vision originale qu'il a sur les machines à café. Merci Anne & James du BDS de l'école de Ponts. Et, je regretterai beaucoup la séance d'inscription du mois de novembre à l'école doctorale.

Je remercie les doctorants -dont beaucoup sont docteurs aujourd'hui- dans l'ordre chronologique qui va du plus fossile au moins amorti : Thibaud avec qui je compte bien rester ami pour quand il sera président de la république, Antoine qui est revenu chez nous, Florian qui a déguisé ses euros en zlotys sans y perdre au change, Régis dont le

mariage restera un excellent moment, Claire qui sait bien s'amuser, Manu pour sa passion des frites qu'il partage avec moi, Linh qui est une jeune maman, Michel pour sa vision ésotérico-scientifico-philosophique de l'humanité, Lucie pour sa passion pour les fromages. A cela il faut ajouter ceux de ma génération, Mamadou avec qui j'ai partagé un moniteur d'auto-école prof de physique, Ch'Picard qui est mon plus ancien camarade de Navier, Misselotte avec qui j'ai fait d'inoubliables parties de DCDL, Double M qui m'a appris bon nombre d'expressions auvergnates, je m'efforce aujourd'hui de les diffuser autant que possible mais ce n'est pas bien simple de laisser pédaler un mérinos dans une machine à laver. Mention particulière à mon Binôme de bureau, de manip, de badminton, de bouillon belge... avec qui j'ai vécu en bonne intelligence ces trois dernières années. J'en viens maintenant aux plus jeunes, Ilham indissociable de Yousra, toutes deux animées d'une réelle gentillesse, Simon qui sera bientôt le plus ancien du labo, Alizée qui a enfin réglé ses galères d'appartement, Remy qui comme moi doit se souvenir de cette conférence en Grèce façon Club Med, Ferjenni avec qui je partage certaines visions paranoïaques et Lapin-Pamplemousse-Bélier qui un jour m'apprendra à surfer en portant la mèche et la gomina. Je termine cette série de remerciements par les enfants, Michel qui à force de travail finira par gagner Top Chef, Blandine et François qui perpétuent la tradition des mousses, ce savoir-faire qu'on nous envie par-delà l'océan et qui vivra encore de longues années.

Je remercie également ceux dont l'amitié est plus vieille que cette thèse, JP avec qui je termine synchronisé alors qu'on a quasi débuté la physique en même temps sur les bancs de la seconde 4. Les amis de la fac, JC pour son érudition sur l'histoire du syndicalisme, petit Poulet qui a toujours été là, Émilie qui bientôt dessinera tous les bijoux de la maison Cartier, Adrien mon complément énergétique indispensable à une vie épanouie et Camille la chenille qui depuis longtemps s'est transformée en papillon. Un immense merci à Antoine avec qui je refaisais déjà le monde dans la cour de l'école maternelle.
Merci à la cellule familiale, à Tristan mon frère préféré et Chloé sa femme préférée. Merci Camille pour une montagne de chose et à Gérard pour une autre de ces montagnes. Merci à Virginie qui sait être là et à Claire qui sait parler de théâtre ! Merci aussi à la jeune progéniture qui agrandit cette famille d'année en année : Matteo, Rebecca, Noémie, Alessandra, Antoine. Merci à mes parents.

En aparté, je ne peux m'empêcher de me permettre une pensée émue pour mon orchestre de pousse-seringues.

Table des matières

Introduction **9**

1 État de l'art **13**
1.1 Les mousses aqueuses . . . 14
1.1.1 Influence de la fraction volumique gazeuse . . . 14
1.1.2 Structure et géométrie . . . 15
1.1.3 Répartition du liquide . . . 18
1.1.4 Pression osmotique . . . 21
1.1.5 Un mécanisme de vieillissement : le drainage . . . 24
1.1.6 Autres mécanismes de vieillissement . . . 32
1.2 Les mousses et les grains . . . 36
1.2.1 Mousses chargées en particules . . . 36
1.2.2 Éléments de physique des milieux granulaires . . . 40

2 Matériels et méthodes **47**
2.1 Exigences expérimentales et matériel . . . 48
2.1.1 Paramètres d'étude . . . 48
2.1.2 Description du système . . . 48
2.2 Production des échantillons et mesures . . . 49
2.2.1 Étapes de production . . . 49
2.2.2 Difficultés expérimentales . . . 57
2.2.3 Mesures . . . 58
2.3 Schéma récapitulatif . . . 61

3 Rétention **65**
3.1 Introduction . . . 66
3.2 Des particules dans la mousse . . . 67
3.2.1 Observation des échantillons . . . 67
3.2.2 Profil de mousses chargées . . . 68
3.3 Rétention de particules . . . 69
3.3.1 Modèles d'empilement de billes . . . 73
3.3.2 Empilement dans un bord de *Plateau* modèle . . . 81
3.3.3 Les zones de rétention dans la mousse . . . 86
3.3.4 Modélisation . . . 89
3.4 Rétention capillaire . . . 93
3.4.1 Rétention de liquide : le rôle de φ_p . . . 93

3.4.2 Échantillons drainant très peu : le rôle de λ . . . 95
3.5 Conclusion . . . 97

4 Vitesse de drainage **99**
4.1 Introduction . . . 100
4.2 Régime 1 : Effet sur la viscosité, $\lambda < \lambda_I$ . . . 102
4.2.1 Résultats . . . 102
4.2.2 Discussion sur la viscosité effective en fonction de λ . . . 105
4.2.3 Comparaison avec les compacités des vertex et des bords de *Plateau* 108
4.2.4 Ajustement de la viscosité pour tous les φ_p . . . 110
4.2.5 Conclusion . . . 111
4.3 Régime 2 : Capture individuelle, $\lambda_I < \lambda < \lambda_{II}$ . . . 112
4.3.1 Description semi-empirique de la capture individuelle . . . 112
4.3.2 Modélisation de la transition de capture individuelle . . . 116
4.3.3 Conclusion . . . 120
4.4 Régime 3 : Vers l'exclusion des particules, $\lambda > \lambda_{II}$ . . . 122
4.4.1 Limite des particules exclues du réseau . . . 122
4.4.2 Description aux grandes valeurs de λ . . . 124
4.4.3 Conclusion . . . 126
4.5 Vertex chargé d'une unique particule . . . 127
4.5.1 Préambule . . . 127
4.5.2 Mesure à l'échelle de la mousse . . . 128
4.5.3 Modèle de surface spécifique des mousses non chargées . . . 129
4.5.4 Modèle de surface spécifique des mousses chargées . . . 132
4.5.5 Comparaison micro, macro et numérique . . . 134
4.6 Conclusion . . . 136

Conclusion générale **137**

Annexes **139**
Annexe A : Production de bulles de petit diamètre . . . 139
Annexe B : Erreur de mesure . . . 141
Annexe C : Mesures de la résistance hydraulique à l'échelle d'un vertex . . . 143
Annexe D : Simulations numériques de la résistance hydraulique des vertex . . . 145

Introduction générale

Les mousses sont des milieux complexes constituées de nombreuses bulles empilées. Contrairement à des bulles isolées les unes des autres, elles ne sont pas sphériques mais déformées, collées entre-elles et partagent de la surface de film. Cet état de la matière donne des propriétés très singulières aux mousses, en particulier, les bulles s'organisent de façon à minimiser l'énergie que le système doit fournir lors de la création d'interface. Cet effet conduit à des lois régissant l'agencement et la structure que prennent les bulles, elles ont été énoncées par *Joseph Plateau* à partir d'observations expérimentales en 1873 [1].

Ces bulles structurées se retrouvent dispersées dans une phase continue qui peut être de différentes natures. Par exemple, dans le cas le plus classique, il s'agit d'une solution aqueuse de tensioactifs, ces molécules amphiphiles assurent la stabilité des films. Les tensioactifs qui stabilisent les films peuvent être de plusieurs types : chargés (ionique) ou non chargés (stérique), ils se placent à l'interface et assurent sa stabilité. A l'inverse, il existe certaines molécules qui se caractérisent par leurs propriétés antimoussantes, citons l'huile ou l'alcool. Cependant, la phase continue de la mousse peut être composée d'autre chose que du liquide, elle peut être solide ou de nature complexe : un gel, une suspension, une émulsion ou même une mousse.

La complexité des mousses réside en particulier dans leur structure multi-échelles, ils coexistent en effet plusieurs échelles de longueur : on peut citer les bulles qui ont assez couramment un diamètre de l'ordre du millimètre, les canaux qui composent le réseau interstitiel de la mousse avec des largeurs de l'ordre de 100 μm, enfin l'épaisseur des films est souvent prise à 10 nm [2].

On remarque que la mousse possède également plusieurs échelles de temps : le drainage dont le moteur est la différence de densité entre la phase interstitielle et le gaz contenu dans les bulles conduit à l'assèchement de la mousse en quelques minutes alors que le mûrissement, disproportionnement résultant de l'échange de gaz entre les bulles survient au bout de plusieurs heures.

Les mousses ont aussi des comportements mécaniques particuliers, elles sont à mi-chemin entre les liquides et les solides. Elles se déforment élastiquement en-dessous d'une certaine contrainte seuil et se mettent en écoulement au-delà. C'est un matériau visco-élastique, son origine visqueuse vient de la dissipation entre les films alors que l'élasticité résulte de la déformabilité des bulles de gaz. On voit ici que le comportement macrosco-

pique s'explique par ce qui se passe aux échelles microscopiques : l'échelle des films et l'échelle des bulles notamment.

Ces mécanismes complexes qui interviennent dans la physique des mousses rendent difficile le découplage des effets et compliquent l'étude de ces systèmes qui sont pourtant au cœur de nombreux procédés industriels. On les retrouve notamment dans les domaines des cosmétiques, de l'agroalimentaire, de l'industrie minière ou pour la décontamination de cuves radioactives [3]. Pour la dépollution, les grandes aires d'interface par rapport au faible volume de liquide permettent de traiter des quantités d'eau bien moindres.

Elles sont également très présentes dans les matériaux de construction : les plâtres, les ciments, les céramiques. Elles permettent d'alléger considérablement, facilitant ainsi leur manipulation, de plus, l'ajout d'air donne un pouvoir isolant très recherché dans le contexte actuel du développement durable [4–7].

De nombreuses mousses utilisées dans l'industrie sont au départ de leur processus de fabrication des mousses de suspension non figées, c'est par exemple le cas des plâtres et des ciments. Le vieillissement de ces matériaux pendant leur "vie" liquide peut conduire à la dégradation ou même à la destruction de l'échantillon, notamment par drainage. Il y a alors un intérêt certain à comprendre comment les mousses de suspension drainent. Ce mécanisme de vieillissement a été très étudié pour les mousses liquides mais beaucoup moins pour les mousses de suspension, seules quelques études de systèmes peu contrôlés ont été menées sur ce sujet [8, 9]. Au final, le rôle des particules dans les dynamiques de drainage est mal connu alors que des études à l'échelle microscopique permettent de nouveaux projets [10].

Une des meilleures piste conduisant à la stabilisation de la mousse par des suspensions réside dans l'étude de la capture de ces particules par le réseau interstitiel : par capture individuelle [11] et par capture collective [12].
C'est la voie qui a été empruntée pour l'aboutissement de cette thèse. L'étude du drainage a été menée pour le cas des particules non piégées, celui des particules piégées individuellement et celui des particules piégées collectivement. Ces différentes situations conduisent à de la rétention de particules une fois le drainage achevé, cet effet est également traité dans ce travail.

Le premier chapitre concerne la bibliographie des mousses aqueuses, on s'intéresse en particulier à la structure des mousses et aux mécanismes de mûrissement. Nous discutons également des travaux déjà menés sur les interactions entre les mousses et les suspensions de particules. Cet état de l'art est complété d'éléments de physique des milieux granulaires.

Le second chapitre est consacré au système expérimental. On y traite des méthodes utilisées pour la production des échantillons de mousse de suspension. Les différentes étapes de fabrication comme les mesures mises au point pour la caractérisation sont détaillées.

Les deux chapitres qui suivent traitent des résultats de la thèse : ceux de la rétention

de particules dans le réseau de la mousse et ceux des vitesses de drainage :

Premièrement, les mesures de la quantité de suspension/particules retenues dans la mousse lorsque l'échantillon a atteint son équilibre renseignent sur la capture des particules au cours du drainage. Dans cette partie, nous faisons apparaitre les paramètres de contrôle qui pilotent la rétention, il s'agit du rapport d'aspect qui compare la taille des particules de la suspension à celle des constrictions du réseau de la mousse et de la fraction volumique des particules. Les résultats que nous obtenons permettent la construction d'un diagramme pour la stabilité des échantillons.

La seconde partie est dédiée aux mesures des vitesses de drainage pour lesquelles trois régimes sont mis en évidence. Pour la cinétique de drainage, comme pour la rétention, le rapport taille de particules/taille de constrictions et la fraction volumique granulaire apparaissent comme essentiels. Pour commencer, nous apportons une modélisation pour les cas des particules assez petites pour circuler librement dans le réseau. Ensuite, pour des particules plus grosses, nous proposons un modèle de capture individuelle par le réseau de la mousse, il est déduit des mesures de rétention de la première partie. Enfin, le dernier régime survient lorsque les particules sont si grosses qu'elles sont exclues du réseau, nous décrivons ce comportement.

Chapitre 1

État de l'art

Sommaire

1.1 Les mousses aqueuses 14
1.1.1 Influence de la fraction volumique gazeuse 14
1.1.2 Structure et géométrie 15
1.1.3 Répartition du liquide 18
1.1.4 Pression osmotique 21
1.1.5 Un mécanisme de vieillissement : le drainage 24
1.1.6 Autres mécanismes de vieillissement 32
1.2 Les mousses et les grains 36
1.2.1 Mousses chargées en particules 36
1.2.2 Éléments de physique des milieux granulaires 40

1.1 Les mousses aqueuses

1.1.1 Influence de la fraction volumique gazeuse

Une mousse est un milieu divisé : une dispersion de bulles de gaz dans le liquide qui constitue sa phase continue. Les bulles s'organisent et forment le réseau qui contient le liquide. Les caractéristiques de ce réseau vont donner à la mousse certaines de ses propriétés. A titre d'exemple, les tailles typiques du réseau ou les conditions de mobilité aux parois influencent fortement l'écoulement du liquide [13].

Il est à noter que la géométrie du réseau interstitiel est très dépendante de la fraction volumique gazeuse Φ (voir figure 1.1) avec laquelle nous pouvons distinguer trois types de dispersion : les mousses à proprement parler, sèches et humides, et les liquides bulleux.

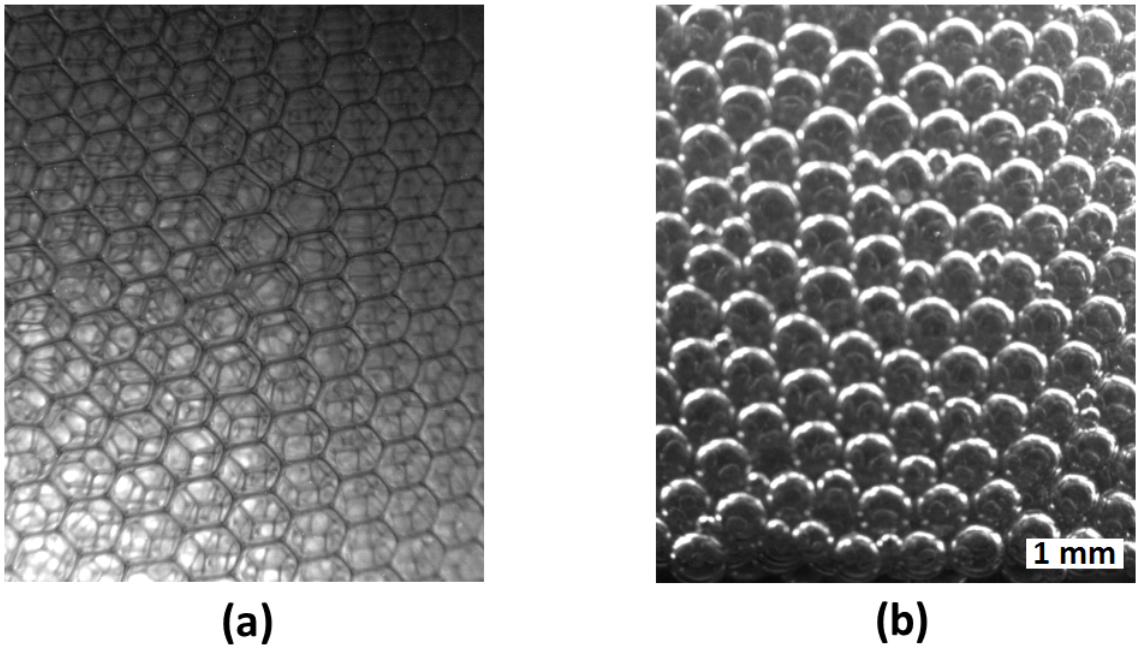


FIGURE 1.1 – Image de mousses en paroi. (a) Mousse avec $\Phi > 0,99$, la plupart du liquide se trouve dans les canaux entre les bulles. (b) Mousse avec $\Phi \approx 0,85$, les canaux deviennent beaucoup plus gros et les bulles sont d'avantage sphériques.

Les liquides bulleux concernent le cas où $\Phi \lesssim 0,64$, les bulles sont en suspension dans le liquide et sans contact. $\Phi \approx 0,64$ correspond à la compacité d'empilement aléatoire de sphères. A l'inverse, quand $0,64 \lesssim \Phi \lesssim 0,99$ les bulles se touchent, elle sont déformées et forment une mousse humide. Enfin, pour $\Phi \gtrsim 0,99$, les bulles prennent des formes de polyèdre et le réseau n'est plus que constitué de petits canaux qui contiennent la plupart du liquide de cette mousse sèche (voir la photo (a) de la figure 1.1).

Dans le cas le plus simple des bulles monodisperses, l'organisation du réseau obéit à certaines règles. La fraction volumique gazeuse a notamment un rôle dans l'organisation des bulles, son évolution donne lieu à un changement de structure. La taille des bulles

compte également, elle a un rôle sur la rétention de liquide des mousses à l'équilibre : de grosses bulles conduiront à une mousse très sèche alors que de petites bulles retiendrons beaucoup plus de liquide.
La compréhension de la structure microscopique d'une mousse facilite son étude macroscopique.

1.1.2 Structure et géométrie

Tension de surface

Les interfaces jouent un rôle considérable dans l'équilibre des mousses qui sont des milieux où coexistent deux fluides. En particulier, l'énergie de surface est engendrée par la tension superficielle entre ces deux fluides, elle trouve ses origines dans les interactions de van der Walls. D'un point de vu thermodynamique, pour deux fluides considérés non miscibles, l'énergie interne du système s'écrit :

$$dE = TdS - PdV + \gamma dA \tag{1.1}$$

Avec, T, S, P, V respectivement la température, l'entropie, la pression, le volume. Quant à γdA, il représente le travail à fournir pour augmenter l'interface de dA. En écrivant l'enthalpie libre associée au système, on obtient :

$$dG = VdP - SdT + \gamma dA \tag{1.2}$$

La tension de surface associée aux deux fluides s'exprime alors :

$$\gamma = \left(\frac{\partial G}{\partial A}\right)_{T,P} \tag{1.3}$$

Mécaniquement, elle apparaît comme la force qui s'oppose à l'augmentation d'interface séparant deux fluides. Le travail élémentaire dW nécessaire à l'augmentation de surface dA d'une interface rectangulaire de côté L (schéma de la figure 1.2) s'écrit :

$$dW = \gamma dA = \gamma L dx = F dx \tag{1.4}$$

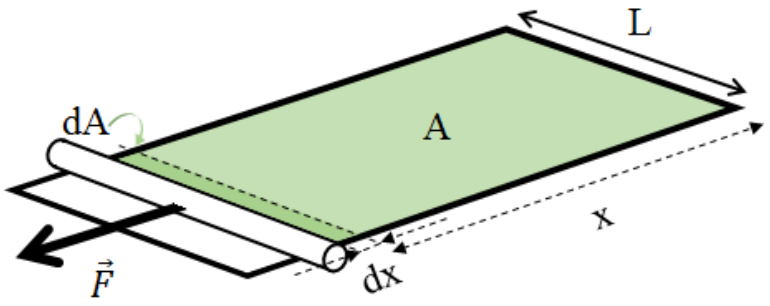


FIGURE 1.2 – Force nécessaire pour augmenter l'interface entre deux fluides.

Dimensionnellement, la tension de surface est une force par unité de longueur (également une énergie par unité de surface). Pour une mousse aqueuse : $0,03\ N.m^{-1}$ est une valeur typique de γ.

Lois de *Plateau*

Il a été observé [1] puis démontré [14, 15] que pour des mousses sèches, les minimisations énergétiques poussent les bulles à s'arranger selon certaines règles : les lois de *Plateau*.

Selon lesquelles la surface des films de savon ne présente pas de singularité, la courbure moyenne d'une portion de bulle est supposée uniforme sur toute la portion considérée. De plus, les films se rencontrent toujours aux arêtes trois par trois avec un angle $\arccos(-1/2) = 120°$ formant les canaux que l'on appelle bords de *Plateau*. Ces bords de *Plateau* se rencontrent eux-même quatre par quatre sous un angle $\arccos(-1/3) \approx 109,47°$ pour former des vertex aussi appelés nœuds ou encore jonctions (voir figure 1.3).

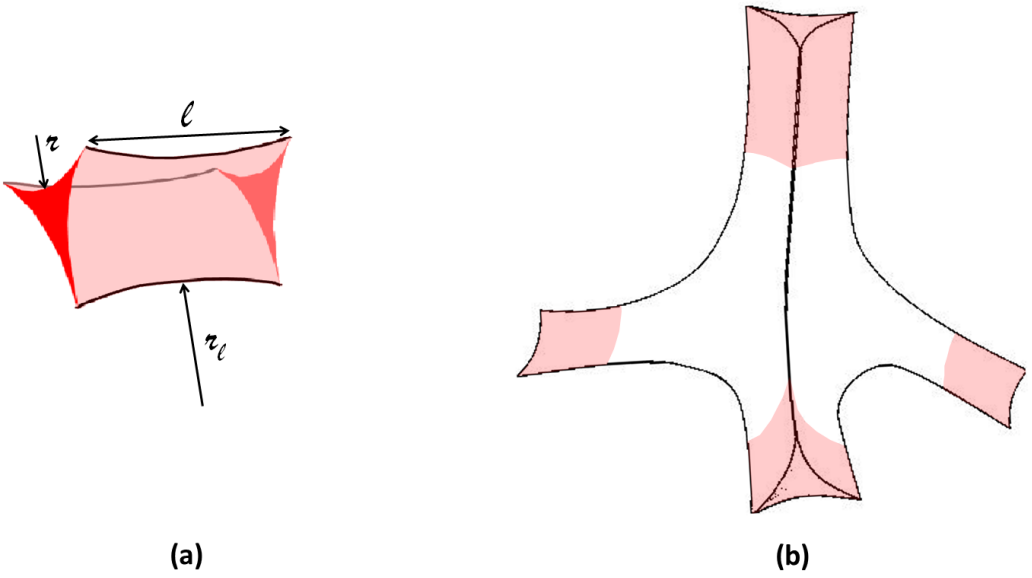


FIGURE 1.3 – (a) Schéma d'un bord de *Plateau*. (b) Schéma d'un vertex prolongé de quatre bords de *Plateau* en rose.

Mousses cristallisées

En considérant des mousses ne présentant qu'une unique taille de bulles, nous pouvons noter qu'elles s'organisent en cristal, dont le type va dépendre de Φ et, pour des mousses sèches ou peu humides, les bulles tendent vers un empilement cubique centré (cc). Lorsque la proportion de liquide augmente, on observe expérimentalement un changement de structure pour $\Phi = 0,937$, les bulles forment alors un empilement cubique à faces centrées (cfc) [16]. Cette transition de structure, reliée à la minimisation de l'énergie de surface du système a été aussi montrée numériquement [2].

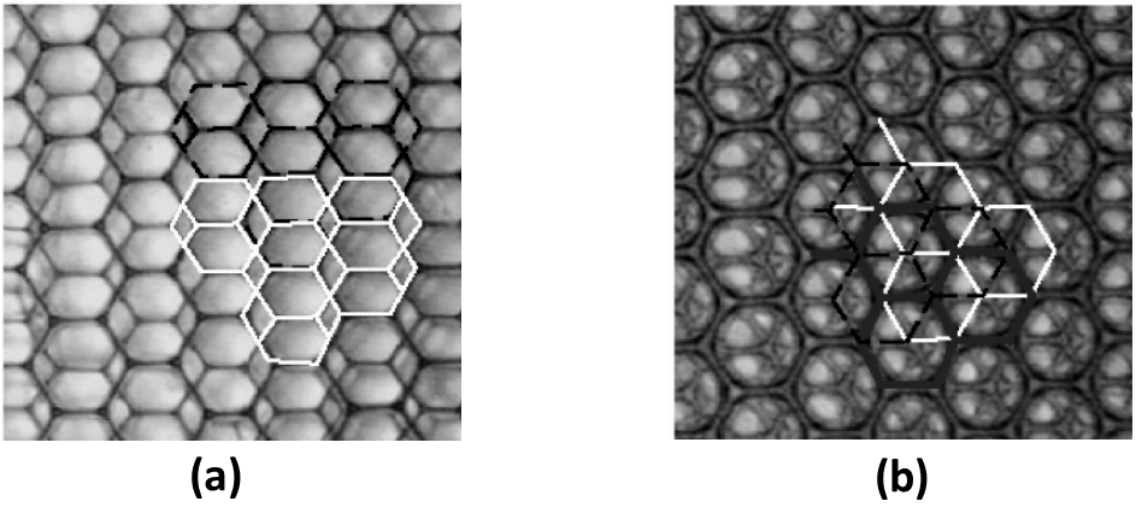


FIGURE 1.4 – Transition de structure de cc ((a), $\Phi = 0,992$) à cfc ((b) $\Phi = 0,898$). Bulles d'environ 300 μm de diamètre. Extrait de [16].

Mousse cristallisée de type cubique centré : cellule de *Kelvin*

Un empilement de cellules de Kelvin [17] (structure cubique centré) peut-être utilisé pour modéliser des mousses monodisperses suffisamment sèches. La géométrie relativement simple de la cellule de Kelvin facilite beaucoup l'étude du réseau interstitiel, elle se compose de 36 arêtes de longueur l, 8 faces hexagonales et 6 faces carrées (voir figure 1.5).

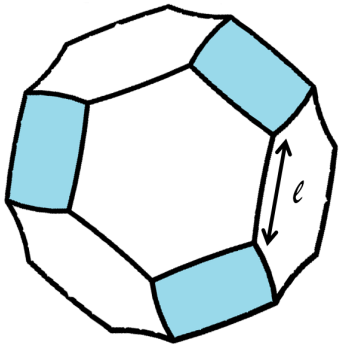


FIGURE 1.5 – Cellule de *Kelvin*, les 36 arêtes sont de longueur l.

La longueur l qui est la distance entre les centres de deux vertex correspond à un bord de *Plateau* simplifié. Dans la réalité, les bords de *Plateau* présentent deux rayons de courbure r et r_l (voir figure 1.3 (a)). Ces rayons sont imposés par la pression de *Laplace* : $P_b - P_{liq} = \frac{\gamma}{\bar{r}}$ avec P_b la pression dans la bulle, P_{liq} la pression dans le liquide et $\frac{1}{\bar{r}} = \frac{1}{r} + \frac{1}{r_l}$. Cependant, dans la limite des mousses sèches, on a $r/r_l \ll 1$ il vient alors : $\frac{1}{\bar{r}} \approx \frac{1}{r}$ ce qui constitue l'approximation des bords de *Plateau* à un unique rayon de courbure.

Le volume d'une cellule de *Kelvin* s'écrit :

$$V_K = 8\sqrt{2}l^3 \tag{1.5}$$

La surface de la cellule se calcule ainsi :

$$S_K = 8\frac{3\sqrt{3}}{2}l^2 + 6l^2 \tag{1.6}$$

Tandis que le diamètre de la sphère équivalente de même volume s'exprime comme :

$$D_b = 2l\left(\frac{6\sqrt{2}}{\pi}\right)^{1/3} \approx 2,78l \tag{1.7}$$

Le bord de *Plateau* de la cellule de Kelvin ne présentant qu'un seul rayon de courbure r, sa section est constante et constitue un petit triangle concave dont la section vaut :

$$S_K^{bdP} = \left(\sqrt{3} - \frac{\pi}{2}\right)r^2 = \delta_a r^2 \tag{1.8}$$

Le volume du bord de *Plateau* s'exprime alors :

$$V_K^{bdP} = \delta_a r^2 l \tag{1.9}$$

Ce qui nous permet d'écrire, en considérant que 3 bulles se partagent le même bord de *Plateau* :

$$V_K^l = \frac{36}{3}\delta_a r^2 l \tag{1.10}$$

Et finalement d'écrire la fraction en gaz de la mousse de la façon suivante :

$$\varphi_K \approx \left(\frac{Vk}{Vk + V_K^l}\right) \tag{1.11}$$

Notons qu'il existe une structure plus complexe qui minimise d'avantage les surfaces pour les mousses sèches : la structure de *Weaire-Phelan* [2], elle utilise deux cellules de mêmes volumes : un dodécaèdre à faces pentagonales et un tétradécaèdre de deux faces hexagonales et douze faces pentagonales.
Pour la structure de *Weaire-Phelan*, la surface est très légèrement minimisée $(0,3\%)$ par rapport à la structure de *Kelvin*.

1.1.3 Répartition du liquide

De façon générale, le liquide d'une mousse se trouve dans les trois éléments qui forment son réseau : les films, les bords de *Plateau* et les vertex. Nous allons estimer les volumes de ces trois contributions.

Les films

Le volume de liquide à l'intérieur des films est supposé négligeable. Le liquide contenu dans les bords de *Plateau* étant en dépression par rapport à celui des films, il y a pompage du liquide des films vers les bords de *Plateau*. Les films diminuent d'épaisseur jusqu'à s'équilibrer avec la pression hydrostatique. La pression de disjonction concerne l'interaction entre deux films et est liée à la nature des tensioactifs qui les stabilisent, elle a des

origines multiples, électrostatique et stérique notamment [18]. L'épaisseur typique des films d'une mousse sèche vaut de $e_f \approx 10\ nm$, elle aussi dépend des tensioactifs utilisés.

Un calcul d'ordre de grandeur permet de justifier que l'on puisse négliger la contribution du liquide contenu dans les films. On peut en effet dire que le volume des films est $\approx e_f S_K \approx e_f l^2$ alors que le volume des bords de *Plateau* est de l'ordre de $r^2 l$, la contribution des films est donc faible tant que $e_f l / r^2 \ll 1$.
En utilisant les équations 1.7 et 1.19, on vérifie que pour des bulles de 100 μm et $\Phi = 0,9$, on a bien $e_f l / r^2 \approx 10^{-3}$

Les bords de *Plateau*

La géométrie des bords de *Plateau* dépend fortement de la fraction gazeuse de la mousse. Nous avons notamment remarqué sur la photo (a) de la figure 1.1 que dans le cas d'une mousse sèche, ils sont très allongés. Pour les mousses humides, les bords de *Plateau* sont bien plus courts, ils sont également plus larges, en réalité, la plupart du liquide se trouve dans les vertex (photo (b) de la figure 1.1).

A mesure que Φ diminue, la longueur des bords de *Plateau* réduit. Il est possible de prendre en compte cette diminution.
Soit l^r la longueur du bord de *Plateau* réduit :

$$l^r = l - \xi r \tag{1.12}$$

Dans la littérature, nous trouvons plusieurs valeurs de ξ, on peut citer $\xi = 1,588$ [19], $\xi = 1,50$ [20], $\xi = 2,31$ [21].

Ces valeurs constantes ne prennent pas en compte le raccordement à $\Phi = 0,74$ quand $l^r = 0$. Un ajustement de ξ proposé dans [22] considère cet effet :

$$\xi(\Phi) = 52,5\,(1-\Phi)^2 - 13,2\,(1-\Phi) + 2,24 \tag{1.13}$$

Ce qui permet à présent d'estimer la proportion de liquide contenu dans les bords de *Plateau*. Premièrement en écrivant la longueur d'un bord de *Plateau* avec les équations 1.7 et 1.19 (relation entre r, D_b et Φ détaillée plus bas) :

$$l^r = (0,36 D_b) - \left(\xi \times 0,62\,(1-\Phi)^{0,45}\, D_b\right) \tag{1.14}$$

Ensuite, en exprimant la section d'un bord de *Plateau* avec les équations 1.8 et 1.19 :

$$S^{bdP} = \delta_a \left(0,62\,(1-\Phi)^{0,45}\, D_b\right)^2 \tag{1.15}$$

La proportion de liquide contenu dans les bords de *Plateau* s'exprime alors :

$$\frac{12 \times S^{bdP} \times l^r}{(1-\Phi)\,\pi\,(D_b^3/6)} = \frac{27,68 \times \delta_a\,(1-\Phi)^{0,9}\left(0,36 - \xi \times 0,62\,(1-\Phi)^{0,45}\right)}{\pi\,(1-\Phi)} \tag{1.16}$$

Cette dernière équation qui ne dépend que de Φ est tracée sur le graphique de la figure 1.6.

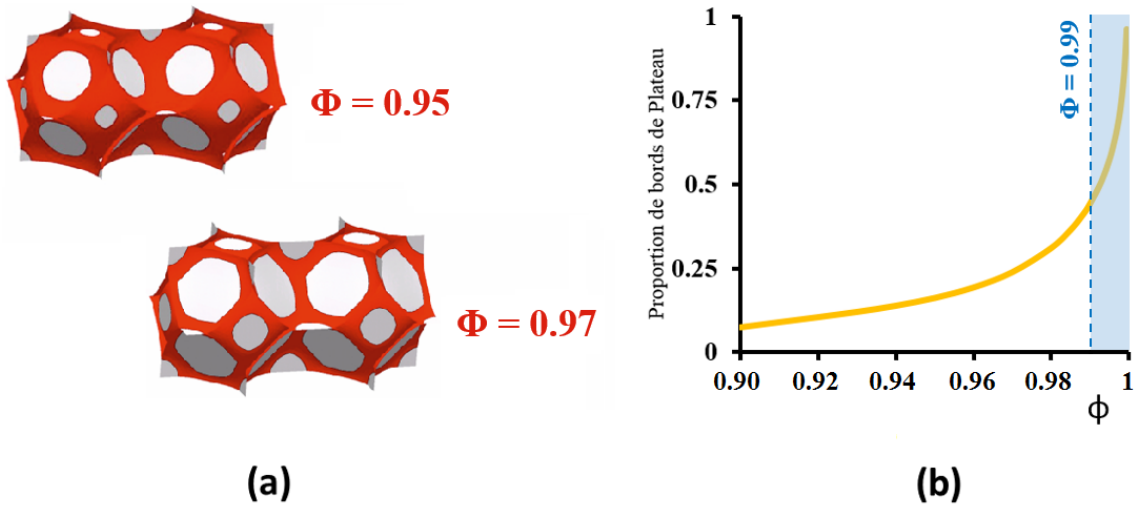


FIGURE 1.6 – (a) Cellule de *Kelvin* avec réseau liquide en rouge pour deux fractions en gaz. Extrait de [22]. (b) Proportion de liquide contenu dans les bords de *Plateau* en fonction de la fraction en gaz, la contribution des films est négligée.

Nous disposons d'autre part d'une expression, trouvée numériquement, qui relie la fraction en gaz à la fois à l et r [23].

$$1 - \Phi = \delta_1 \left(\frac{r}{l}\right)^2 + \delta_2 \left(\frac{r}{l}\right)^3 \tag{1.17}$$

Avec $\delta_1 = 0,171$ et $\delta_2 = 0,2$. Cette équation est valable pour $\Phi > 0,9$, en plus des bords de *Plateau*, la contribution des vertex est prise en compte. Pour les mousses sèches on pourra considérer que (avec l'équation 1.7) :

$$1 - \Phi \approx \delta_1 \frac{r^2}{l^2} \approx 1,32 \frac{r^2}{D_b^2} \tag{1.18}$$

L'expression 1.17 est ajustable par la fonction puissance suivante [22] :

$$\frac{r}{D_b} = 0,62\,(1 - \Phi)^{0,45} \tag{1.19}$$

Les vertex

Une relation de proportionnalité entre le volume d'un vertex (V_{vertex}) et r a été proposée en estimant le volume interstitiel d'un empilement (cfc) de sphères [23] :

$$V_{vertex} = 0,31 r^3 \tag{1.20}$$

V_{vertex} s'estime aussi en calculant le volume interstitiel d'un tétraèdre formé de quatre billes au contact (voir figure 1.7 billes de rayon r_{vertex}), on obtient [24] :

$$V_{vertex} \approx 0,21 \times r_{vertex}^3 \tag{1.21}$$

FIGURE 1.7 – (a) Tétraèdre formé de quatre billes. (b) Volume interstitiel formé des quatre billes.

Pour les mousses plus humides, lorsque le liquide est majoritairement contenu dans les vertex, on peut estimer son volume ainsi :

$$V_{vertex} = \frac{\pi D_b^3}{6n} \frac{1-\Phi}{\Phi} \tag{1.22}$$

Avec n le nombre de vertex que l'on compte pour chaque bulle.
En reportant 1.19 dans 1.22 et en comptant 6 vertex par bulles, on obtient :

$$V_{vertex} \approx 0,36 \frac{(1-\Phi)^{-0,35}}{\Phi} r^3 \tag{1.23}$$

Lorsque $\Phi = 0,9$, nous avons : $V_{vertex} \approx 0,9r^3$. La comparaison de cette valeur avec $V_{vertex} = 0,31r^3$ montre combien les rayons de courbure des vertex sont dépendants de Φ.

1.1.4 Pression osmotique

La pression osmotique est défini comme le minimum de pression à exercer pour empêcher le passage d'un solvant d'une solution moins concentrée à une solution plus concentrée au travers d'une membrane semi-perméable.

Pour une mousse, le même phénomène se produit entre une solution moussante et la "solution" de bulle que constitue la mousse [25]. Elle a pour origines les interfaces entre les bulles. On remarquera que plus la mousse est sèche, plus la quantité d'interface est importante et plus la pression osmotique est grande, ce qui se traduit par le pompage du liquide par la mousse par succion capillaire.

En notant Π_0 la pression osmotique, le travail qu'il faut fournir pour extraire de la

mousse un volume dV_l de liquide est :

$$\Pi_0 dV_l = -\gamma dS_{int} \tag{1.24}$$

Avec γ la tension de surface liquide/gaz et S_{int} la surface totale de ses interfaces. En considérant le volume de gaz contenu dans la mousse V_g, on a :

$$d\left(1-\Phi\right) = d\left(\frac{V_l}{V_l+V_g}\right) = \frac{\Phi^2}{V_g} dV_l \tag{1.25}$$

On exprime ensuite la variation du volume liquide de la mousse en fonction de la variation de fraction gazeuse et, avec l'équation 1.24, on obtient une expression de la pression osmotique :

$$\Pi_0 = -\gamma \frac{dS_{int}}{V_g d\left(1-\Phi\right)} \Phi^2 \tag{1.26}$$

Lorsque les bulles ne créent pas de films entre elles, la pression osmotique est nulle. Inversement, quand la fraction en gaz augmente, quittant le régime des liquide bulleux et entrant dans le régime des mousses, les bulles créent de l'interface et se déforment de plus en plus jusqu'à prendre des formes de polyèdres aux grandes valeurs de Φ.

Mousses sèches

En supposant que pour une mousse sèche la pression osmotique peut être assimilée à la pression capillaire (la pression dans les bulles est prise égale à la pression atmosphérique), on a :

$$\Pi_0 = \frac{\gamma}{r} \tag{1.27}$$

En considérant la structure de Kelvin et en utilisant l'équation 1.18, on écrit :

$$\Pi_0 = 4\frac{\gamma}{D_b}\sqrt{\frac{0,33}{\left(1-\Phi\right)}} \tag{1.28}$$

Mousses humides

Pour les mousses plus humides, des travaux notamment numériques ont été menés pour raffiner l'expression de la pression osmotique [16]. Ils prennent en compte le raccordement de $\Pi_0 = 0$ à $\Phi = 0,74$ pour des mousses monodisperses :

$$\Pi_0 = 7,3\frac{2\gamma}{D_b}\frac{\left(\Phi(z=0)-\Phi\right)^2}{\sqrt{1-\Phi}} \tag{1.29}$$

L'expression de la pression osmotique pour les mousses humides et l'approximation faite pour les mousses sèches (équilibre avec la pression capillaire) sont tracées en fonction de Φ (voir figure 1.8).

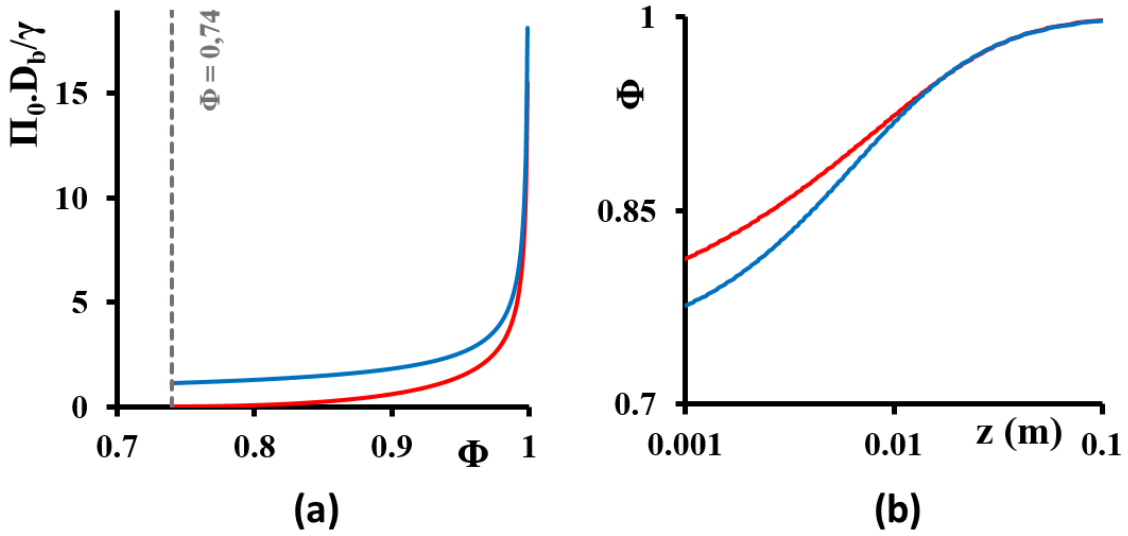


FIGURE 1.8 – (a) Pression osmotique réduite en utilisant l'équation 1.28 en bleu et l'équation 1.29 en rouge. Toutes deux sont en fonction de Φ. La verticale en gris est tracée à $\Phi = 0,74$. (b) Φ en fonction de l'altitude z en utilisant les deux expressions de Π_0.

On remarque que l'approximation donnée par l'équation 1.28 rejoint Π_0 donné par l'équation 1.29 lorsque la mousse est suffisamment sèche, soit à partir de quelques millimètres d'altitude.

1.1.5 Un mécanisme de vieillissement : le drainage

Le drainage concerne l'écoulement du liquide dans la mousse, durant ce processus, la phase interstitielle s'écoule à travers le réseau constitué par les bulles. Il est accompagné d'une remontée des bulles alors qu'il y a accumulation du liquide dans le fond de l'échantillon. Ce phénomène peut être comparé en beaucoup de points à l'écoulement d'un liquide dans un milieu poreux, cependant, il diffère puisqu'ici le réseau est "souple", il est déformé au passage du liquide et dépend lui-même de Φ qui n'est pas constant pendant le drainage.

Expérience de drainage libre

Supposons une mousse initialement à $\Phi(t=0) = \Phi_0$ qu'on laisse drainer librement, le drainage s'organise en plusieurs temps (voir figure 1.9).

$t < \tau$ Le liquide commence à s'écouler par gravité et assèche en premier le haut de la mousse alors que le bas reste à Φ_0. Le liquide des parties basses est drainé hors de la mousse mais dans le même temps remplacé par le liquide des parties hautes, la fraction gazeuse n'est alors pas modifiée. A mesure que le temps passe, ce premier régime de drainage assèche des parties de plus en plus basses dans la mousse. Le front de drainage vient séparer ces deux zones (partie asséchées et partie maintenues à Φ_0), quand il a atteint le bas de la mousse, on est à $t = \tau$.

$t > \tau$, c'est le second régime de drainage, il est plus lent et conduit à un état d'équilibre. En effet, lors du premier régime, la mousse s'est globalement asséchée, les bulles se sont déformées d'avantage et le réseau interstitiel s'est réduit, ce qui a changé les conditions initiales de la mousse et les conditions d'écoulement du liquide. En particulier, les bord de *Plateau* ont des rayons de courbure de plus en plus petits et le drainage dû à la gravité est en compétition avec la pression de *Laplace*. Lorsque les forces correspondant à ces gradients de pression sont à l'équilibre, le drainage cesse, il y a alors un gradient de Φ dans la hauteur de la mousse (grandes fractions en gaz en haut, faibles en bas) qui engendre un gradient de pression osmotique (pressions les plus importantes en haut et pression nulle en bas). A l'équilibre, à chaque altitude, la pression capillaire est compensée par la pression hydrostatique ($\rho g z$).

Cette explication ne tient pas compte du pied qui concerne la partie de la plus basse de la mousse (en contact avec le liquide si celle-ci est produite en venant buller avec un capillaire dans un bain de solution moussante). En réalité, il ne peut y avoir du liquide drainé hors de la mousse que si cette partie est à $\Phi \approx 0,74$ qui correspond à un empilement de bulles non déformées, des fractions moindres conduisent la mousse à pomper le liquide par succion capillaire. Cet effet peut donner lieu à un retard au drainage, temps pendant lequel le pied de la mousse s'humidifie jusqu'à atteindre $\Phi \approx 0,74$. La hauteur typique du pied est de l'ordre de : $\frac{\gamma}{\rho g D_b} = \lambda_c^2 / D_b$ en notant λ_c la longueur capillaire.

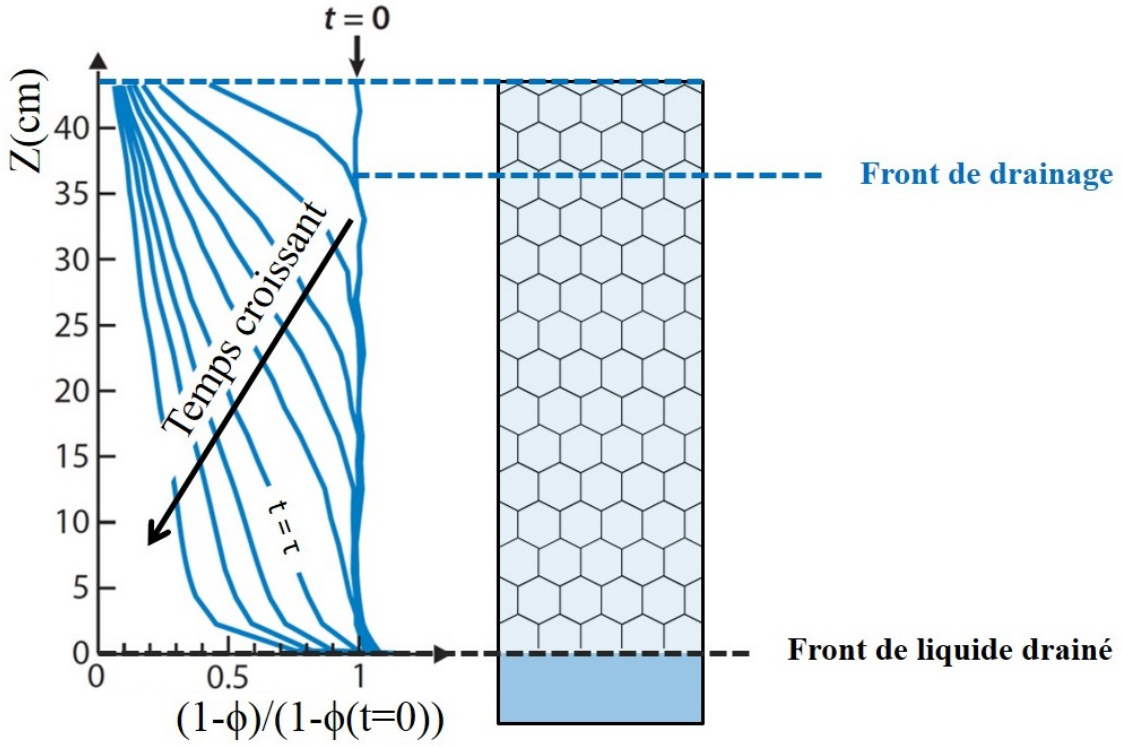


FIGURE 1.9 – Profil liquide d'une mousse ($D_b = 180\ \mu m$) à différent instants du drainage. On notera en particulier le profil à $t = \tau$ qui correspond à la transition entre les deux régimes. $t < \tau$ le front de liquide se déplace vers le bas de l'échantillon, séparant les parties asséchées des parties encore à la fraction gazeuse initiale. $t > \tau$ le front de drainage a atteint le bas de la colonne, la mousse s'assèche sur toute sa hauteur et atteint un équilibre [26, 27]. Données expérimentales extraites de [26].

Drainage forcé et perméabilité des mousses

Lors du drainage forcé, du liquide est injecté en haut de la colonne de mousse, il vient humidifier l'échantillon, d'abord par le haut puis rapidement un état stationnaire s'installe mettant la mousse à fraction gazeuse constante sur toute la hauteur de la colonne. Par ce biais, en plus d'avoir Φ uniforme dans la mousse, nous pouvons contrôler sa valeur.

Les premières études sur la perméabilité des mousses ont montré que pour le régime des mousses sèches, quand le réseau peut être assimilé à une assemblée de canaux, il y a une relation de proportionnalité entre $(1 - \Phi)$ et Q^2 [28] où Q est le débit avec lequel on injecte le liquide en haut de la colonne. Pour les mousses humides, ce sont les vertex qui dominent et qui imposent les conditions d'écoulement, dans ce cas une relation de proportionnalité entre $(1 - \Phi)$ et $Q^{3/2}$ a été remarquée [23]. Ces lois d'échelle ne tiennent notamment pas compte de la nature des tensioactifs [29].

Des travaux plus récents (*Pitois et al.* [30])ont révélé la complexité de la variation de perméabilité avec la fraction gazeuse. Des mesures réalisées à l'échelle d'un unique vertex ont apporté des données de perméabilité associées aux vertex. Jusqu'alors cette grandeur

était prise comme paramètre ajustable. Ces expériences ont montré que les modèles pour la perméabilité des mousses avaient sous-estimé la perméabilité des vertex.

D'autres travaux soulignent l'importance du changement de géométrie de la mousse lorsque la fraction en gaz diminue (*Lorenceau et al.* [31]) notamment en prenant en compte la diminution de la longueur des bords de *Plateau*.
A cet effet s'ajoute celui de la mobilité des interfaces, le graphique de la figure 1.10 donne les perméabilités réduites de mousses en fonction de la fraction liquide. Il apparaît que les exposant 3/2 et 2 ne suffisent pas à décrire la relation entre la perméabilité et la fraction liquide.

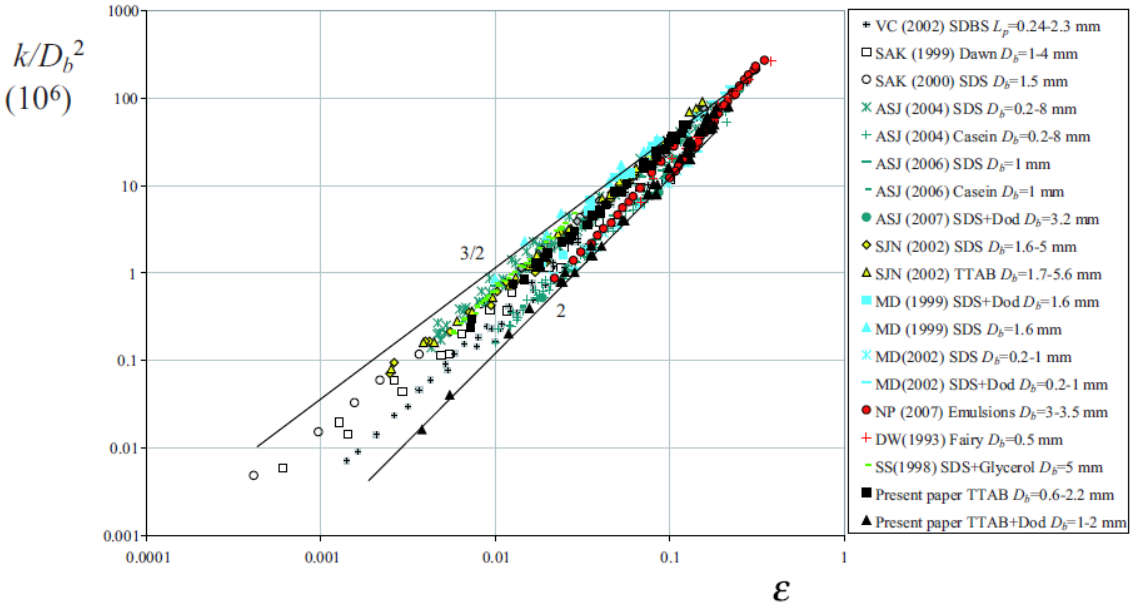


FIGURE 1.10 – Perméabilité réduite en fonction de la fraction liquide pour différentes formulations de tensioactif. Extrait de [31]

On remarque que la mobilité est un autre aspect essentiel dans la détermination de la perméabilité des mousses.
Pour des mousses aux interfaces rigides, *Rouyer et al.* [32] constatent que lorsque $\Phi < 0,6$, le modèle de *Carman-Kozeny* dans le cas d'un poreux constitué d'une assemblée de sphères rigides décrit bien l'écoulement. Pour les mousses plus sèches, une relation empirique est proposée :

$$K = \frac{(1-\Phi)^2}{1248\left(1-2,15\,(1-\Phi)+1,37\,(1-\Phi)^2\right)^2} D_b^2 \tag{1.30}$$

Pour les interfaces mobiles, le modèle de *Carman-Kozeny* reste satisfaisant pour $\Phi < 0,4$ alors que l'expression suivante décrit la perméabilité pour $\Phi > 0,6$:

$$K = \frac{(1-\Phi)^{3/2}}{1700\left(1-2,7\,(1-\Phi)+2,2\,(1-\Phi)^2\right)^2} D_b^2 \tag{1.31}$$

Écoulement en milieu poreux

On peut voir un milieu poreux comme un réseau constitué de nombreux canaux. Une simplification de ce problème consiste à considérer un écoulement de *Poiseuille* dans un unique pore.
On prend l'hypothèse d'un pore cylindrique de rayon r_c et de longueur l qui fait un angle Ψ avec la verticale e_z. On se place dans le cas d'un écoulement laminaire $R_e \ll 1$, avec R_e le nombre de *Reynolds*. L'équation de *Navier-Stokes* est ainsi réduite à l'équation de *Stokes* : les forces visqueuses s'opposent aux forces de pression. La vitesse moyenne $\bar{u}$ du liquide dans le pore est :

$$\bar{u}.e_\Psi = -\frac{\pi r^2}{\eta} K_c \left(\frac{dp}{dl} + \rho g \cos \Psi \right) e_\Psi \tag{1.32}$$

Où $\frac{dp}{dl}$ est le gradient de pression le long du capillaire, g l'accélération de la pesanteur. Le coefficient géométrique K_c dépend de la géométrie du pore, il vaut $\frac{1}{8\pi}$ pour un pore cylindrique. Le schéma correspondant à cette équation se trouve figure 1.11.

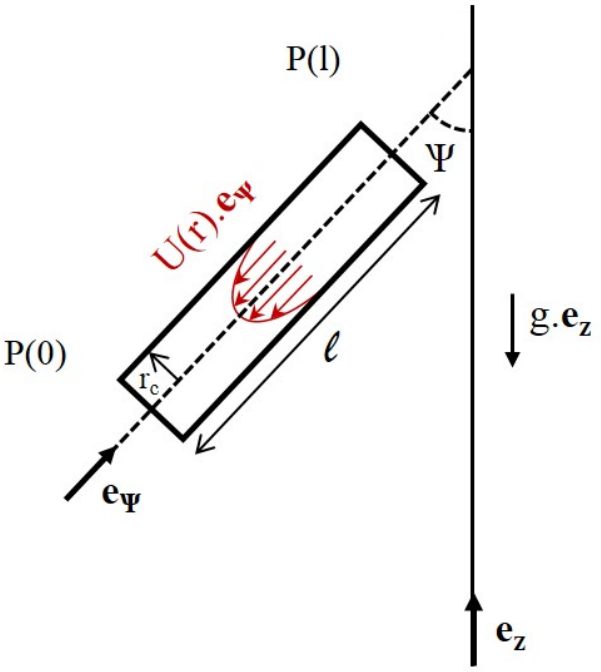


FIGURE 1.11 – Champ de vitesse dans un pore cylindrique de rayon r_c et de longueur l. Les vitesses aux parois sont nulles.

Cette loi de proportionnalité entre la vitesse du liquide et les forces motrices de l'écoulement reste vraie dans un milieu poreux, c'est la loi de *Darcy* [33] :

$$\bar{u}.\vec{e} = -\frac{\alpha}{\eta\epsilon} \left(\vec{\nabla} p - \rho \vec{g} \right) \tag{1.33}$$

Avec α le coefficient de perméabilité du milieu poreux, ϵ la porosité de ce milieu, dans une mousse, elle est telle que $\epsilon = 1 - \Phi$. $\vec{\nabla} p$ est le gradient de pression macroscopique.

Pour un réseau aléatoire de pores cylindriques, on exprime la vitesse $\bar{u}_z$ moyennée sur toutes les orientations de Ψ en considérant l'écoulement selon la direction e_z sous l'action d'un gradient de pression lui aussi dirigé selon e_z :

$$\bar{u}_z = -\frac{\pi r^2}{\eta}\left(\frac{dp}{dz} + \rho g\right) K_c \int_0^{\pi/2} \cos^2\Psi \sin\Psi d\Psi = -\frac{\pi r^2}{\eta}\left(\frac{dp}{dz} + \rho g\right)\frac{K_c}{3} \tag{1.34}$$

En identifiant avec l'équation 1.33 projetée sur e_z, il vient :

$$\alpha = \frac{\pi r_c^2 K_c\,(1-\Phi)}{3} \tag{1.35}$$

On peut généraliser cette expression à une section s quelconque :

$$\alpha = \frac{s K_c\,(1-\Phi)}{3} \tag{1.36}$$

Ce qui donne dans le cas des capillaires cylindriques :

$$\alpha = \frac{r_c^2}{24}\,(1-\Phi) \tag{1.37}$$

Le rayon hydraulique r_{hydrau} est le rapport entre la surface mouillée et le périmètre mouillé, on l'exprime également à l'aide de la surface spécifique A_s :

$$r_{hydrau} = \frac{1-\Phi}{A_s} \tag{1.38}$$

Par analogie avec l'équation 1.37, on peut exprimer une forme généralisée de α pour toutes les géométries de pore :

$$\alpha = (1-\Phi)\,\frac{r_{hydrau}^2}{C_K} = \frac{(1-\Phi)^3}{C_K A_s^2} \tag{1.39}$$

Ce qui constitue le modèle de *Carman-Kozeny* avec $3 < C_K < 6$ sa constante associée. On peut remarquer deux valeurs particulières de C_K, elle est égale à 6 pour un réseau de capillaires cylindriques et vaut environ 5 pour un poreux fait d'un empilement de sphères, dans ce dernier cas et pour des sphères de diamètre d, α s'écrit :

$$\alpha = \frac{(1-\Phi)^3\, d^2}{180\Phi^2} \tag{1.40}$$

Ce modèle de surface spécifique convient bien aux écoulements dans les poreux, cependant, même si la mousse est un milieu poreux, il se singularise en plusieurs points : l'organisation de son réseau est très particulière, il s'organise en respectant les lois de *Plateau*. D'autre part, c'est un réseau "mou", il se déforme au passage du liquide et le processus de drainage le modifie. Enfin, les conditions de glissement aux interfaces en font un cas très particulier, bien éloigné des cas où les parois sont rigides. Notons que la mobilité des interfaces est très dépendante de la nature des tensioactifs, certaines formulations pouvant même conduire au cas plus classique des parois rigides [34].

Mobilité des parois du réseau

Le modèle de *Leonard* et *Lemlich* [13] prend en compte la mobilité de l'interface en raisonnant sur un bord de *Plateau* infini. Les auteurs font l'hypothèse que la vitesse est non-nulle aux parois et qu'elle est nulle aux trois coins du bord de *Plateau*. Il est alors nécessaire d'introduire la mobilité des interfaces $M = \frac{\eta r}{\eta_s}$ qui est l'inverse du nombre de Boussinesq Bq. η_s est la viscosité de cisaillement de surface et r le rayon de courbure de l'interface. Lorsque $M \gg 1$ les parois sont parfaitement mobiles, il n'y a pas de perte de charge dans le canal, le liquide s'y écoulant ne résiste pas, il n'est pas freiné par les parois, l'écoulement est de type "bouchon". A l'inverse, quand $M \ll 1$, les parois sont rigides et l'écoulement dans le bord de *Plateau* est de type *Poiseuille* (voir figure 1.12). La mobilité est reliée à K_c de la façon suivante :

$$K_c = \frac{1}{6}\left[\frac{3}{25} + \sqrt{2M}\arctan\sqrt{\frac{M}{8}} - \arctan\frac{M}{2\pi}\right] \tag{1.41}$$

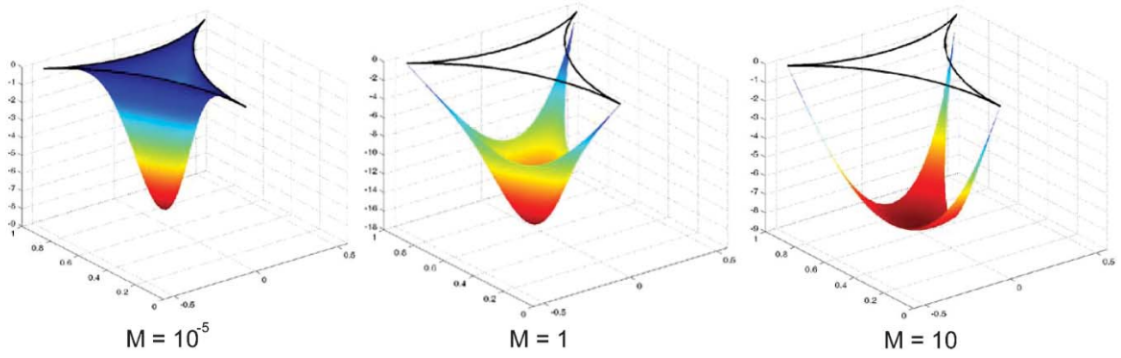


FIGURE 1.12 – Champ de vitesse dans la section d'un bord de *Plateau* en fonction de la mobilité M (En bleu les vitesses les plus faibles, en rouge les plus importantes). Extrait de [35].

Détermination de α

Pour le cas des mousses sèches, nous pouvons utiliser l'expression donnée par l'équation 1.18 qui relie r, D_b, et Φ et ainsi obtenir une expression de la section des bords de *Plateau* en fonction Φ et D_b, soit :

$$s = \left(\sqrt{3} - \pi/2\right) r^2 \approx 0,123\,(1-\Phi)\,D_b^2 \tag{1.42}$$

Finalement, en reportant l'expression de la section dans l'équation 1.36 on obtient l'expression de α pour des mousses sèches dominées par les bords de *Plateau* :

$$\alpha = \frac{0,123 D_b^2 K_c}{3}\,(1-\Phi)^2 \tag{1.43}$$

De façon plus générale, il faut prendre en compte la contribution des vertex dans l'expression de la perméabilité.

En considérant que la maille élémentaire du réseau interstitiel de la mousse, d'une longueur l_v, soit constituée d'un vertex et de quatre moitiés de bords de *Plateau* ((b) figure 1.3), on peut écrire la perte de charge associée à cet élément comme :

$$\frac{\delta p}{l_v} = \frac{R_{bdP} + R_v/2}{l_v} sr^2 \bar{u} \tag{1.44}$$

Où R_{bdP} et R_v sont respectivement les résistances hydrauliques d'un bord de *Plateau* et d'un vertex.
En reportant cette perte de charge dans la loi de *Darcy* (équation 1.33), on obtient :

$$\alpha = 0,75 D_b \left(1 - \Phi\right) r \times \left[\frac{\tilde{R_v}}{2} + \frac{1}{\delta_a^2 K_c} \left(\frac{0,36 D_b}{r} - \xi \left(1 - \Phi\right) \right) \right]^{-1} \tag{1.45}$$

Avec $\tilde{R_v} = \frac{r^3 R_v}{\eta}$ la résistance adimensionnée associée au vertex. La contribution de R_{bdP} se trouve désormais dans K_c alors que $\xi \left(1 - \Phi\right)$ rend compte de la réduction de la longueur des bords de *Plateau* quand Φ diminue, un ajustement de ξ est proposé par la relation 1.13. Cette forme générale de α et valable pour $0.9 < \Phi < 0.999$

Dans la littérature, des travaux numériques donnent des valeurs de $\tilde{R_v}$ entre 150 et 5000, on peut citer notamment pour les simulations *S. Cox et al.* avec $\tilde{R_v} \approx 250$ [36] et *V. Carrier et al.* avec $\tilde{R_v} \approx 3000$ pour l'expérimental [21].

En se plaçant dans le cas de mousses pas trop humides avec des vertex qui dominent majoritairement les conditions d'écoulement, nous pouvons faire les approximations suivantes : $\xi = 0$, $1/K_c = 0$, $\frac{r}{D_b} \approx 0,87\sqrt{(1 - \Phi)}$ et ainsi donner une expression de α pour les vertex :

$$\alpha \approx \frac{1,3}{\tilde{R_v}} D_b^2 \left(1 - \Phi\right)^{3/2} \tag{1.46}$$

On note alors que dans la limite des vertex la perméabilité dépend comme : $\left(1 - \Phi\right)^{3/2}$ alors que la dépendance dans la limite des bords de *Plateau* est de la forme :$\left(1 - \Phi\right)^2$ (voir l'équation 1.43). Ces dépendances ont déjà été évoquées lors de la section sur le drainage forcé.

Équation du drainage

La description de l'évolution spatiotemporelle de la fraction volumique gazeuse d'une colonne de mousse est déduite des perméabilités discutées précédemment et de l'équation de conservation de la masse liquide.

On considère une mousse d'une hauteur Z à la fraction $\Phi(z,t)$, où la vitesse locale du liquide est $\vec{u}(z,t)$ et la masse volumique du liquide interstitiel ρ.

On écrit la loi de *Darcy* dans la limite des mousses sèches, en prenant la pression capillaire donnée par la loi de *Laplace* :

$$\vec{u} = \frac{\alpha}{\eta}\left(\rho\vec{g} + \vec{\bigtriangledown}\left(\frac{\gamma}{0,87D_b\left(1-\Phi\right)^{1/2}}\right)\right) \tag{1.47}$$

D'autre part, l'équation de conservation de la masse s'écrit :

$$\frac{\partial\left(1-\Phi\right)}{\partial t} + div\left(\left(1-\Phi\right)\vec{u}\right) = 0 \tag{1.48}$$

En combinant ces deux dernières relations, on obtient l'équation du drainage :

$$\frac{\partial\left(1-\Phi\right)}{\partial t} + div\left(\frac{\alpha\rho}{\eta}\vec{g}\right) + div\left(\frac{\gamma\alpha}{0,87D_b\eta}\vec{\bigtriangledown}\left(\left(1-\Phi\right)^{-1/2}\right)\right) = 0 \tag{1.49}$$

Cette équation s'utilise dans deux approximations : le régime des bords de *Plateau* et celui des vertex, en utilisant les expressions de α calculées précédemment (équations 1.43 et 1.46).

La résolution numérique de cette équation pour une mousse de hauteur Z avec un profil de fraction gazeuse tel que $\Phi(z = Z) = 1$ (infiniment sèche) et $\Phi(z = 0) = 0,64$ (raccordement avec les liquides bulleux) fait apparaître deux régimes de drainage, séparés par le temps τ.
Quand $t < \tau$, le liquide draine à vitesse constante puis, quand on dépasse cette valeur caractéristique, on s'achemine peu à peu vers un plateau, jusqu'à atteindre une position d'équilibre où les effets de la gravité compensent exactement ceux de la capillarité. Cette valeur de τ est la même que celle décrite dans la partie sur le drainage libre (voir figure 1.13).

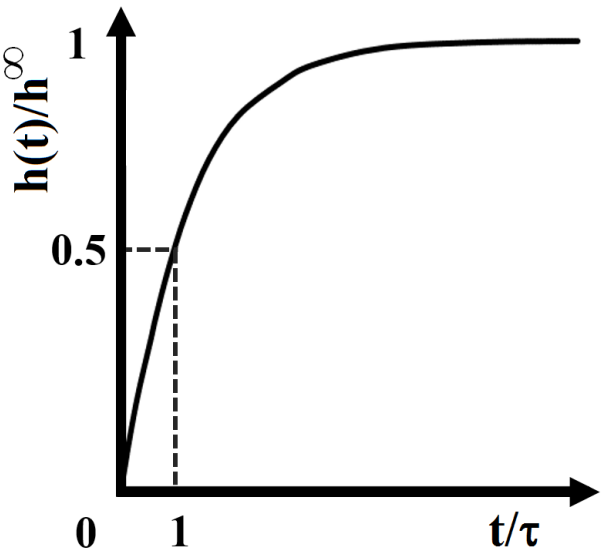


FIGURE 1.13 – Courbe typique d'évolution temporelle du front de liquide drainé. On constate un premier régime linéaire pour $t < \tau$ suivi d'un plateau. La hauteur de front est réduite par la hauteur d'équilibre.

Dans le régime des bords de *Plateau*, τ est le temps à atteindre pour drainer la moitié du liquide qu'il faut drainer pour atteindre l'équilibre, il s'éxprime ainsi :

$$\tau = \frac{12,5\eta Z}{K_c \rho g D_b^2 \left(1 - \Phi(t=0)\right)} \tag{1.50}$$

Dans le régime des vertex, au bout du temps τ, les 2/3 du liquide à drainer pour arriver à l'équilibre ont été drainés, τ vaut alors :

$$\tau = \frac{0,513\eta Z \tilde{R}_n}{\rho g D_b^2 \left(1 - \Phi\left(t=0\right)\right)^{1/2}} \tag{1.51}$$

Ces expressions de τ valent pour une fraction initiale de $\Phi(t=0)$ supposée uniforme dans toute la mousse.
Nous reviendrons sur la dynamique de drainage, en particulier sur sa mesure dans la partie consacrée au dispositif.

Le drainage constitue un des mécanismes de vieillissement des mousses, c'est généralement celui qui survient en premier mais il en existe d'autres.

1.1.6 Autres mécanismes de vieillissement

Mûrissement

Les films qui séparent les bulles dans la mousse sont perméables au gaz. Ces échanges de gaz sont causés par les différences de pression entre les bulles. La loi de *Laplace* nous indique que la pression dans une bulle est proportionnelle à $1/D_b$, en conséquence, le mûrissement n'a théoriquement pas lieu pour des mousses parfaitement monodisperses.

Ce n'est jamais le cas expérimentalement (voir figure 1.14), de plus, si l'échantillon de mousse présente une surface libre, il est en contact avec le gaz ambiant qui peut être vu comme une bulle infiniment grande.
Au cours du mûrissement, les plus grosses bulles grossissent et les plus petites diminuent de volume jusqu'à disparition. Le nombre total de bulles se voit diminuer alors que leur taille moyenne augmente.

Pour une mousse $2D$, le mûrissement est décrit par l'équation de *von Neumann* [37].

$$\frac{dA_i}{dt} = k\,(n_i - 6) \tag{1.52}$$

Avec A_n la surface d'une bulle i à n_i cotés et k une constante qui dépend des paramètres expérimentaux.

Pour les mousses $2D$ et $3D$, le diamètre des bulles varie avec le temps en $t^{1/2}$.

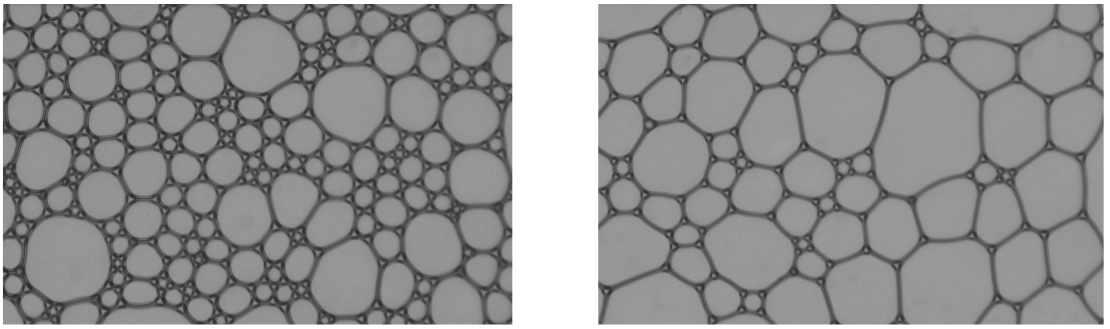


FIGURE 1.14 – (a) Une mousse prise entre deux plaques de verre à l'instant T_0. (b) la même mousse à $T = T_0 + 10$ *minutes*. Les bulles ont grossi et sont moins nombreuses.

Certaines études soulignent le couplage qu'il y a entre le mûrissement et le drainage [26, 38]. En particulier *Louvet et al.* [39] mettent en évidence le rôle de l'amincissement des films dans le mécanisme de mûrissement.

Réarrangements T1 et T2

Le mûrissement donne lieu à des déplacements de bulles. Lorsqu'un réarrangement de type T1 se produit, la configuration des bords de *Plateau* se voit modifiée. En particulier, lors d'un T1, un bord de *Plateau* diminue en taille jusqu'à disparaître, conduisant deux vertex à se rencontrer pour n'en former plus qu'un. Ce nouveau vertex est instable (les lois de *Plateau* n'autorisent que des vertex à quatre bords de *Plateau* en $3D$, trois en $2D$) en conséquence, il se réarrange et reforme un vertex viable, minimisant ainsi l'énergie d'interface.

Notons que lorsque Φ augmente, l'épaisseur des films diminue, ils sont fragilisés et ce type d'événements peut conduire à de la coalescence par rupture de films [40].

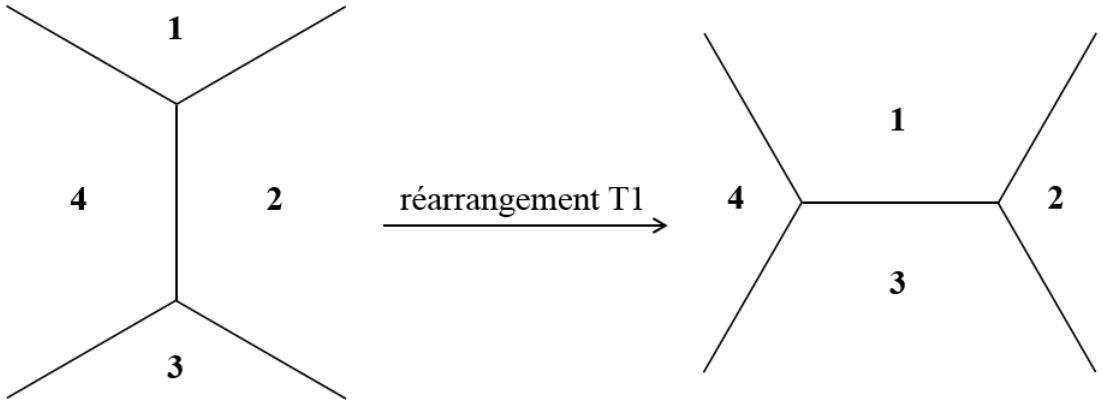


FIGURE 1.15 – Réarrangement de quatre bulles lors d'un T1, les bords de *Plateau* sont en noir.

Le T2 est un autre mécanisme de réarrangement, il concerne la disparition d'une bulle. Il a pour origine la diminution du nombre de bulles de la mousse et ne peut avoir lieu que s'il y a une variation du volume des bulles, il est donc couplé au mûrissement.

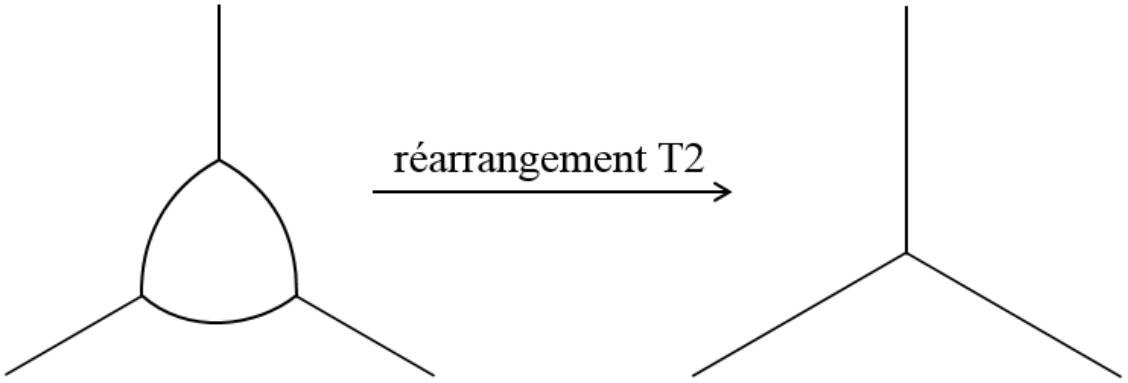


FIGURE 1.16 – Réarrangement de type T2 en $2D$.

Coalescence

La coalescence concerne la rupture d'un film séparant deux bulles, ce mécanisme qui participe à la destruction de la mousse a pour conséquence de réduire le nombre de bulles. Il dépend à la fois de l'épaisseur des films et de Φ.

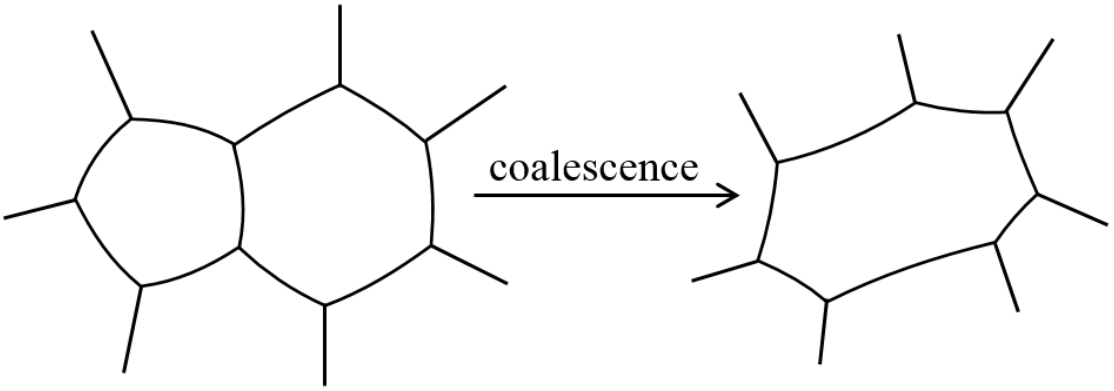


FIGURE 1.17 – Coalescence de deux bulles.

Le drainage n'est pas sans conséquence sur ce phénomène, un couplage drainage/coalescence a été mis en évidence [41]. Au cours du drainage, la fraction en gaz augmente jusqu'à un seuil critique qui conduit à de la coalescence. Les réarrangements entre les bulles (eux aussi liés au drainage) participent également aux ruptures de films.

1.2 Les mousses et les grains

Cette partie concerne les mousses de suspension qui sont depuis plusieurs années l'objet d'études [8, 9, 42–46]. L'accent est mis sur ce qui les différencie des mousses aqueuses. Ce sont des systèmes particuliers, plus complexes car faisant coexister trois phases. On peut les obtenir en venant disperser des bulles dans une suspension granulaire ou par le mélange direct de mousse et de suspension, quoi qu'il en soit, la manière de les produire est plus délicate et les échantillons sont moins contrôlés.

Pour ce type de mousse, les particules de la suspension se disposent entre les bulles, ce qui pose de nombreuses questions, notamment en ce qui concerne les effets sur la structure. Les dynamiques de vieillissement sont également concernées par l'ajout de grains. Il se pose aussi la question du rôle des particules en tant qu'éléments stabilisateurs.
Les effets sur le drainage sont plus largement discutés que le reste mais le mûrissement et la stabilisation des films sont aussi évoqués.

Des aspects de physique des suspensions granulaires sont également abordés, ils apportent des éléments de compréhension nécessaires pour appréhender le comportement des particules dans les mousses de suspension, particulièrement en ce qui concerne le drainage.

1.2.1 Mousses chargées en particules

Drainage et mûrissement

Les travaux visant à mesurer l'effet de l'ajout de particules dans des mousses aqueuses sur le drainage et le mûrissement sont très peu nombreux. On peut cependant citer une étude de *A. Britan et al.* [8] qui traite de ces sujets.

Les systèmes en question sont des mousses chargées en cendres de charbon pour une fraction volumique gazeuse initiale d'environ 80% et des bulles de quelques dizaines de microns. Les photos des systèmes fournies dans l'article font apparaître une grande polydispersité de taille de bulles et permettent d'affirmer que les échantillons sont relativement peu contrôlés.

Les particules utilisées ont une densité de $\approx 2000\ kg/m^3$, et sont encore plus polydisperses que les bulles, elles présentent une distribution bimodale allant de $0,1\ \mu m$ à $80\ \mu m$ avec deux pics : $\approx 0,3\ \mu m$ et $\approx 30\ \mu m$.
Ces informations nous indiquent que dans ces conditions, il est difficile de prendre en compte les effets de la taille des particules.
Seule la concentration granulaire semble réellement contrôlée, c'est le paramètre d'étude de ce travail.

Les auteurs réalisent des expériences de drainage libre qui durent plusieurs heures, ils effectuent les mesures suivantes :

— L'évolution du front de liquide drainé est suivi à l'aide d'une caméra : les vitesses de drainage reliées au premier régime ainsi que les hauteurs d'équilibre des fronts sont mesurées.
— Des mesures de fraction liquide pour trois altitudes sont réalisées par mesure de conductance électrique.
— Les diamètres d'un échantillon représentatif de bulles sont mesurés pour trois altitudes à l'aide de caméras.

Les résultats montrent que l'effet des particules sur le mûrissement est relativement limité, même si en leur présence, les bulles disproportionnent dans une moindre mesure. Cet effet est d'autant plus fort que que la fraction en grains est grande (1.18).

En revanche, l'effet sur le drainage est plus spectaculaire, il se manifeste dans un premier temps par une diminution de la vitesse puis, par une réduction de la hauteur de liquide drainé à l'équilibre. Ces effets de ralentissement augmentent eux aussi avec la fraction en grains.

Il est montré que la prise en compte de la diminution de la fraction volumique liquide due à la présence des particules (ici la fraction interstitielle qui est composée du liquide et des particules par rapport au volume total de la mousse n'est pas variée) ne peut expliquer à elle seule la réduction de la vitesse de drainage.

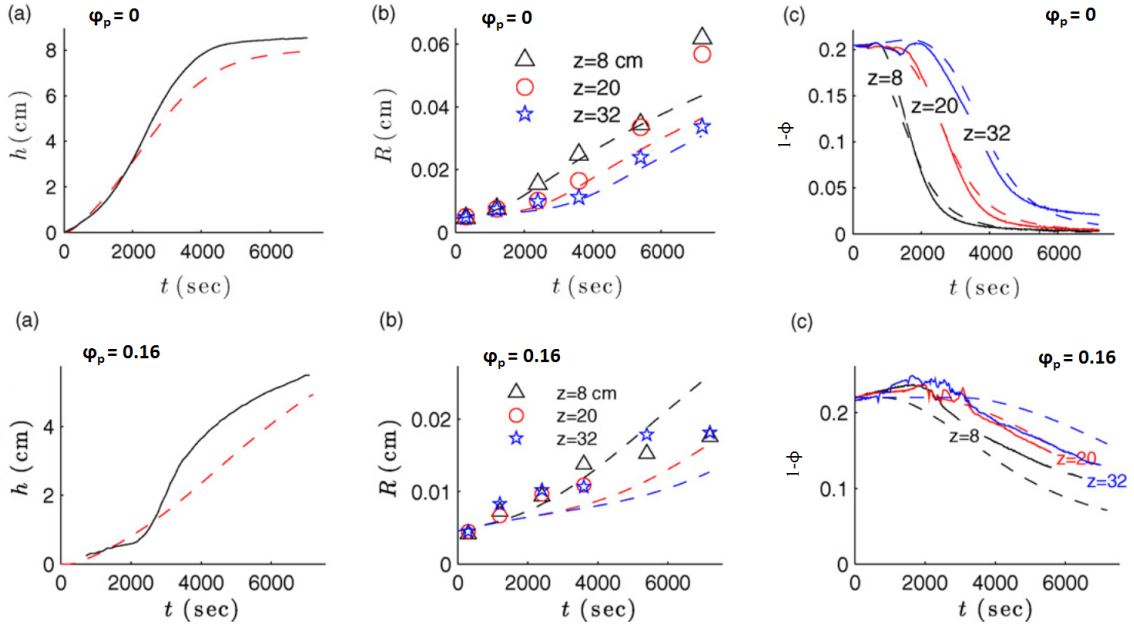


FIGURE 1.18 – (a) Hauteur de liquide drainé en fonction du temps. (b) Rayon des bulles en fonction du temps à trois altitudes. (c) Fraction liquide à trois altitudes. Ces données concernent une mousse sans particules et une mousse chargée en particules ($\varphi_p = 0,16$). Les courbes en pointillés sont des modèles proposés par les auteurs. Extrait de [8]

On remarque un lien certain entre la présence de particules solides dans la mousse et

sa stabilité vis-à-vis du drainage. Cependant, si l'augmentation de la fraction en particules apparaît comme essentielle dans la réduction de la vitesse de drainage et de la hauteur de liquide drainé, on ne sait rien de l'influence de la taille des particules ni de celle des bulles. Pour comprendre le rôle de ces paramètres, il est indispensable de les contrôler plus finement, de travailler avec des systèmes de mousses monodisperses et avec des suspensions également monodisperses.

Dans ces conditions, une étude au niveau de la structure de la mousse peut être envisagée, en s'intéressant en particulier à l'effet des particules lorsqu'elles sont entre les bulles, à l'intérieur du réseau interstitiel.

D'autre part, la figure 1.18 montre un mûrissement significatif au bout de 3000 secondes avec un facteur 2 sur le diamètre des bulles. Au même instant, le processus de drainage n'est pas terminé puisque, à $t = 3000\ sec$, seule la moitié du liquide à drainer pour atteindre l'équilibre est hors de la mousse. Ceci montre qu'il n'y a pas de découplage des effets, on ignore à quel point le rôle des particules est couplé à celui du drainage et/ou celui du mûrissement.

Enfin, la masse volumique des particules est présentée comme étant deux fois supérieure à celle du liquide, ce qui conduit inévitablement à de la sédimentation, cet effet supplémentaire vient compliquer d'avantage l'étude.

Les particules à l'échelle des films

Si on veut qu'une mousse soit stable dans le temps, il est indispensable de stabiliser ses films, pour éviter leur rupture qui conduit à de la coalescence puis à l'effondrement total de l'échantillon.
La solution la plus évidente pour stabiliser les films consiste à utiliser des tensioactifs, des molécules amphiphiles qui diminuent la tension superficielle de l'interface liquide/gaz. Il en existe de plusieurs types : anionique, cationique et non ionique.

Cependant, il existe d'autres méthodes qui conduisent à la stabilité des films, on peut par exemple citer l'utilisation de protéines [47] ou d'émulsions [48] mais il est également possible d'avoir recours à des particules solides. Elles peuvent s'avérer très efficaces pour la production de mousses et d'émulsions [49], d'abord en se mettant dans les films puis en s'adsorbant aux interfaces, les recouvrant d'une couche protectrice pouvant aller jusqu'à former un réseau $3D$ dans la phase interstitielle.

Le pouvoir stabilisant de ces particules dépend de plusieurs facteurs : de leur taille, leur forme, leur concentration et leur hydrophobicité. Par exemple, des particules hydrophiles seront efficaces en monocouche dans les films alors que des particules hydrophobes le seront en bicouche [49] (voir figure 1.19).

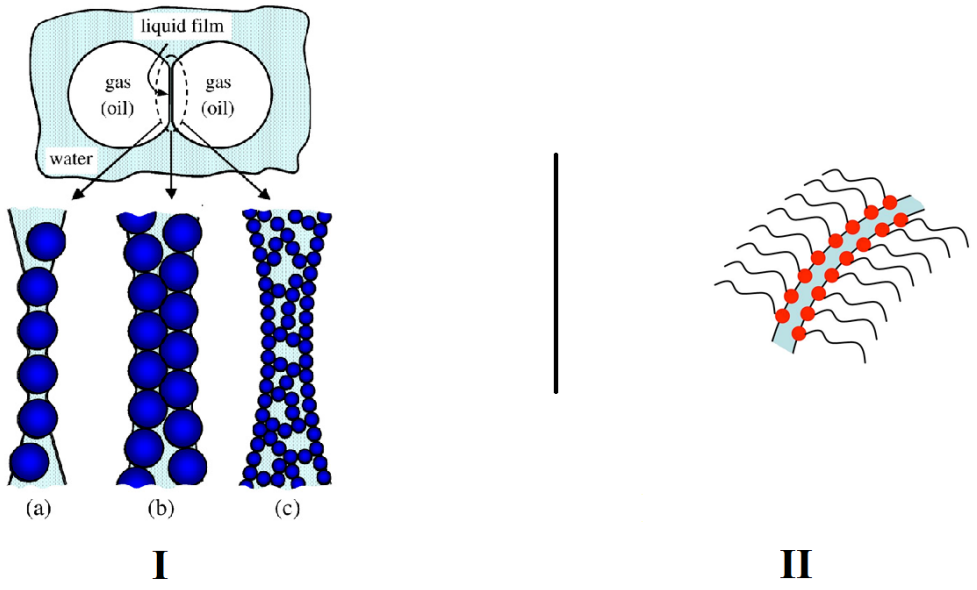


FIGURE 1.19 – I : mécanismes possible de stabilisation des films. (a) Monocouche de particules (b) Bicouche de particules (c) Particules qui percolent (gel) extrait de [49]. II : film liquide stabilisé par des tensionactifs, têtes hydrophiles, queues hydrophobes.

Capture de particules dans un bord de *Plateau*

Louvet et al. se sont intéressés à la capture d'une particule dans une mousse en fonction de la tailles des bulles D_b, de la taille de la particule d_p et de la fraction volumique gazeuse Φ [10].

Les auteurs commencent par calibrer des mousses en condition de drainage forcé, de façon à obtenir une correspondance entre le débit d'imbibition et la fraction gazeuse Φ. Dans un second temps, ces mousses calibrées sont utilisées pour piéger des particules, l'augmentation régulière du débit d'imbibition est ensuite pratiquée jusqu'à libération des particules. Du débit est déduit la fraction gazeuse, cette expérience consiste en une mesure indirecte de la taille minimale des constrictions de la mousse en fonction de Φ. En la réalisant pour plusieurs tailles de bulles, la dépendance en D_b est connue.

En notant la taille du plus petit passage dans la mousse $d_{passage}$, il est trouvé par ajustement pour $0 < \Phi < 0,26$ (tracé sur la figure 1.20) :

$$d_{passage} = D_b \frac{0,27\sqrt{1-\Phi} + 3,17\,(1-\Phi)^{2,75}}{1 + 0,57\,(1-\Phi)^{0,27}} \tag{1.53}$$

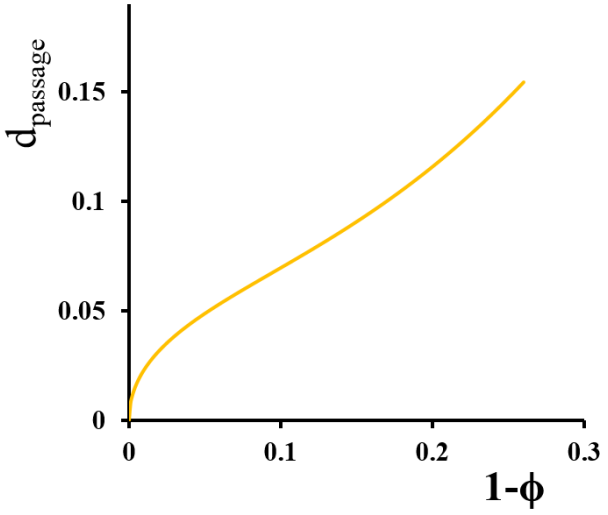


FIGURE 1.20 – Taille du plus petit passage dans la mousse en fonction de $1 - \Phi$ pour $D_b = 1$

Ce critère apparaît comme géométrique pour des débits d'injection pas trop importants et pour des bulles suffisamment petites. En effet, lorsque l'on augmente le débit de liquide injecté, les forces visqueuses dirigées vers la particule piégée sont de plus en plus fortes, elles ont tendance à l'entrainer avec l'écoulement. Dans le même temps, Les forces capillaires, qui retiennent la particule, sont compensées jusqu'à ce que le pore "mou" dans lequel la particule est piégée se déforme suffisamment pour la libérer.
Dans ce cas, les conditions de capture se voient modifiées.

Le nombre capillaire compare les forces visqueuses aux forces capillaires : $C_a = V\eta/\gamma$ avec V la vitesse du fluide, η la viscosité, et γ la tension de surface. Aux petites valeurs de C_a, la capture peut être considérée comme géométrique uniquement.

Ce travail sur la capture permet de définir le paramètre λ :

$$\lambda = \frac{d_p}{d_{passage}} \tag{1.54}$$

Il rend compte de l'encombrement du réseau de la mousse par les particules ($\lambda < 1$, particules libres. $\lambda > 1$, particules piégées.), nous reviendrons largement dessus au cours de cette thèse.

1.2.2 Éléments de physique des milieux granulaires

Transition de *jamming*

Le *jamming* est le processus selon lequel des fluides complexes présentant un comportement de liquide peuvent, sous certaines conditions, se comporter comme des solides.
On s'intéresse en particulier aux fluides complexes biphasiques, faits d'une phase dispersée dans une phase continue. Ils se comportent comme des solides pour une fraction volumique

de la phase continue suffisamment faible ou quand il sont soumis à une forte contrainte.

Le *jamming* concerne par exemple : les suspensions granulaires, les mousses ou encore les émulsions.

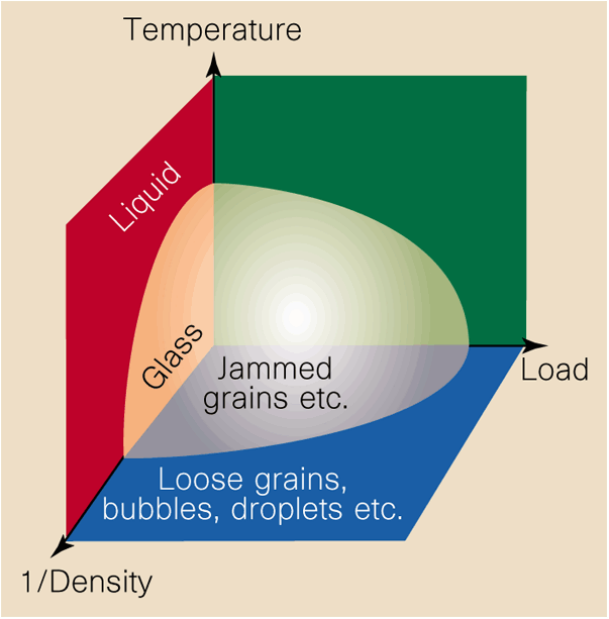


FIGURE 1.21 – Diagramme donnant la région "jammée" en fonction de la température, la densité de phase dispersée et la contrainte. Extrait de [12]

Prenons le cas des suspensions granulaires, et notons φ le rapport entre le volume occupé par les grains et le volume total de l'échantillon de suspension.
L'augmentation de φ conduit à une augmentation de la viscosité macroscopique de la suspension et se poursuit jusqu'au *jamming* lorsque φ atteint la valeur critique de φ^*.
Cette concentration granulaire critique dépend de plusieurs paramètres : la sphéricité des particules, la polydispersité, les interactions ou le mouvement brownien. Une large gamme de concentration peut être envisagée, la prise en compte d'interactions entre les grains diminue cette valeur. *Dong et al.* [50] insistent sur le l'influence des forces cohésives dans la valeur de φ^* alors que *Brown et al.* [51] et *Mahaut et al.* [52] ont trouvé des valeurs de divergence inférieures à 58% à l'aide de mesures rhéométriques.
D'autre part, la polydispersité peut considérablement augmenter la valeur de φ^*.

FIGURE 1.22 – Illustration du *jamming* en $2D$: une assemblée de kayaks. Extrait de [53]

Un autre paramètre change les conditions menant au *jamming*, il s'agit de la déformabilité des particules, on peut par exemple s'intéresser au cas des mousses qui constituent des systèmes de bulles "jammées". Pour des bulles sphériques monodisperses, le début du régime des mousses coïncide avec celui du *jamming*, à $\Phi \approx 0,64$ mais la déformabilité des bulles permet d'atteindre des valeurs de fraction en bulles (phase dispersée) bien plus grandes, $\Phi > 0,999$ pour des mousses très sèches. Dans ces conditions, la valeur de la contrainte nécessaire pour sortir du régime "jammé" augmente.

Modèles pour la viscosité des suspensions

Depuis un peu plus d'un siècle, différents modèles pour la viscosité effective d'une suspension ont été établis. Les plus simples ne tiennent compte que de la concentration de la suspension et de la forme des particules alors que d'autres ajoutent des interactions entre les grains : du frottement, de la ségrégation ou de l'hydrodynamique [54]. Quelques-uns de ces modèles sont rapidement présentés dans ce qui suit :

Albert Einstein a proposé une relation pour décrire comment des sphères rigides suspendues dans un fluide visqueux influencent ce système biphasique lorsqu'il est soumis à un cisaillement.
les sphères ajoutées, considérées comme indéformables (par conséquent infiniment vis-

queuses) augmentent la viscosité à l'échelle macroscopique (1906) :

$$\eta^* = \frac{\eta_{eff}}{\eta_0} = 1 + \xi_\eta \varphi \tag{1.55}$$

Avec η_{eff} la viscosité effective que présente la suspension et η_0 la viscosité du fluide suspendant. ξ_η est un coefficient qui dépend des caractéristiques de la suspension qui est égal à $2,5$ pour le cas particulier de sphères monodisperses indéformables. Cette équation du premier ordre est valable pour les suspensions diluées (quelques pourcents de fraction en grain).

Pour des suspensions plus concentrées, en 1972, *Batchelor et al.* [55] ont proposé une equation analytique donnant la viscosité effective d'une suspension en fonction de φ à l'ordre 2, étendant ainsi l'équation de *Einstein* :

$$\eta^* = 1 + \xi_\eta \varphi + \alpha \varphi^2 \tag{1.56}$$

Avec $\xi_\eta = 2,5$ que l'on retrouve pour le régime dilué (*Einstein*), et le terme α qui correspond aux interactions de paires : il dépend des interactions entre les particules, de la prise en compte du mouvement brownien ou encore des hypothèses sur les conditions initiales du système. Sa valeur varie comme : $5,2 < \alpha < 7,6$. $\alpha = 7,6$ correspondant au cas de particules sphériques rigides. Un accord est généralement observé jusqu'à $\varphi \approx 0,2$.

Une relation tenant compte de la ségrégation des grains a été énoncée en 1951 par *Mooney* [56], elle tient compte du cisaillement des particules mais aussi du confinement de celles-ci :

$$\eta^* = \exp \frac{2,5\varphi}{1 - \varphi/\varphi^*} \tag{1.57}$$

Le coefficient multipliant φ au numérateur est choisi pour se raccorder avec l'équation proposée par *Einstein* (équation 1.55). φ^* est la fraction pour laquelle la viscosité effective devient infinie.

Krieger et *Dougherty* proposent un modèle en 1959 qui prend en compte le fait que deux particules puissent s'agréger pour former un amas de particules de rayon équivalent plus grand, excluant ainsi d'avantage de volume (voir figure 1.23) [57].

$$\eta^* = \left(1 - \frac{\varphi}{\varphi^*}\right)^{[\eta]\varphi^*} \tag{1.58}$$

Dans cette équation, $[\eta]$ est la viscosité intrinsèque, ce paramètre est pris à $2,5$ dans le cas de sphères monodisperses.

Les modèles présentés précédemment sont tracés sur le graphique de la figure 1.24.

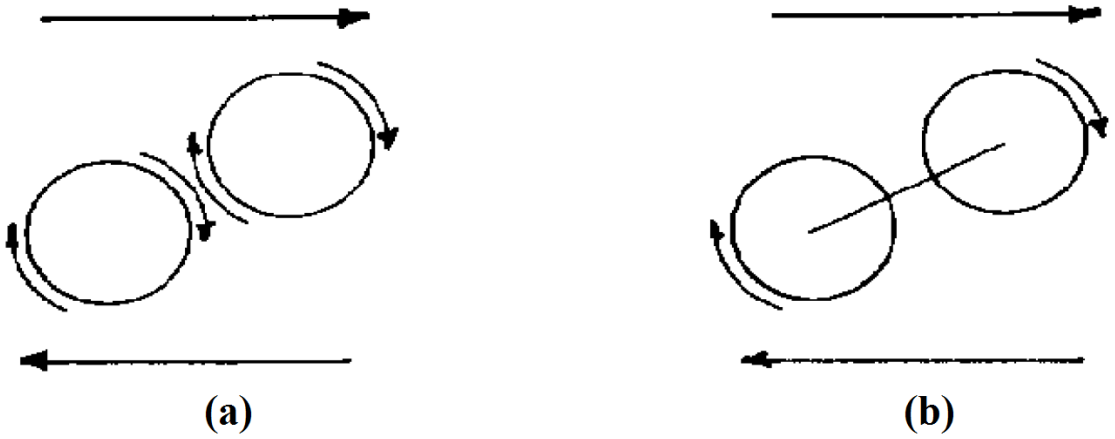


FIGURE 1.23 – a) Deux particules en rotation indépendamment l'une de l'autre. b) Deux particules solidaires en rotation. Extrait de [57].

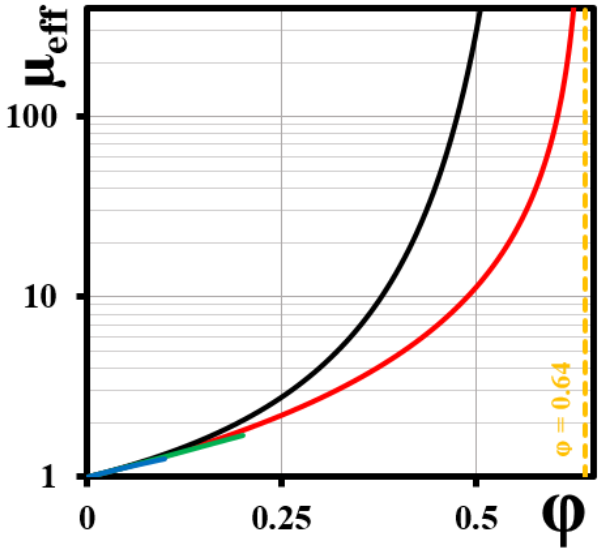


FIGURE 1.24 – Quelques modèles donnant la viscosité effective d'une suspension de billes sphériques monodisperses en fonction de la fraction en grains. Courbe bleue : *Einstein*, verte : *Batchelor*, rouge : *Krieger-Dougherty*, noire : *Mooney*. Pour tous ces modèles, la valeur de la fraction de divergence est prise à $\varphi^* = 0,64$ (verticale jaune).

Effet de confinement

Ces effets d'augmentation de la viscosité conduisant au *jamming* des particules sont très dépendant du milieu considéré (infini ou non). Dans ce qui précède, nous avons considéré des milieux infinis, par conséquent sans effets de bord. Ces effets peuvent être quantifiés à l'aide d'un paramètre de confinement, un nombre adimensionné venant comparer la taille des particules à la taille typique de milieu dans lequel la suspension se trouve.

Les systèmes que nous traitons dans cette thèse impliquent un fort confinement (pour

bien des échantillons, les particules de la suspension et les constrictions du réseau de la mousse ont des tailles comparables).
Ce confinement a un effet sur l'augmentation de la viscosité effective. A concentration en particules égale : plus la suspension est confinée, plus la viscosité effective est grande [58] (voir figure 1.25).

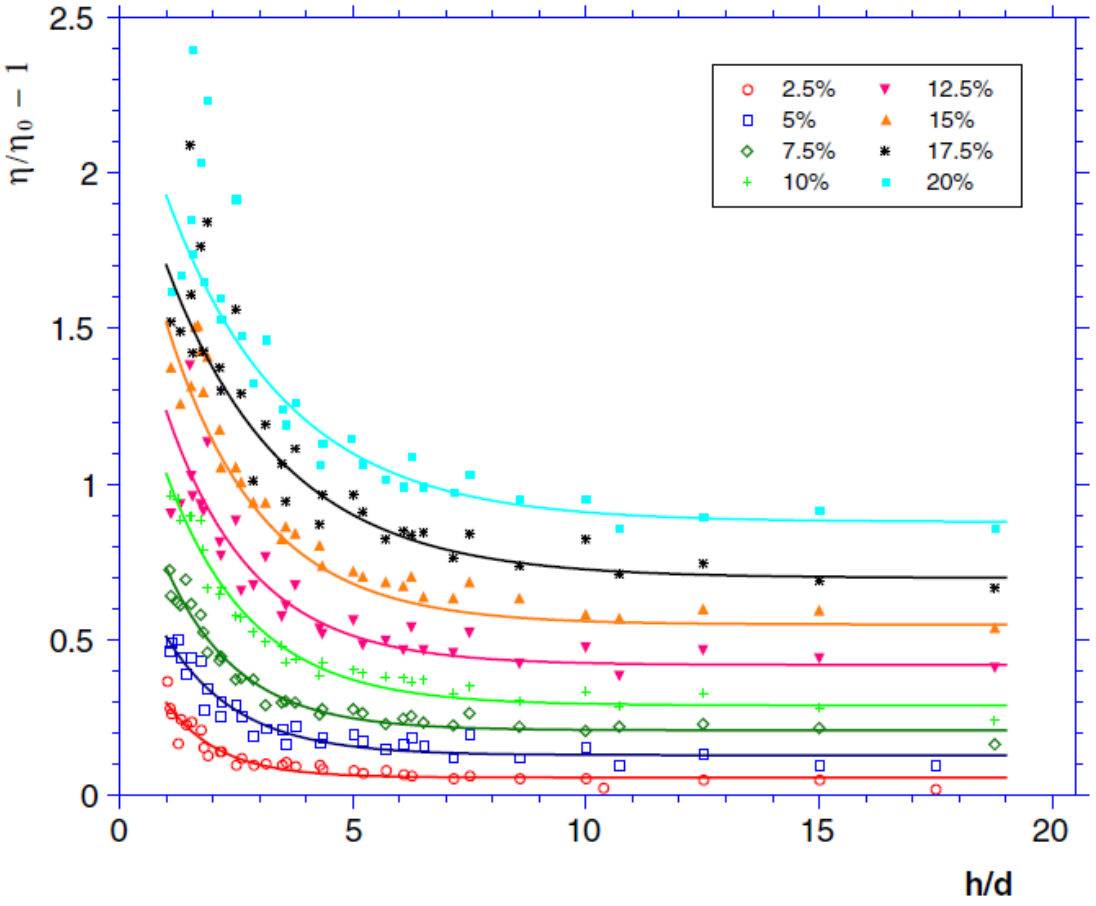


FIGURE 1.25 – Viscosité adimensionnée de suspensions pour quelques fractions en particules en fonction de h/d. Mesures au rhéomètre : entrefer de largeur h et billes de diamètre d. Extrait de [58].

Sur la valeur φ^*, un effet a été souligné par *Fall et al.* [59] : la fraction critique pour laquelle la suspension atteint le *jamming* diminue avec l'augmentation du confinement.

Ces effets sont liés à l'augmentation du volume exclu avec l'augmentation du confinement des particules. Ces volumes exclus sont eux-mêmes dépendant de la géométrie des particules et de celle du contenant de la suspension. Ils ont été déterminés pour des sphères empilées dans un cylindre [60].
Nous nous attendons à des effets similaires pour une suspension confinée dans le réseau interstitiel d'une mousse. La figure 1.26 donne des coupes de particules dans des bords de *Plateau* pour différents rapports d'aspect.

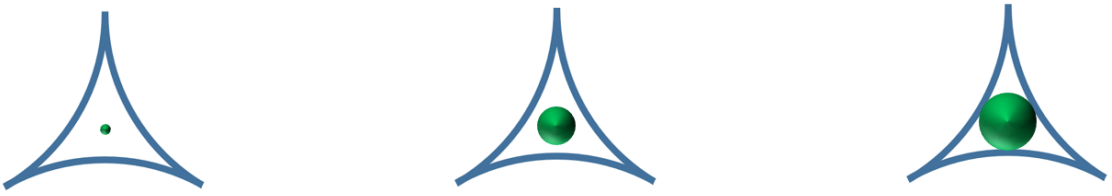


FIGURE 1.26 – Coupes de particules dans des bords de *Plateau*. Le volume exclu accessible à la particule diminue quand sa taille augmente.

Chapitre 2

Matériels et méthodes

Sommaire

2.1 Exigences expérimentales et matériel 48
2.1.1 Paramètres d'étude 48
2.1.2 Description du système 48
2.2 Production des échantillons et mesures 49
2.2.1 Étapes de production 49
2.2.2 Difficultés expérimentales 57
2.2.3 Mesures 58
2.3 Schéma récapitulatif 61

2.1 Exigences expérimentales et matériel

Nous avons besoin d'un dispositif expérimental permettant à la fois la production des mousses de suspension et leur caractérisation. L'exigence principale est d'explorer un maximum de régimes, ce qui nous impose de varier nos paramètres d'études sur les gammes les plus étendues possibles.

2.1.1 Paramètres d'étude

Pour commencer, l'objectif est de pouvoir varier λ sur la gamme : $0 < \lambda < 20$ (équation 1.54). Pour changer sa valeur, nous avons trois possibilités : la fraction en gaz Φ, le diamètre des bulles D_b et celui des particules d_p. Le système doit alors permettre de varier le plus largement possible ces trois paramètres.

L'autre axe d'étude est φ_p, ici aussi, il est essentiel de pouvoir varier ce paramètre au maximum, nous verrons que sa limite haute est très dépendante de la taille des particules.

2.1.2 Description du système

Pour produire nos échantillons, nous avons besoin de mélanger des mousses à des suspensions. La mousse est faite à partir de solution moussante et de diazote.
La composition de la solution moussante est la suivante : 80% en masse d'eau distillée et 20% en masse de glycérol. A cette solution est ajouté un tensioactif ionique, le tétradecylTrimethylAmonium Bromide (TTAB) à 10 g/L et un colorant alimentaire, le *Bleu brillant FCF* à $0,2$ g/L pour faciliter le traitement des images. La masse volumique de cette solution est de $\rho = 1050$ $kg.m^{-3}$, sa viscosité de $\eta = 1,7$ $mPa.s$ et la tension de surface eau/gaz est de 38 $mN.m^{-1}$.
Notons que les expériences les plus longues (plus d'une heure) et pour les tailles de bulles les plus petites ($D_b < 400$ μm) le mûrissement est ralenti par ajout de perfluorohexane qui en saturant le diazote de la mousse, le rend très peu soluble dans la solution moussante.

Les suspensions sont faites à partir de billes de polystyrène ou de polyméthacrylate de méthyle (PMMA) dispersées dans la solution moussante précédemment détaillée.
La présence de glycérol permet aux billes de polystyrène et à la solution d'avoir la même densité et ainsi d'éviter la sédimentation ou le crémage. Les diamètres des billes de polystyrène sont les suivants : $d_p = 20$ μm $,40$ μm $,80$ μm $,140$ μm $,250$ μm et 500 μm. A ceux-ci s'ajoutent deux diamètres de bille de PMMA : 6 μm et 30 μm. La masse volumique du PMMA est de $\rho = 1188$ $kg.m^{-3}$. Étant donnés les diamètres relativement faibles des billes de PMMA, les effets de sédimentation peuvent être négligés comparativement aux durées des expériences. Seules les mesures de rétention de particules peuvent être affectées par cet effet, nous en discutons dans la partie suivante.

2.2 Production des échantillons et mesures

La production des échantillons est divisée en quatre étapes :

— La production de la mousse pour laquelle nous contrôlons D_b.
— Le contrôle préalable de la fraction gazeuse de la mousse.
— Le mélange de la mousse et de la suspension. Lors de cette étape, les paramètres φ_p, Φ, et d_p sont fixés.
— Le remplissage de la cellule de mesure qui doit s'effectuer sans détérioration de l'échantillon.

2.2.1 Étapes de production

Chacune des étapes de la production des échantillons est détaillée dans cette section.

Production de mousse

Trois méthodes nous permettent de produire des mousses.

En premier lieu, celle utilisant une jonction en T, où l'on force à se rencontrer les phases liquide et gazeuse. Elle présente l'avantage d'être très reproductible pour ce qui concerne la taille des bulle D_b, ces bulles sont monodiperses. Malheureusement, les petites tailles ($D_b < 300\ \mu m$) sont peu accessibles. Les études réalisées sur ce dispositif [61, 62] ont montré que la taille des bulles produites dépend à la fois de la géométrie et du rapport des débits de la phase continue et de la phase dispersée. Dans notre cas, les bulles varient ainsi : $500\ \mu m < D_b < 1000\ \mu m$ (voir (a) de la figure 2.1) pour des débit de production de l'ordre de $8\ ml/min$.

Pour atteindre de plus petits diamètres, nous faisons appel au dispositif détaillé dans [63] par *Lorenceau et al.* (voir (b) de la figure 2.1). Pour cette méthode, deux capillaires (un à section carrée, l'autre cylindrique) sont imbriqués l'un dans l'autre. Avec ce système, nous obtenons des diamètres de bulles plus petits (à partir de $150\ \mu m$) cependant, les débits de production sont abaissés (de l'ordre de $3\ ml/min$).

Une autre méthode pour la production de bulles de petit diamètre est décrite dans l'annexe A. Pour cette technique on utilise une série de poreux. Cependant, la mousse obtenue est assez polydisperse.

La dernière méthode de production concerne les bulles les plus grosses, elle est celle dite du "bullage" et se fait par l'utilisation d'une aiguille par laquelle le gaz de la phase dispersée est injecté (voir (c) de la figure 2.1).
Selon *Tate* [64], une bulle (ou une goutte) est dispersée dans une phase continue lorsque la poussée d'Archimède (ou le poids) vient vaincre les forces de tension de surface qui rattachent la bulle (ou la goutte) à l'aiguille.

L'équilibre de ces deux forces permet d'écrire, dans le cas quasi-statique, la relation suivante où b est le périmètre de l'aiguille :

$$D_b = \left[\frac{3\gamma b}{\rho g}\right]^{1/3} \tag{2.1}$$

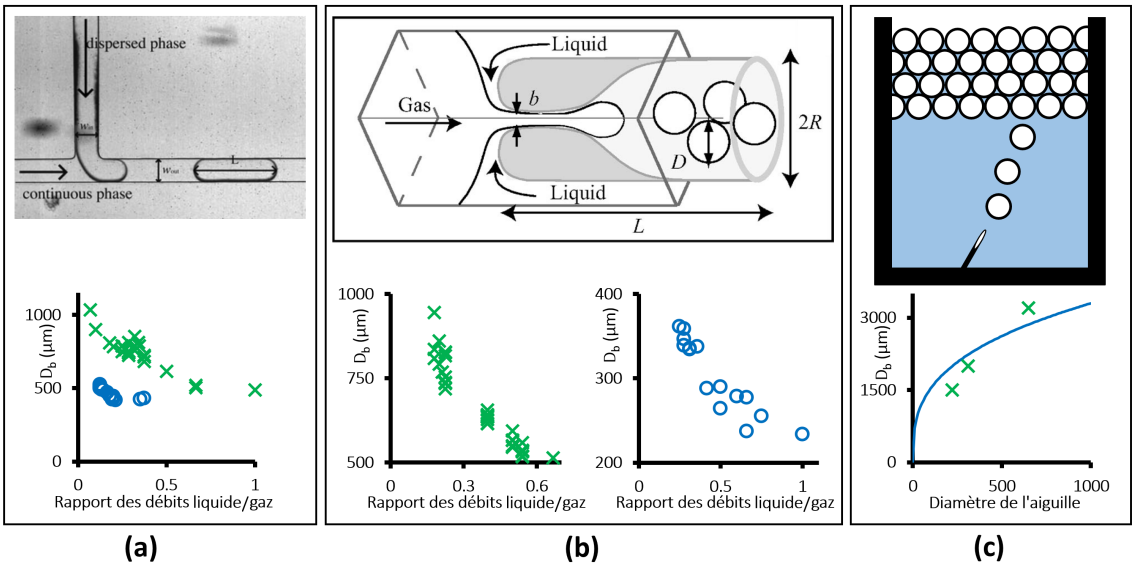


FIGURE 2.1 – Les trois méthodes de production de bulles. (a) Par la jonction en T (schéma extrait de [62], mesures réalisées avec nos systèmes), les tailles de bulles sont tracées en fonction du rapport des débits pour deux géométries. (b) Par les capillaires imbriqués (schéma extrait de [63], mesures réalisées avec nos systèmes), les tailles de bulles produites sont tracées pour deux géométries. (c) A l'aide d'une aiguille, les tailles de bulles sont tracées en fonction du diamètre de l'aiguille (croix vertes), l'équation 2.1 est tracée en bleu.

Stockage de la mousse

Dans une seconde étape, la mousse qui est dans une colonne verticale, est humidifiée en continue par le haut pour la mettre en condition de drainage forcé, ce qui permet de la maintenir à une fraction gazeuse contrôlée et constante sur toute la hauteur de la colonne (voir le schéma (a) de la figure 2.2).
La relation 1.43 (régime des bords de *Plateau*) nous renseigne que le débit de drainage est proportionnel au carrée de la taille des bulles. Expérimentalement, on varie le débit avec la taille des bulles de façon à obtenir une mousse à $\Phi \approx 0,985$. Le graphique (b) de la figure 2.2 donne les débits adimensionnés d'humidification à imposer en fonction de D_b pour obtenir la fraction volumique gazeuse $\Phi = 0,985$. Sur ce graphique en échelle logarithmique, la droite en rouge de pente égale à 2 est tracée, les cercles bleus sont des mesures déduites par pesées de volumes connus de mousse.

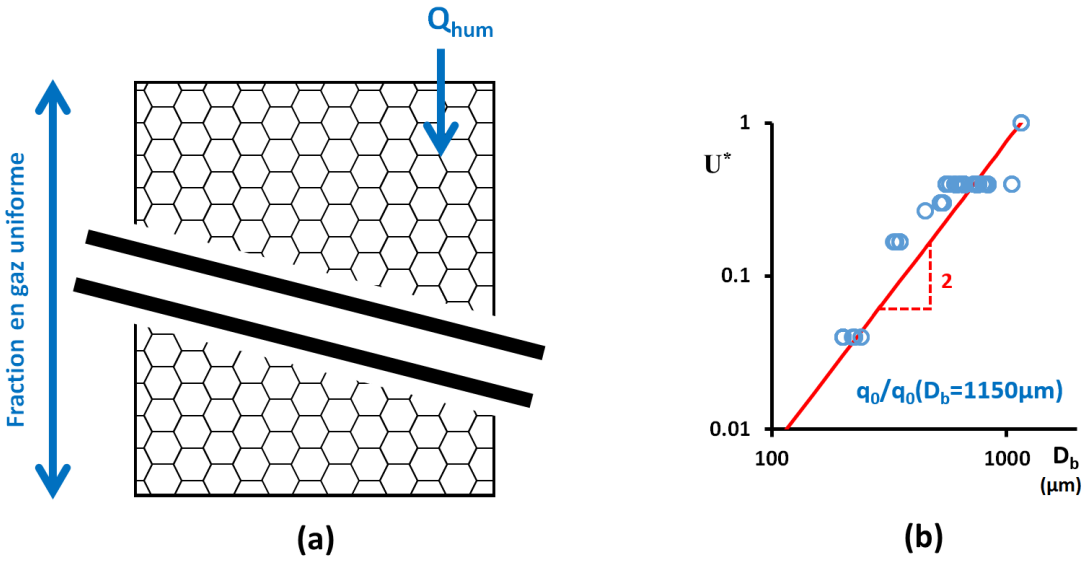


FIGURE 2.2 – (a) Colonne de stockage de la mousse, humidifiée en haut par de la solution moussante. (b) Débit nécessaire pour maintenir la mousse à $\Phi = 0.985$ en fonction de D_b, les débits sont adimensionnés par le débit correspondant au cas $D_b = 1150\ \mu m$.

Mesure du diamètre des bulles

La mesure des diamètres de bulles se fait en prélevant quelques millilitres de mousse depuis la colonne de stockage. Cet échantillon est ensuite écrasé entre deux lames de verre maintenues par des cales comme illustré sur le schéma (b) de la figure 2.3. Pour réaliser cette mesure, il est nécessaire que la hauteur (H) des cales soit inférieure au diamètre des bulles. Une caméra prend ensuite une image de la mousse écrasée à la paroi (voir photo (a) de la figure 2.3).
A l'aide d'un logiciel de traitement d'image (ImageJ [65]) les surfaces (A) ainsi que les périmètres (P) des bulles sont déterminés. On déduit alors le volume : $V_0 = A \times H$.
A ce volume, il faut ajouter les contributions contenues dans les zones périphériques de la bulle, soient le demi-cylindre rouge visible sur le schéma (c) de la figure 2.3 et les parties en gris foncé qui sont les sommets du polygone que forme la bulle à la paroi. Ces volumes contribuent respectivement comme : $V_1 = \frac{1}{2}\pi \left(\frac{H}{2}\right)^2 P$ et $V_2 = \frac{4}{3}\pi \left(\frac{H}{2}\right)^3$.
Le volume total de la bulle devient alors : $V = V_0 + V_1 + V_2$ et son diamètre équivalent est déduit de la façon suivante : $D_b = \left(\frac{6V}{\pi}\right)^{1/3}$.

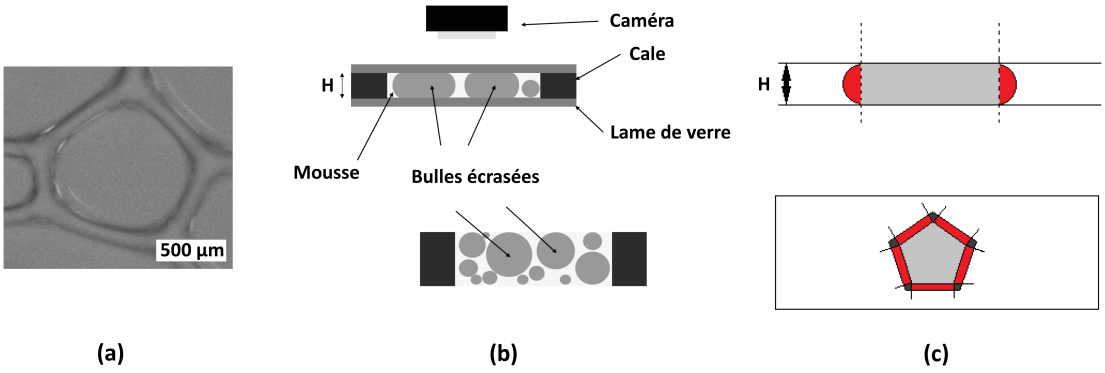


FIGURE 2.3 – Mesure de la taille des bulles. (a) Photo de dessus d'une bulle écrasée à la paroi. (b) et (c) Coupe et vue du dessus du montage.

Pour faciliter la détermination des tailles de bulles qui a lieu à chaque expérience, la mesure se fait en paroi [66]. Pour cela, une calibration a été faite pour connaître la conversion qu'il y a entre la taille des bulles en paroi et leur diamètre équivalent.
Les mousses cristallisées présentent un pavage hexagonal en paroi, il est alors facile de mesurer la longueur entre deux côtés opposés (voir figure 2.4).

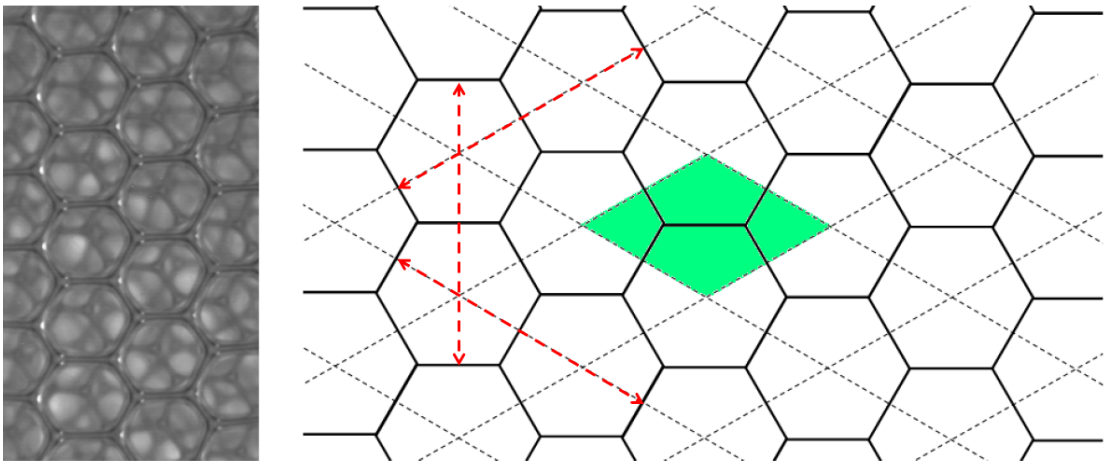


FIGURE 2.4 – (a) Photo de mousse en paroi, bulles de 660 μm. (b) Pavage hexagonal, les mesures sont moyennées dans les trois directions et sur plusieurs bulles (matérialisées en pointillés rouges).

Par calibration, on trouve que la distance entre deux côtés opposés est $1,19$ fois plus grande que le diamètre équivalent de la bulle.

Préparation des suspensions

Les suspensions sont préparées par mélange des particules de polystyrène ou de PMMA avec la solution moussante. Ces suspensions sont homogénéisées à l'aide d'un agitateur magnétique. Les fractions granulaires de ces suspensions sont déterminées par pesée. Nous ne traitons que des suspensions monodisperses.

Mélange mousse/suspension

Une fois la mousse et la suspension contrôlées, elle sont mises en contact l'une à l'autre à l'aide d'une jonction en Y. Le contrôle des débits de mousse et de suspension permettent de fixer les fractions φ_p et Φ.
Le mélange mousse/suspension est homogénéisé grâce au mélangeurs suivants :

— Le mélangeur statique (voir le schéma (a) de la figure 2.5) consiste en une succession d'hélices décalées d'un demi-tour les unes par rapport aux autres. La mousse et la suspension sont introduites respectivement de chaque coté de la pale de la première hélice, elles sont ensuite mixées l'une à l'autre selon le principe de la transformation du boulanger. Cette méthode a été utilisée pour les particules les plus petites (6 μm) lors des premières expériences. Elle ne permet pas d'atteindre des fractions en grains très grandes (autour de 40% pour la suspension initiale) au-delà desquelles les particules se bloquent dans le mélangeur. Cette technique a été abandonnée par la suite.

— Le mélangeur tournant (voir le schéma (b) de la figure 2.5) pour lequel la mousse et la suspension sont cisaillées côte à côte dans un tube rotatif : un morceau de tube reste immobile tandis qu'un autre est en rotation. La fréquence de rotation de la partie mobile est prise suffisamment grande pour que la mousse et la suspension soient cisaillées lors de leur passage dans le mélangeur (vitesse de passage de l'ordre de 5 $cm.s^{-1}$ pour une pièce tournante d'environ un centimètre de longueur et de fréquence de rotation de $\approx 10\ Hz$).
Ce système permet le mélange aux fortes concentrations (jusqu'à $\approx 55\%$ pour la suspension initiale) pour des particules allant jusqu'à 40 μm. Aux concentrations moins grandes (jusqu'à $\approx 40\%$) le mélange est possible pour des particules de 80 μm.

— Le troisième type de mélangeur (voir le schéma (c) de la figure 2.5) permet le mélange des particules de plus grands diamètres (à partir de 140 μm) pour des fractions de suspension inférieures à 40%. Ces dispositifs sont adaptés à la taille des particules, trois ont été fabriqués (un pour les billes de 140 μm, un autre pour celles de 250 μm et un dernier adapté aux billes de 500 μm). Ce système permet d'acheminer la suspension au cœur de la mousse, ce pré-mélange est ensuite confiné dans un entonnoir de diamètre minimal environ égale à deux fois le diamètre des particules.

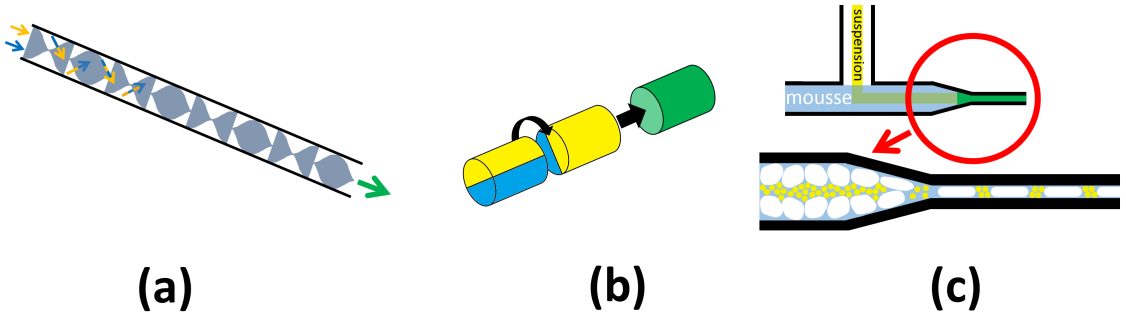


FIGURE 2.5 – Trois types de mélangeur : (a) Mélangeur statique. (b) Mélangeur tournant. (c) Mélangeur adapté aux grosses particules.

Les images qui suivent (figures 2.6 à 2.9) sont des photos de mélanges de mousse et de suspension réalisés avec les mélangeurs décrits plus haut.

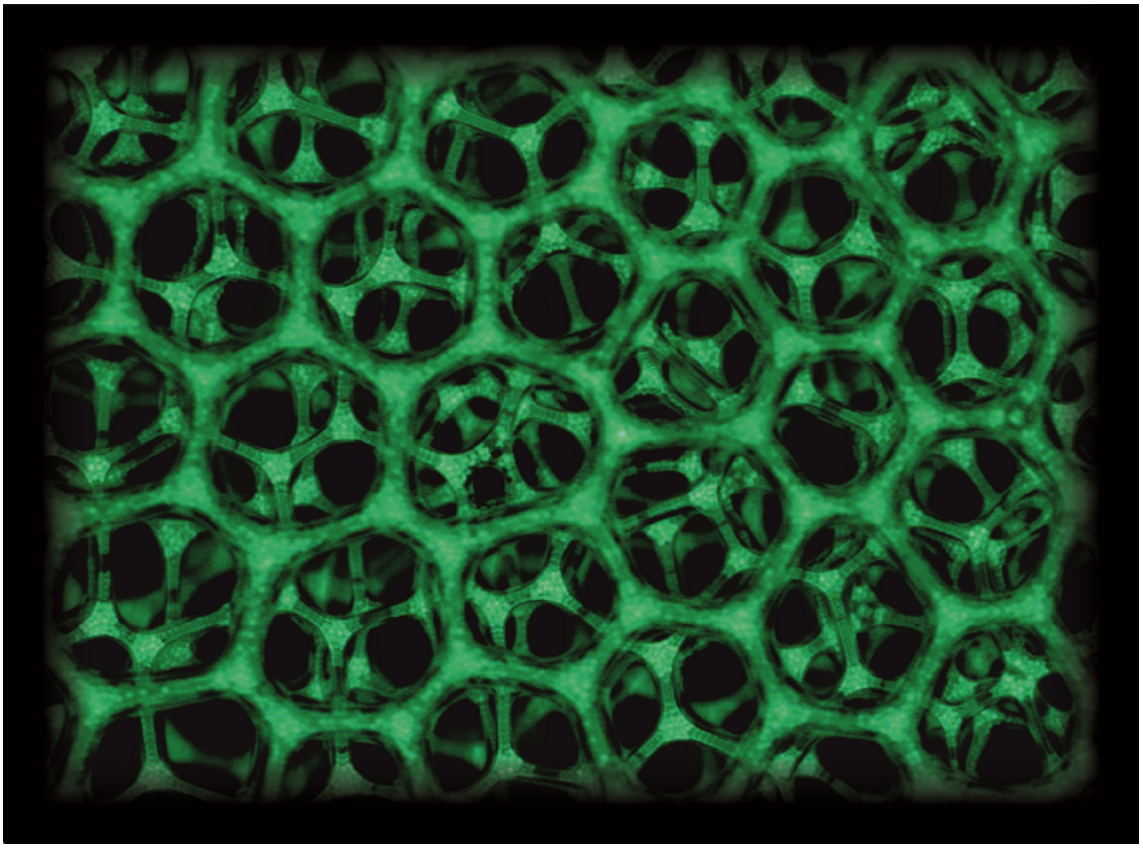


FIGURE 2.6 – Photo prise en paroi. Particules fluorescentes de 30 μm et bulles de $D_b = 500$ μm de diamètre.

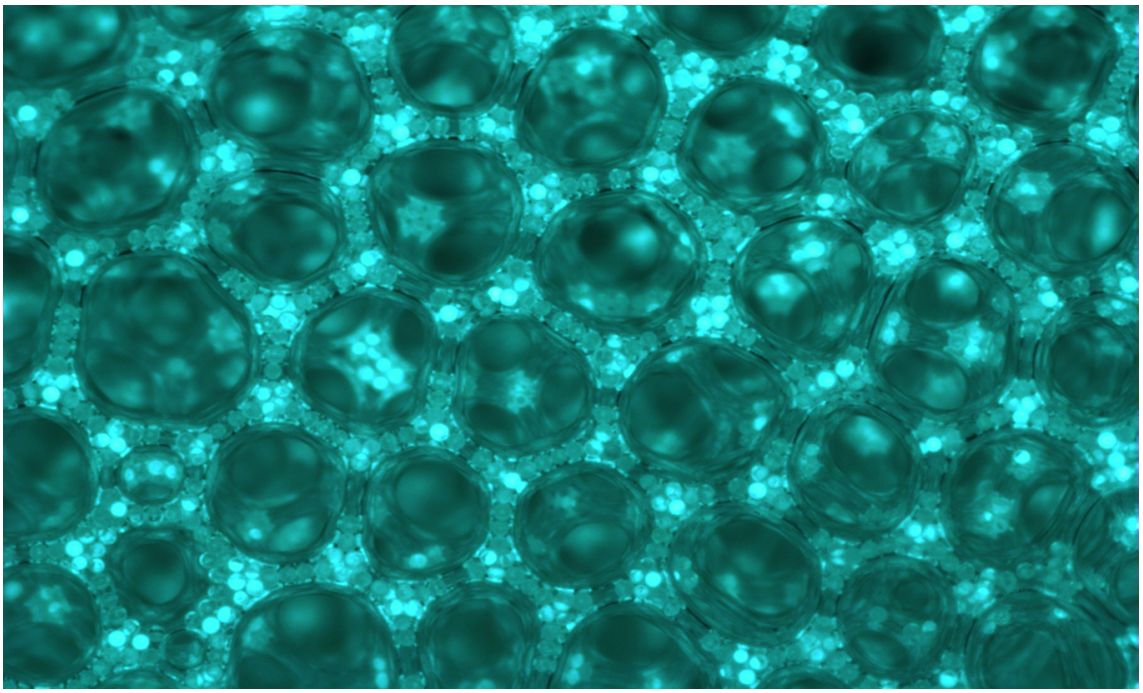


FIGURE 2.7 – Exemple d'échantillon produit avec le système. Les bulles comme les billes sont monodisperses, respectivement 660 μm et 80 μm. Le mélange apparaît homogène.

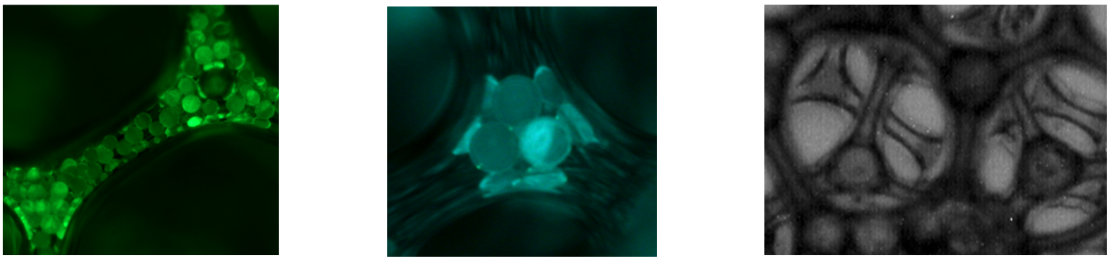


FIGURE 2.8 – Photos qui illustrent le remplissage selon la valeur de λ.

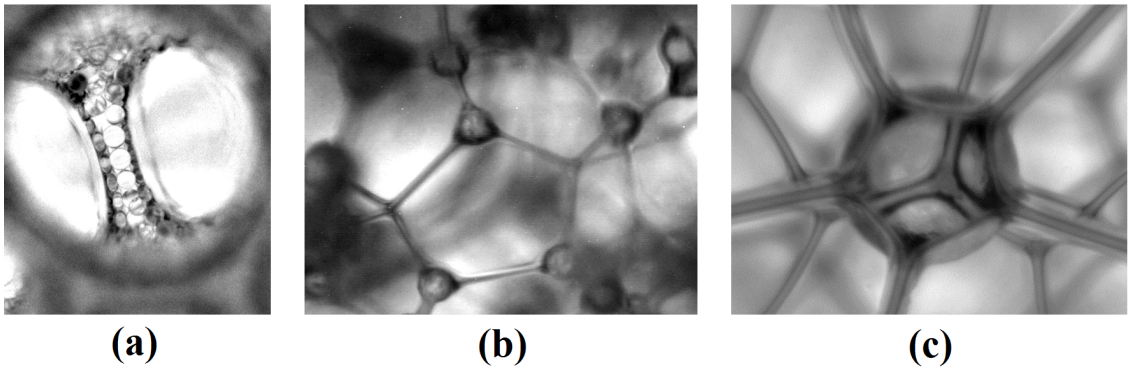


FIGURE 2.9 – Autres remplissages en fonction de λ. (a) $\lambda \approx 1$ (particules empilées dans un bord de *Plateau*). (b) $\lambda \approx 5$ (particules qui déforment les vertex). (c) $\lambda \approx 20$ (particule exclue du réseau).

Remplissage de la cellule de mesure

Dans l'étape suivante, une cellule de mesure en position horizontale (constituée d'un cylindre et d'un piston, voir figure 2.10) est remplie du mélange mousse/suspension.
Ce mélange est injecté à un certain débit (typiquement de l'ordre de 10 ml/min) dans la cellule initialement à volume nul, simultanément le piston recule pour maintenir la mousse de suspension à la pression atmosphérique dans le cylindre.
Le volume final de l'échantillon est de 60 ml. Pendant le remplissage, la cellule est en rotation de façon à éviter le drainage (le remplissage peut, pour certains cas, prendre plus de dix minutes). La fréquence de rotation est de $0,3\ Hz$.

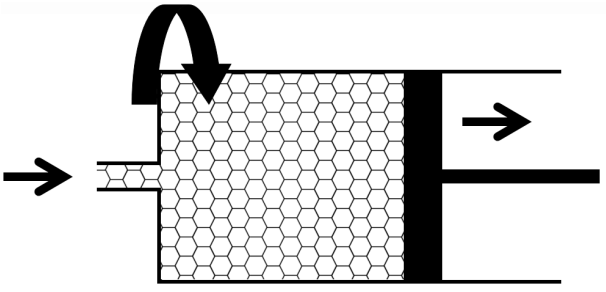


FIGURE 2.10 – Remplissage de la cellule de mesure.

Assèchement

Pour certaines valeurs de λ (au-delà de $\lambda \approx 2$) cette méthode est nécessaire pour atteindre d'importantes fractions granulaires (au-delà de 35%).
Ainsi, nous produisons une mousse plus humide (en diluant la suspensions dans la phase interstitielle de la mousse) ce qui nous éloigne de la limite haute de concentration en particules.
Par la suite, le surplus de liquide est ajusté de façon à atteindre les λ et φ_p désirés. Pour cette dernière opération, la fraction en gaz Φ augmente, ce qui a pour effet d'augmenter

λ.
En conséquence, la valeur de λ avant assèchement doit être prise de façon à avoir les particules piégées dans la mousse ($\lambda \geqslant 2$). Les graphiques de la figure 2.11 donnent des exemples de φ_p et λ obtenus après assèchement. La figure 2.12 est un schéma reprenant la méthode d'assèchement.

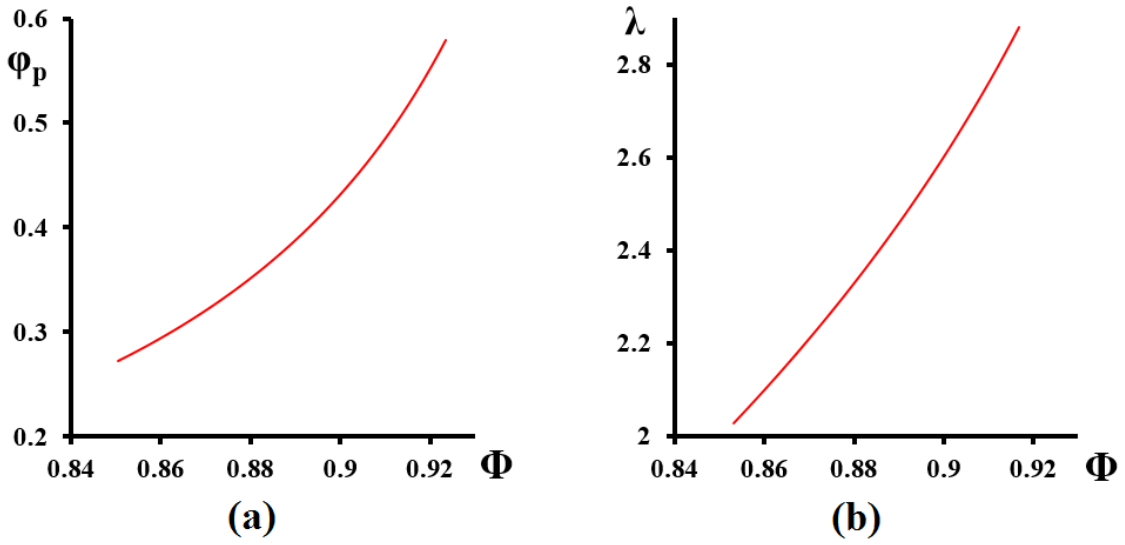


FIGURE 2.11 – (a) φ_p obtenu après assèchement en fonction du Φ final pour une mousse initialement à $\varphi_p = 0,27$, $\Phi = 0,85$ et $\lambda = 2$. (b) λ obtenu après assèchement en fonction du Φ final pour une mousse initialement à $\varphi_p = 0,27$, $\Phi = 0,85$ et $\lambda = 2$.

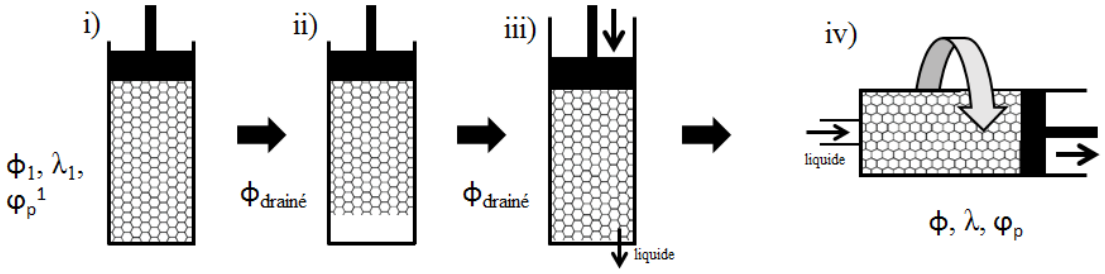


FIGURE 2.12 – Méthode d'assèchement i) Début du drainage de la mousse diluée, initialement à Φ_1, λ_1, et φ_p^1. ii) fin du drainage de la mousse diluée, $\Phi_{draine} > \Phi_1$. iii) Pompage du liquide. iv) Mise en position horizontale de la cellule de mesure. Ajout de liquide pour atteindre Φ, λ et φ_p. Mise en rotation pour uniformiser le système.

2.2.2 Difficultés expérimentales

Pour la production des échantillons, nous avons utilisé un régulateur de gaz en débit massique (calibré pour l'azote uniquement).
L'ajout de perfluorohexane (pour éviter le mûrissement) a modifié la nature du gaz et a engendré une erreur entre le débit de consigne et le débit réel (débit réel inférieur au débit

de consigne).
Ce problème ne concerne qu'une partie des mesures des hauteurs finales de suspension drainées (pour la mesure des vitesses de drainage qui se font aux temps courts, nous n'avons pas besoin de limiter le mûrissement par ajout de perfluorohexane). D'autre part, pendant le remplissage de la cellule de mesure lors de la production des échantillons, le volume de la cellule est augmenté (par retrait d'un piston) jusqu'au volume désiré.
Dans ces conditions, en imposant le volume final, le mauvais débit fourni par le régulateur de gaz est sans influence sur Φ et φ_p. Le diamètre des particules d_p n'est évidement pas affecté par ce problème.
En réalité, le débit trop faible du régulateur de gaz et le fait d'imposer le volume de l'échantillon mettent la mousse en dépression, ce qui a des conséquences sur la taille des bulles : D_b.
Lorsque nous nous sommes rendus compte de ce problème, nous avons mesuré l'erreur engendrée par la présence du perfluorohexane. Cette erreur n'est pas systématique et semble notamment dépendre de la température. Elle s'échelonne de 0% à 20% de minimisation par rapport au débit de consigne pour les cas les plus extrêmes. Nous pouvons ainsi estimer le rapport de la pression dans la cellule (P') et de la pression atmosphérique (P) pour l'erreur la plus grande :

$$\frac{P'}{P} = \frac{V}{V'} = 0,8 \tag{2.2}$$

V et V' sont respectivement les volumes avant et après la détente.
La taille que les bulles ont lorsqu'elles sont détendues vient comme :

$$D'_b = (1,25)^{1/3} \times D_b \approx 1,08 \times D_b \tag{2.3}$$

Ce qui correspond pour λ' (λ après détente) à $\lambda' \approx 0,93 \times \lambda$.

Cette erreur est relativement faible, mais elle peut rendre très compliqué les mesures demandant le plus de précision.

2.2.3 Mesures

Mesure des vitesses de drainage

La cellule de mesure qui contient l'échantillon contrôlé est placée en position verticale. Une caméra au bas de la colonne suit l'évolution temporelle de front de liquide drainé. Un relevé régulier de ces hauteurs de front est ensuite fait lors du traitement des données [65]. La vitesse de drainage est alors extraite de la pente de la partie linéaire de l'évolution du front (voir le schéma (a) de la figure 2.13). Une autre information apparait lors du traitement : la hauteur du front à l'équilibre, elle dépend notamment de la suspension utilisée comme l'illustre la graphique (b) de la figure 2.13.

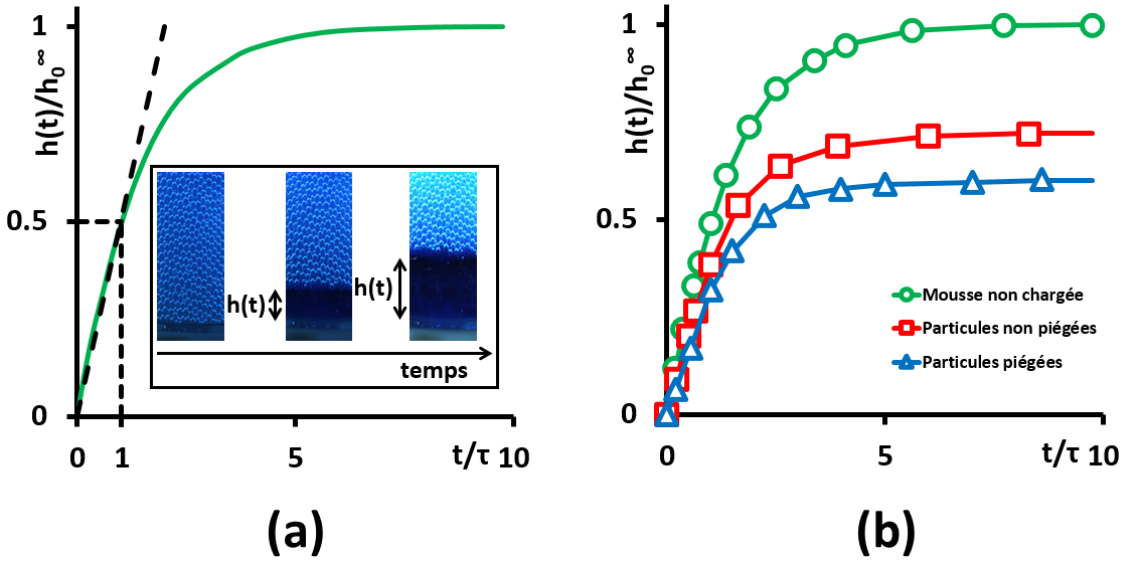


FIGURE 2.13 – (a) Hauteur de front adimensionnée par la hauteur de front à l'équilibre pour une mousse sans particule. (b) Hauteurs de front adimensionnées par la hauteur de front à l'équilibre de la mousse sans particule. La présence de particules réduit les hauteurs des fronts à l'équilibre.

L'erreur sur la mesure des vitesses de drainage est détaillée dans l'annexe B, celles sur la fraction en particules et sur λ sont aussi traitées.
L'erreur sur la vitesse de drainage s'échelonne de 6% à 8%, celle sur la fraction en particules de 2% à 4%. L'erreur sur λ est plus difficile à établir, elle dépend notamment de Φ.

Vitesses des mousses non chargées

Le graphique (a) de la figure 2.14 présente les vitesses des mousses non chargées en fonction de la taille des bulles D_b. Ces vitesses sont réduites par la vitesse de la mousse pour laquelle $D_b = 1150\ \mu m$ (la plus grande taille de bulle).
Les écarts de mesure de vitesse pour deux mêmes valeurs de D_b sont liés aux fluctuations de température ($\Delta T \approx 10°C$ sur l'ensemble de l'année) et souligne l'importance de régulièrement mesurer les vitesses des mousses non chargées pour l'adimensionnement des vitesses de celles chargées (voir le graphique (b) de la figure 2.14).

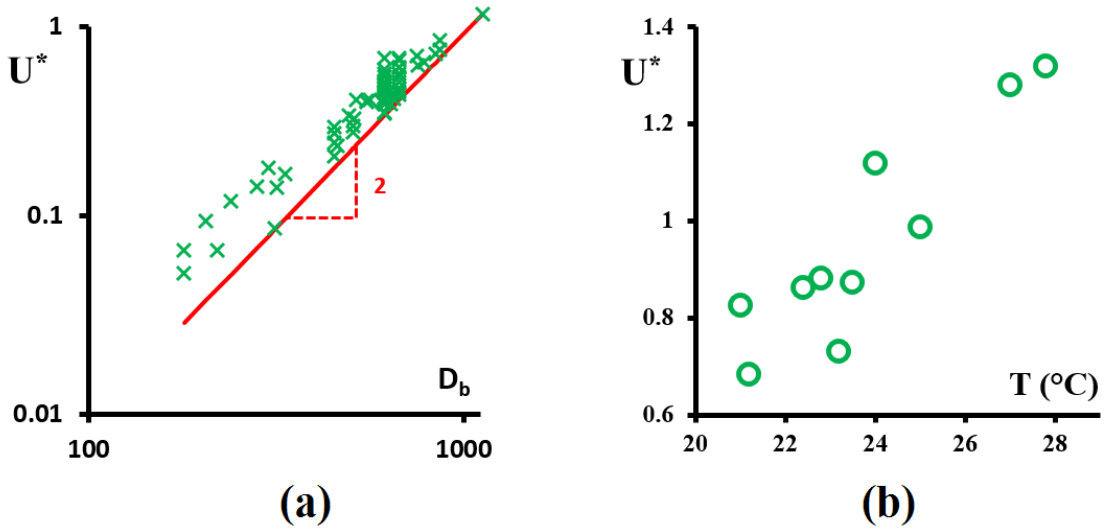


FIGURE 2.14 – (a) Vitesses de drainage des mousses non chargées en fonction de D_b à $\Phi = 0,9$. Les vitesses sont adimensionnées par la vitesse correspondant au cas $D_b = 1150\ \mu m$. (b) Vitesses adimensionnées par la moyenne des vitesses de la série en fonction de la température. $D_b = 660\ \mu m$ et $\Phi = 0,9$.

Mesure de la rétention de particules

Lorsque le drainage est terminé, la mousse est extraite de la cellule de mesure et recueillie dans un bécher, le volume de suspension est alors déduit par pesée de la façon suivante : $V \approx m/\rho$ avec ρ la masse volumique de la suspension, m est la masse de la mousse. Dans ce calcul, la masse du gaz est négligée.
Dans une seconde étape, l'échantillon de mousse est détruit par ajout d'alcool. Les particules sont récupérées, rincées à l'eau distillée puis séchées à l'étuve ($60°C$) pendant 24 heures.
Le volume de particules est également déduit par pesée. Des pesées réalisées sur des cibles connues nous permettent d'estimer l'erreur à 10% pour cette mesure.

Ces procédures visant à déterminer les volumes de suspension ou de particules retenues dans la mousse à l'équilibre ont le plus souvent été effectuées sur le volume entier de l'échantillon. Cependant, il est aussi possible de les réaliser sur plusieurs tronçons de mousse et ainsi connaître la quantité de suspension/particules retenues à une altitude donnée.
Dans ce cas, la mousse est poussée en bas de la cellule de mesure par de la solution moussante injectée à un débit imposé, la partie de mousse poussée en dehors de la cellule est récupérée (par raclage) à intervalle de temps régulier, les procédures de pesées de la suspension et des particules sont ensuite réalisées pour chaque tronçons (voir figure 2.15).

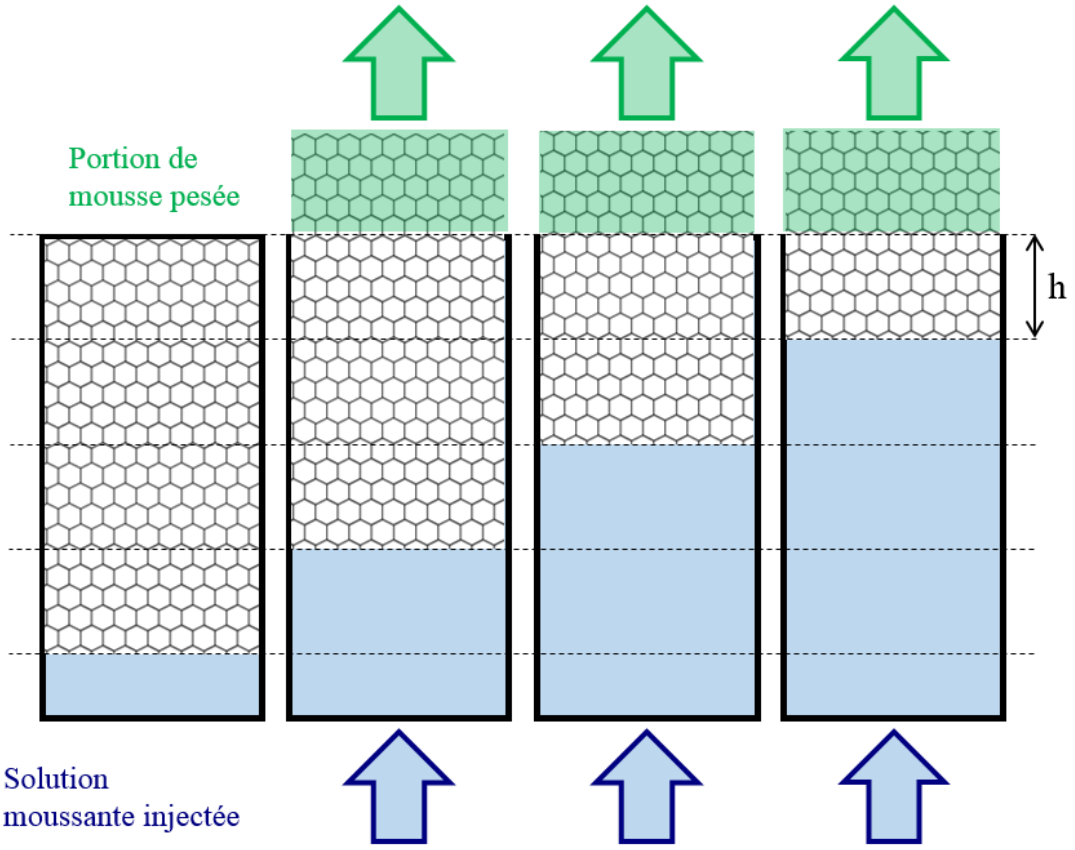


FIGURE 2.15 – Schéma montrant comment les profils de suspension et de particules sont déterminés. Un volume de solution moussante est injecté en bas de la colonne, il pousse un volume équivalent de mousse, prélevé en sortie de cellule, pour ce dernier volume, les quantités de suspension est de particules sont déterminées par pesées. Ces opérations sont répétées aux différentes altitudes de la mousse.

2.3 Schéma récapitulatif

Le schéma de la figure 2.16 résume le dispositif utilisé pour la production et la caractérisation des échantillons de mousses de suspension. Les cinq étapes suivantes y sont détaillées :

— **A** Production de bulles de diamètre D_b. i) En utilisant une jonction en T. ii) A l'aide d'une aiguille. iii) Stockage de la mousse dans une colonne verticale à la fraction gazeuse Φ_0 fixée par l'humidification au débit q_0.

— **B** Mélange de la mousse et de la suspension. A cette étape, la fraction gazeuse devient : $Q_1 = (\Phi_0 Q_1) \,/\, (Q_1 + Q_2)$ et celle en particules : $\varphi_p^1 = \left(\varphi_p^0 Q_2\right) \,/\, ((1-\Phi_0)\, Q_1 + Q_2)$ où φ_p^0 est la fraction granulaire de la suspension initiale, alors que Q_1 et Q_2 sont respectivement les débits de mousse et de suspension.

— **C** Remplissage de la cellule de mesure (en rotation). Il s'effectue au débit $Q_3 =$

$Q_1 + Q_2$.

— **D** Assèchement. i) Au début de cette étape, pour le mélange mousse/suspension la fraction gazeuse, la fraction granulaire et λ sont respectivement Φ_1, φ_p^1 et λ_1. ii) On laisse la mousse drainer et atteindre son équilibre. iii) Simultanément du liquide est pompé en bas de la cellule et le piston descend de façon à ne pas détendre la mousse. iv) La cellule est mise en position horizontale, de la solution moussante est injectée pour atteindre Φ, λ et φ_p.

— **E** Relevé des hauteurs de front. De cette information on déduit les vitesses de drainage et les hauteurs d'équilibre.

Avec ce dispositif, nous pouvons produire trois types de mousse :

— La mousse non chargée en suspension (le chemin **0** sur le schéma).
— La mousse chargée et fabriquée sans l'étape **D** (le chemin **C** sur le schéma).
— La mousse chargée et asséchée, fabriquée avec l'étape **D** (le chemin **A** sur le schéma).

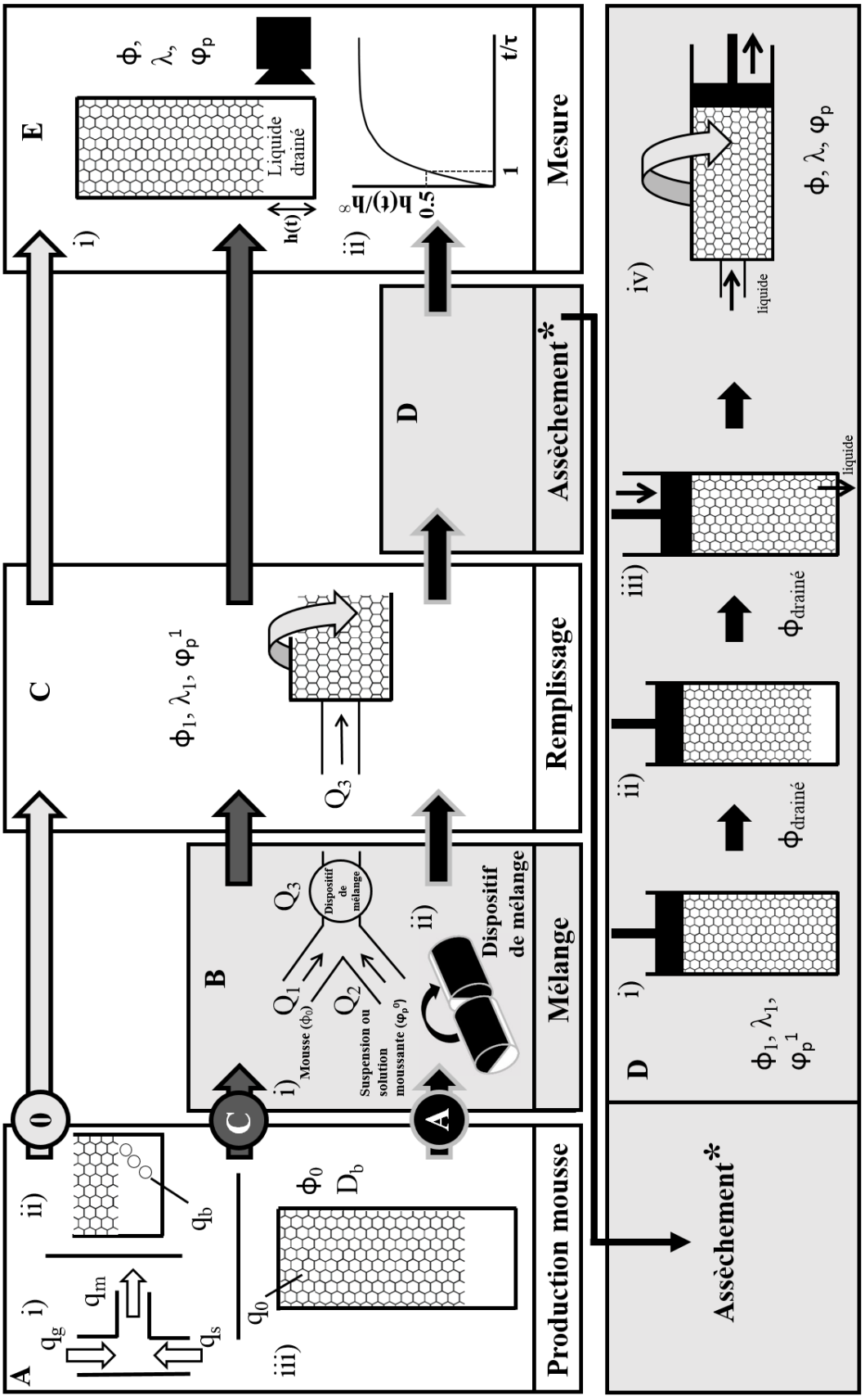


FIGURE 2.16 – Schéma du montage pour la production des échantillons et leur caractérisation.

Chapitre 3

Rétention

Sommaire

3.1 Introduction 66
3.2 Des particules dans la mousse 67
3.2.1 Observation des échantillons 67
3.2.2 Profil de mousses chargées 68
3.3 Rétention de particules 69
3.3.1 Modèles d'empilement de billes 73
3.3.2 Empilement dans un bord de *Plateau* modèle 81
3.3.3 Les zones de rétention dans la mousse 86
3.3.4 Modélisation 89
3.4 Rétention capillaire 93
3.4.1 Rétention de liquide : le rôle de φ_p 93
3.4.2 Échantillons drainant très peu : le rôle de λ 95
3.5 Conclusion 97

3.1 Introduction

Cette première partie de résultats est consacrée à la rétention de la suspension par la mousse. Les mesures sont réalisées une fois le drainage terminé. Cependant, la rétention concerne les deux régimes de drainage (voir figure 1.13). Elle dépend en particulier du rapport des tailles des particules et des constrictions du réseau.

Pour une mousse liquide, la fin du drainage correspond à l'équilibre entre la capillarité et la gravité. Dans le cas de mousses chargées, on s'intéresse à deux choses : la quantité de particules retenues et la quantité éventuelle de liquide retenu par capillarité en plus des particules.

Cette partie débute par une observation qualitative d'échantillons de mousse de suspension, ces images montrent les systèmes à l'échelle microscopique. Des profils de fraction interstitielle $(1 - \Phi(z))$ de mousses chargées sont ensuite comparés au cas d'une mousse non chargée, l'effet de φ_p est souligné. Puis, des mesures de rétention de particules par l'ensemble de la mousse en fonction de Φ, D_b et d_p sont traitées, elles font apparaître λ comme un paramètre pertinent de cette étude. Nous discutons également de la rétention en particules lors du premier régime de drainage, elle sera utile pour la modélisation des vitesses de drainage.

De plus, nous traitons le remplissage du réseau par les particules de la suspension. Nous observons qu'il est très dépendant de λ et nous le modélisons. Des images viennent appuyer ce travail, elles illustrent des configurations d'empilement très particulières, observées pour certaines valeurs de d_p, D_b, Φ et φ_p qui est l'autre paramètre au centre de cette étude. Dans ce qui suit, la modélisation de la rétention de particules par le réseau de la mousse est proposée.

Finalement, l'exploitation des mesures des hauteurs de front de suspension drainée hors de la mousse conduisent à quantifier le liquide retenu par rétention capillaire.

3.2 Des particules dans la mousse

Nous voulons comprendre comment les particules et la suspension se retrouve piégées dans la mousse après le drainage et quels sont les paramètres qui pilotent la rétention. Pour y répondre, nous commençons par observer au microscope les mousses chargées puis, nous mesurons les quantités de suspension retenue aux différentes altitudes.
Ces premières mesures montrent que l'ajout de particules a des conséquences sur l'état final des mousses.

3.2.1 Observation des échantillons

Les systèmes de mousses chargées des photos suivantes illustrent le remplissage du réseau par les particules. Ce sont des échantillons de mousses de suspension écrasés entre deux lames de verre. L'observation est réalisée au microscope.

La figure 3.1 est la photo d'une mousse chargée d'environ cinq millimètres de hauteur. Les bords de *Plateau* en paroi sont plus gros qu'en volume. Dans le cas de cette mousse chargée, les particules sont suffisamment petites pour avoir accès à tout le réseau. Dès ces premières observations, on se doute que la taille des particules et celle des constrictions du réseau vont être des paramètres essentiels pour la description de la rétention de particules par la mousse.

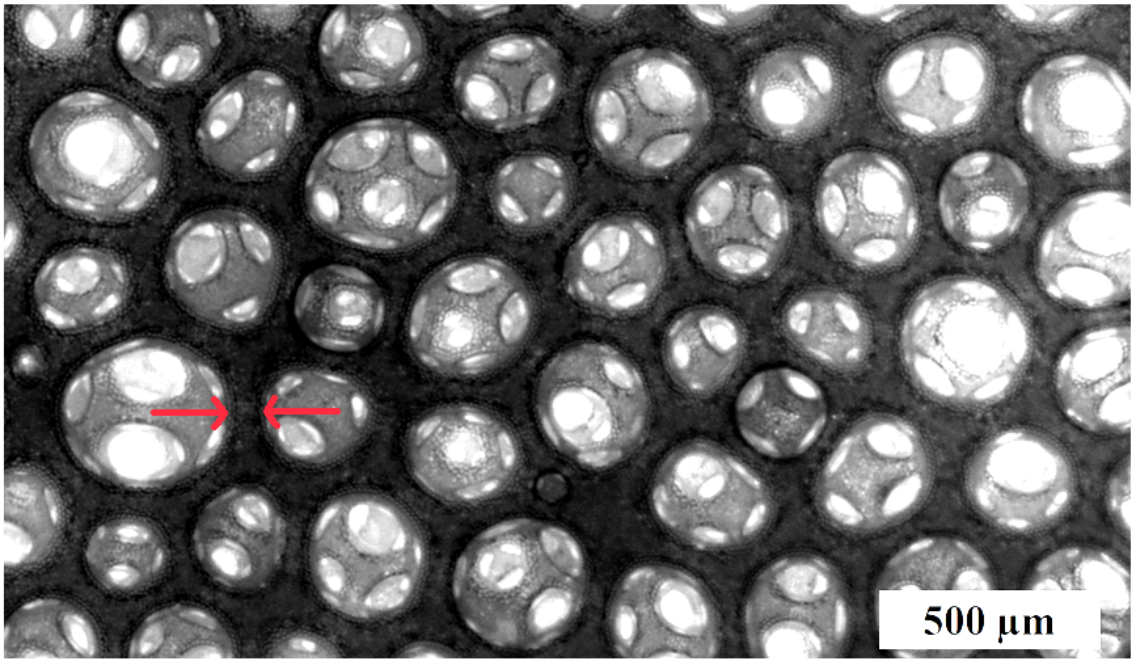


FIGURE 3.1 – Vue entre deux lames de verre d'une mousse chargée. Les flèches rouges sont placées au niveau d'une constriction du réseau. $D_b = 250\ \mu m$, $d_p = 15\ \mu m$.

L'effet des particules sur le disproportionnement n'est pas traité dans cette thèse, cependant, nous montrons à titre illustratif la figure 3.2 qui est un cliché d'une mousse chargée après plusieurs heures de mûrissement (mousse sans perfluorohexane).

Sur cette photo, on observe que les particules sont piégées dans le réseau et exclues des bords de *Plateau* qui sont très petits, elles se regroupent en paquets dans les vertex. Cet échantillon a été produit à $D_b = 250\ \mu m$, on remarque que les bulles ont fortement grossi, pour certaines d'entre elles on mesure $D_b > 500\ \mu m$.

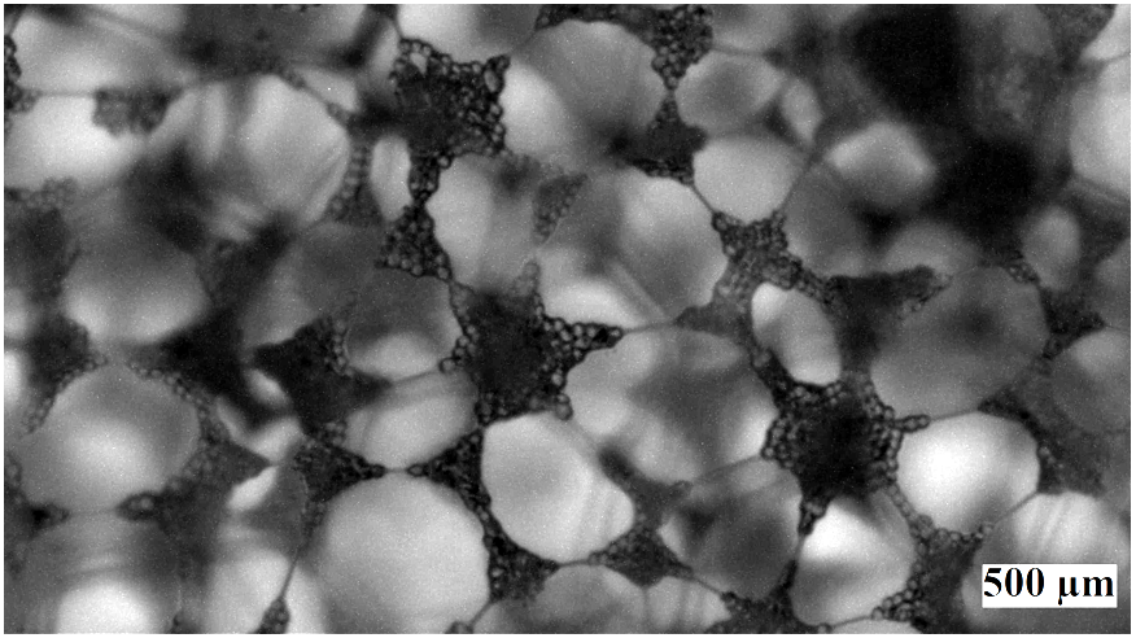


FIGURE 3.2 – Une mousse chargée après plusieurs heures de mûrissement. Initialement : $D_b = 250\ \mu m$, $d_p = 40\ \mu m$.

Les mesures de rétention pouvant être réalisées plusieurs heures après la production de l'échantillon, la figure 3.2 montre la nécessité de limiter le mûrissement (par ajout de perfluorohexane).

3.2.2 Profil de mousses chargées

Les mesures présentées ici ont été réalisées par pesées successives de "tranches" de mousse (voir figure 2.15 de la partie sur le système).

Le graphique de la figure 3.3 donne la fraction interstitielle en fonction de l'altitude pour une mousse non chargée et des mousses chargées pour trois valeurs de φ_p à l'état initial.
Pour ces mousses nous avons $D_b = 660\ \mu m$, $\Phi = 0,9$ à l'état initial ainsi, les tailles de constrictions sont telles que $d_{passage} \approx 46\ \mu m$ (équation 1.53). Les mousses de suspension étant chargées avec des particules de $d_p = 20\ \mu m$, il n'y a pas de capture à l'état initial. Malgré cela, la proportion de suspension retenue à l'équilibre augmente avec φ_p. Ces mesures montrent donc que le réseau rétrécit pendant le drainage.

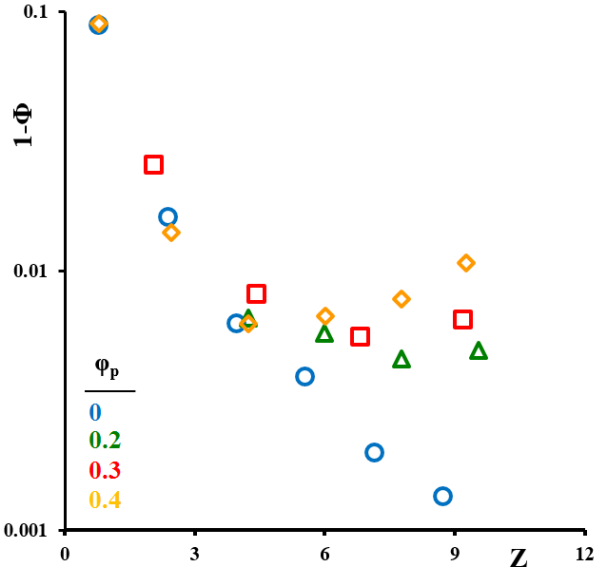


FIGURE 3.3 – $(1 - \Phi(z))$ pour une mousse telle que $D_b = 660\ \mu m$ et $d_p = 20\ \mu m$. A l'état initial, on a $\Phi = 0,9$. Les φ_p initiaux sont indiqués sur la légende de la figure.

3.3 Rétention de particules

Nous nous interressons maintenant à la quantité de particules retenues par l'ensemble de la mousse à la fin du drainage. Les mesures de la rétention de particules que nous présentons ont été déduites par pesée de la mousse après drainage (procédure décrite dans la partie sur le système : *Mesure de la rétention de particules*).

Les graphiques de la figure 3.4 présentent le pourcentage R de particules retenues à la fin du drainage en fonction de Φ, d_p et D_b pour $\varphi_p = 0,16$.
Nous remarquons sur la graphique (a) que R augmente avec Φ : l'augmentation de la fraction gazeuse conduit à la diminution de la taille des constrictions du réseau de la mousse (équation 1.53).
Lorsque la taille des particules augmente (graphique (b)), R augmente également : le rapport de la taille des particules et de celle des constrictions augmente lui aussi.
Enfin, nous voyons sur le graphique (c) que R diminue quand D_b augmente : les constrictions s'élargissent lorsque la taille des bulles augmente (équation 1.53).

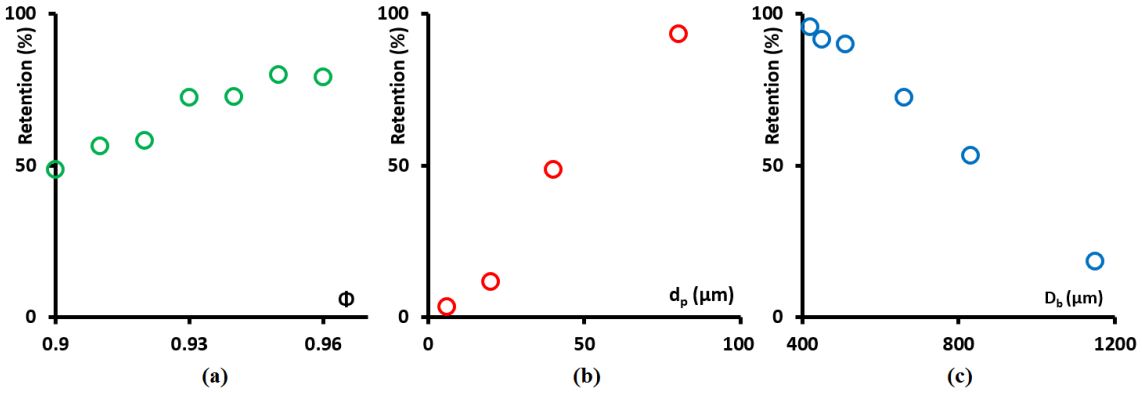


FIGURE 3.4 – Rétention de particules à $\varphi_p = 0,16$. (a) Rétention en fonction de Φ, $D_b = 660\ \mu m$ et $d_p = 40\ \mu m$. (b) Rétention en fonction de d_p, $D_b = 660\ \mu m$ et $\Phi = 0,9$. (c) Rétention en fonction de D_b, $d_p = 40\ \mu m$ et $\Phi = 0,93$.

Les graphiques de la figure 3.4 nous montrent combien le rapport des tailles des particules et des constrictions est important. Il dépend à la fois de Φ, D_b et d_p.
Les travaux réalisés sur la capture individuelle (voir équation 1.53 et figure 1.20) nous permettent de l'exprimer ainsi :

$$\lambda = \frac{1 + 0,57\,(1-\Phi)^{0,27}}{0,27\sqrt{1-\Phi} + 3,17\,(1-\Phi)^{2,75}} \frac{d_p}{D_b} \tag{3.1}$$

λ apparaît comme le paramètre clé de la rétention, les données de la figure 3.4 sont tracées en fonction de λ sur le graphique (a) de la figure 3.5.

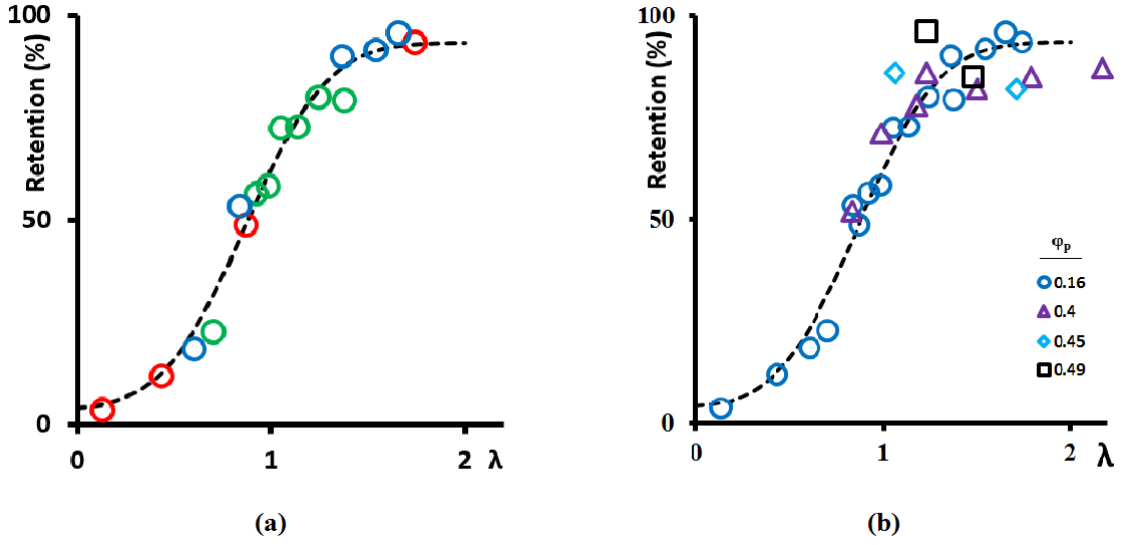


FIGURE 3.5 – (a) Rétention en fonction de λ. Cercles verts, λ varié avec Φ. Cercles rouges, λ varié avec d_p. Cercles bleus, λ varié avec D_b. (b) Figure complétées avec des données à $\varphi_p \neq 0,16$.

Le graphique (b) de la figure 3.5 donne des données de rétention à $\varphi_p \neq 0,16$, elles ne

présentent pas de comportement singulier.

La rétention déduite par pesée lorsque la mousse a atteint son équilibre est une mesure de la quantité de particules piégées au cours des deux régimes de drainage. Néanmoins, les mesures de rétention peuvent être exploitées uniquement sur le premier régime.

Premier régime de drainage

Nous savons que pendant le drainage, la fraction volumique en gaz Φ des parties de la mousse situées au dessus du front de drainage augmente au cours du temps (voir l'état de l'art : *Un mécanisme de vieillissement : le drainage*).

Tant que $t < \tau$, les conditions de drainage sont celles imposées par les conditions initiales, $\Phi = \Phi_0$ (schéma (a) figure 3.6). D'autre part, pour $t = \tau$ (voir équation 1.50), la moitié de la phase interstitielle à drainer pour atteindre l'équilibre a été drainée hors de la mousse (schéma (b) figure 3.6). Enfin, dès lors que $t > \tau$, les conditions d'écoulement changent, le réseau rétrécit et le débit du liquide drainant diminue jusqu'à s'annuler (schéma (c) figure 3.6). Dans le cas d'une mousse chargée, cette diminution de la taille des pores du réseau se traduit par l'augmentation de λ et peut conduire à de la capture si λ devient plus grand que 1.

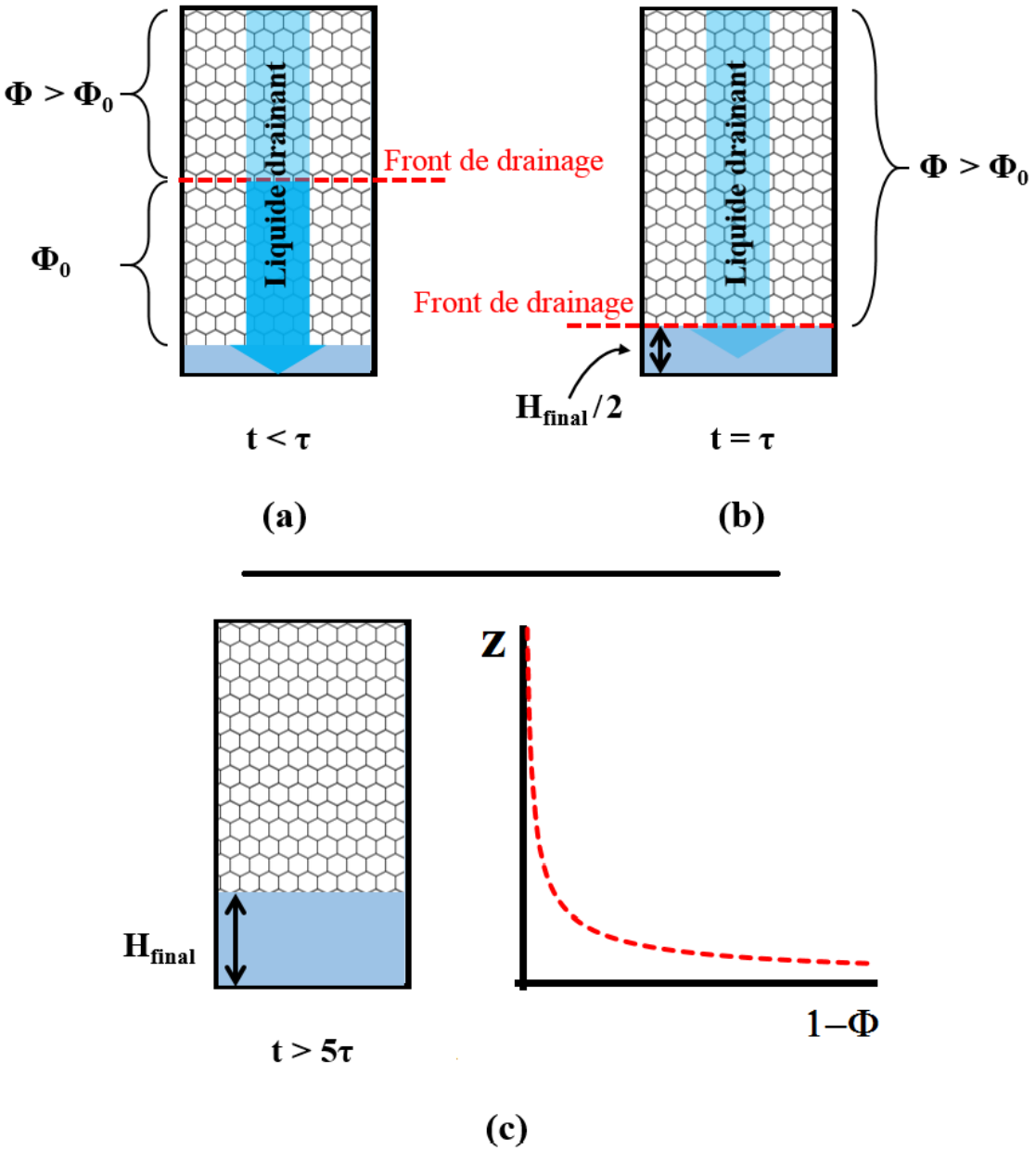


FIGURE 3.6 – Différentes étapes du drainage : (a) Premier régime ($t < \tau$), le front de drainage (droite en pointillés rouges) sépare la mousse en deux zones. En dessous de ce front, le liquide s'écoule à débit constant dans les conditions initiales (Φ_0), au dessus, le retrait du liquide a augmenté la fraction en gaz, les pores du réseau sont plus petits ($\Phi > \Phi_0$). (b) ($t = \tau$) Le front de drainage atteint le bas de la colonne, c'est la fin du premier régime, la moitié du liquide à drainer pour atteindre l'équilibre a été drainé hors de la mousse. (c) C'est le second régime ($t > \tau$), l'écoulement est de plus en plus lent, on s'achemine peu à peu vers la fin du drainage et l'équilibre capillarité/gravité. Le profil tracé en pointillés rouges donne la fraction liquide à l'équilibre pour chaque altitude.

Capture des particules lors du premier régime de drainage

Nous proposons une expression de la rétention en fonction de λ pour la capture lors du premier régime, elle sera utile prochainement pour les vitesses de drainage.

Les mesures de rétention sont réalisées une fois le drainage terminé, nous mesurons les rétentions liées aux deux régimes.
Pour exploiter les mesures de rétention uniquement sur le premier régime, nous ne devons pas tenir compte des données qui concernent $\lambda < 1$ (graphique (a) figure 3.5) car il ne peut y avoir de rétention dans les parties situées sous le front de drainage lorsque initialement λ est compris entre 0 et 1 (voir schéma (a) de la figure 3.6).

Les mesures restantes de rétention ($\lambda > 1$) sont normalisées pour exprimer la proportion de particules capturées pendant le premier régime. En supposant que la moitié de la suspension à drainer est drainé lorsque $t = \tau$ (équation 1.50), on écrit :

$$R_\tau = 2\left(R - \frac{1}{2}\right) \tag{3.2}$$

ξ_τ qui ajuste R_τ est tracée sur la figure 3.7, elle correspond à l'équation suivante :

$$\xi_\tau = \frac{5}{4}\lambda - \frac{9}{8} \tag{3.3}$$

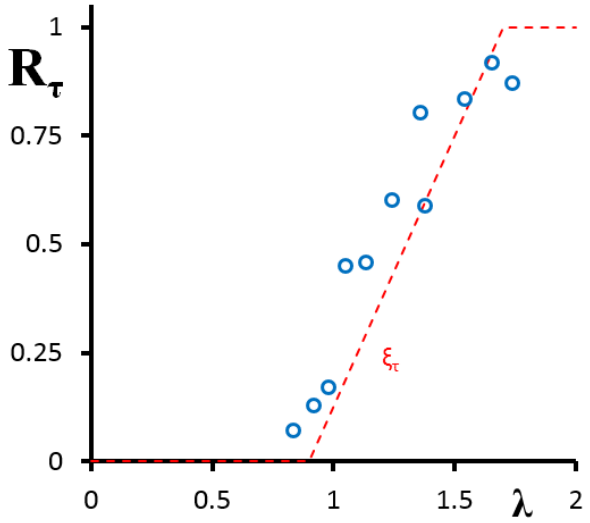


FIGURE 3.7 – R_τ et ξ_τ. Les mesures (ronds bleus) sont réalisées à $\varphi_p = 0,16$ et $\Phi = 0,9$.

3.3.1 Modèles d'empilement de billes

Cette partie à pour objectif la modélisation des empilements de billes dans le réseau de la mousse en fonction de λ et φ_p.

Assemblée bidisperse de billes

Dans cette partie, l'effet du confinement des particules de la suspension dans le réseau est comparé à des résultats connus pour des billes de petite taille confinées dans les pores

formés par des billes plus grosses, elles aussi empilées.

Nous avons vu précédemment que le réseau d'une mousse pouvait être pavé par un motif élémentaire constitué d'un vertex et de quatre moitiés de bord de *Plateau* (voir le schéma (b) de la figure 1.3).
En se limitant au régime des vertex, on modélise un vertex idéal par le volume interstitiel que forme un tétraèdre de quatre billes. La compacité de petites billes empilées dans une assemblée de grosses billes est utilisée comme modèle donnant la compacité pour des billes dans le réseau interstitiel de la mousse.

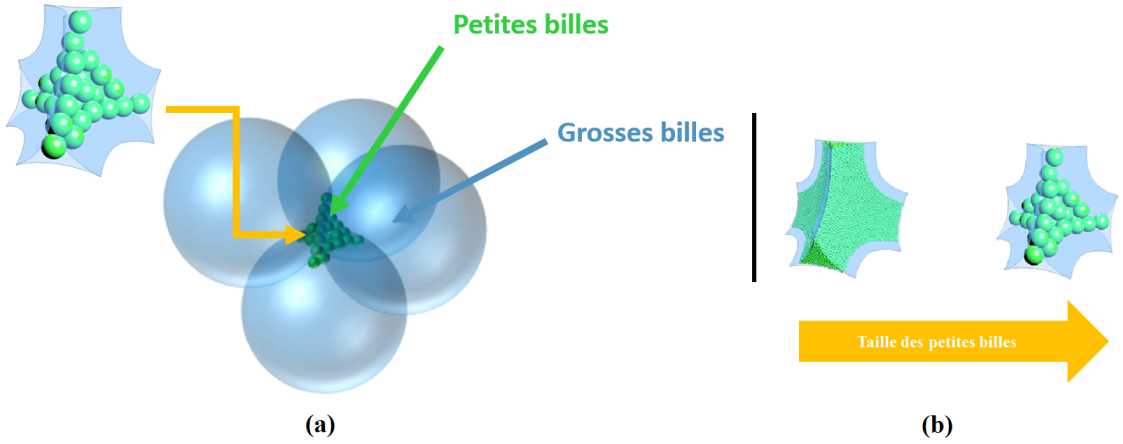


FIGURE 3.8 – (a) Petites billes empilées dans l'interstice d'un tétraèdre modèle formé de quatre billes. (b) Schémas illustrant que le rapport des tailles des grosses et des petites billes conduit à des remplissages très différents.

La figure 3.8 montre comment est réalisé ce vertex modèle, on voit également (à droite sur cette même figure) que plus les billes sont grosses, moins elles encombrent le vertex. L'augmentation de la taille des billes sans changer la taille du vertex correspond à une augmentation de λ.

La figure 3.9 montre des particules dans le réseau d'une mousse, elles sont suffisamment petites pour y circuler, on en trouve dans les vertex et dans les bords de *Plateau* mais pas dans les films. Cette configuration correspond à $\lambda < 0,3$.
Cette image montre des bords de *Plateau*, on y voit les particules s'y empiler, en laissant les coins libres.

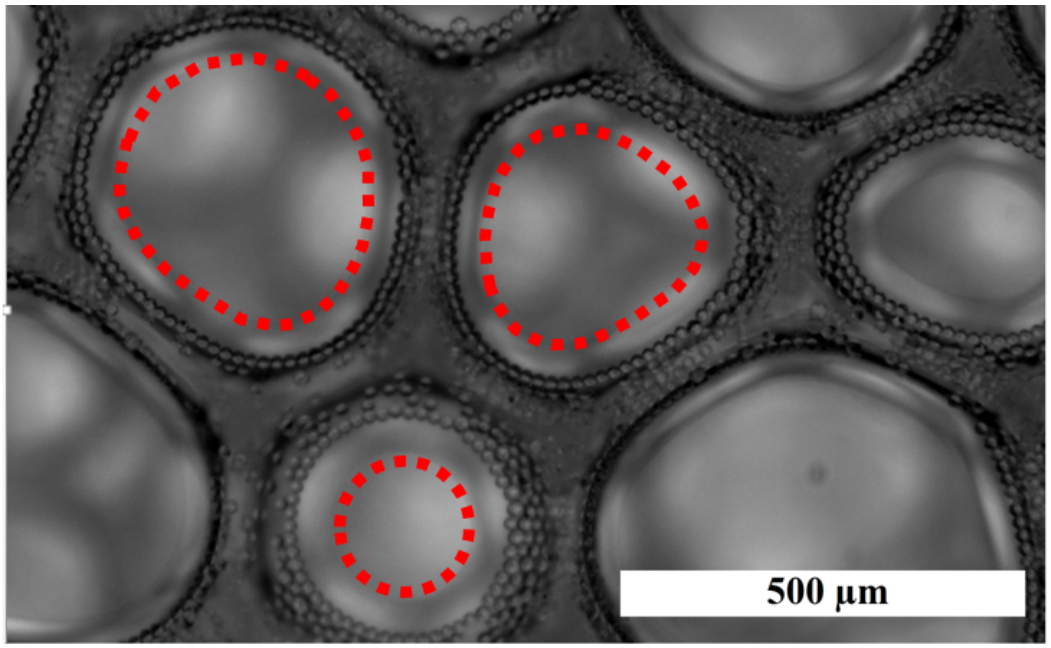


FIGURE 3.9 – Zoom de la surface libre d'une mousse chargée, échantillon d'environ cinq millimètres de hauteur. $D_b = 500\ \mu m$, $d_p = 15\ \mu m$. Les pointillés rouges délimitent certains films.

Sur la figure 3.10, λ est plus grand. Les particules occupent majoritairement les vertex où elles sont empilées en pyramide, ici $\lambda \approx 0,8$.

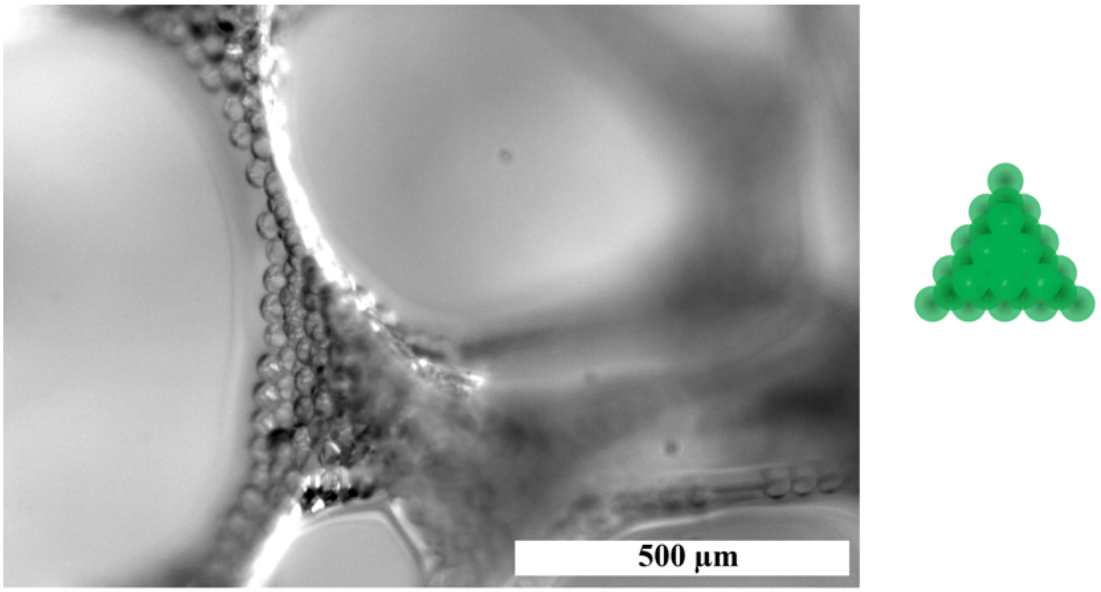


FIGURE 3.10 – (a) Bord de *Plateau* d'une mousse chargée, échantillon d'environ cinq millimètres de hauteur. $D_b = 800\ \mu m$, $d_p = 40\ \mu m$. (b) Les particules de la suspension forment des tétraèdres dans les vertex.

Ce modèle de vertex idéal est surtout valable pour les mousses humides, lorsque les bulles ne sont pas trop déformées. Dans le cas de mousses plus sèches, les volumes des vertex sont considérablement réduits et le modèle devient moins pertinent.

Nous considérons à présent une assemblée bidisperse de billes et nous cherchons à connaître la compacité $\varphi^{bidisperse}$ de l'ensemble du mélange. Ce problème a été traité de la façon suivante [67–71] :

Premièrement en considérant un système de petites billes à la fraction maximale d'empilement, on y ajoute des grosses billes qui remplacent un volume équivalent de petites billes empilées. Les grosses billes comblent ainsi localement les micro-vides anciennement associés au petites billes. La fraction d'empilement globale est alors augmentée. L'ajout de grosses billes se poursuit jusqu'à ce qu'elles atteignent elles-mêmes une fraction d'empilement maximale alors que les petites billes occupent les interstices laissés par les grosses.

Dans un second temps, on part d'un système de grosses billes à la fraction maximale d'empilement. Les petites billes sont alors insérées dans les espaces vides formés par les grosses, sans affecter la structure de ces dernières. Ce processus se poursuit jusqu'à ce que les macro-vides associés aux grosses particules soient complètement remplis de petites billes, elles aussi à la leur fraction maximale d'empilement.

Les deux branches de ce modèle conduisent à une même situation limite, correspondant à un empilement dense de grosses billes dans lesquelles des petites billes sont elles aussi empilées.
La limite maximale de compacité globale de cet empilement bidisperse s'écrit alors :

$$\varphi_{max}^{bidisperse} = \varphi_{max}^{monodisperse} + \left(1 - \varphi_{max}^{monodisperse}\right) \varphi_{max}^{monodisperse} \tag{3.4}$$

Ainsi, en prenant $\varphi_{max}^{monodisperse} = 0,64$ (milieu infini sans interactions entre les particules) on obtient : $\varphi_{max}^{bidisperse} \approx 0,87$.

Modèle de de Larrard

Pour ce modèle, nous introduisons Λ et χ_F, avec $d_{petites}$ et $d_{grosses}$ respectivement les diamètres des petites et des grosses billes. $V_{petites}$ et $V_{grosses}$ sont les volumes respectifs des petites et des grosses billes, il vient alors :

$$\Lambda = \frac{d_{grosses}}{d_{petites}} \tag{3.5}$$

et

$$\chi_F = \frac{V_{petites}}{V_{petites} + V_{grosses}} \tag{3.6}$$

La polydispersité conduit à des systèmes plus denses. Cependant, cette valeur limite n'a de sens que lorsque : $\Lambda \gg 1$.

A mesure que Λ diminue, le confinement engendre du volume exclu, ce qui conduit à diminuer la valeur de $\varphi_{max}^{bidisperse}$.

De Larrard puis *Bournonville* [67, 71] ont proposé un modèle donnant la fraction maximale d'empilement pour une assemblée bidisperse de grains sphériques secs en fonction de Λ et χ_F.
Ce modèle permet le calcul des deux fonctions suivantes : $\varphi_{petites}$ et $\varphi_{grosses}$.

$$\varphi_{petites} = \frac{\varphi_{max}^{petites}}{1-(1-\chi_F)\left[1-\varphi_{max}^{petites}+b_{CF}\left(\varphi_{max}^{petites}-\varphi_{max}^{petites}/\varphi_{max}^{grosses}\right)\right]} \tag{3.7}$$

$$\varphi_{grosses} = \frac{\varphi_{max}^{grosses}}{1-\chi_F\left(1-a_{CF}\varphi_{max}^{grosses}/\varphi_{max}^{petites}\right)} \tag{3.8}$$

Avec $\varphi_{max}^{petites}$ et $\varphi_{max}^{grosses}$ les compacités maximales d'empilement, respectivement des petites et de grosses particules.
a_{CF} et b_{CF} sont deux fonctions déterminées expérimentalement :

$$a_{CF} = \left(1-\left(1-\frac{1}{\Lambda}\right)^{1,13}\right)^{0,57} \tag{3.9}$$

$$b_{CF} = \left(1-\left(1-\frac{1}{\Lambda}\right)^{1,79}\right)^{0,82} \tag{3.10}$$

Pour se rapporter au cas des mousses chargées en particules, nous ajoutons les hypothèses suivantes :

- les compacités maximales d'empilement en milieu infini sont prises pour les grosses comme pour les petites particules comme : $\varphi_{max}^{petites} = \varphi_{max}^{grosses} = \varphi_{max} = 0,64$.
- Les vertex sont supposés rigides, on considère le desserrement nul, autrement dit, les petites particules ne peuvent changer la structure des grosses : $a_{CF} = 0$.
- La fraction donné par $\varphi_{petites}$ correspond à la fraction des particules de la suspension dans le vertex idéal : $\varphi_{petites} = \varphi_{vertex}$.

Ces hypothèses nous permettent de réécrire les équations 3.7 et 3.8 de cette façon :

$$\varphi_{vertex} = \frac{\varphi_{max}}{1-(1-\chi_F)\left[1-\varphi_{max}+b_{CF}\left(\varphi_{max}-1\right)\right]} \tag{3.11}$$

$$\varphi_{grosses} = \frac{\varphi_{max}}{1-\chi_F} \tag{3.12}$$

La fraction maximale d'empilement de l'ensemble des billes (petites et grosses) est donnée par :

$$\varphi^{bidisperse} = min\left(\varphi_{grosses}, \varphi_{vertex}\right) \tag{3.13}$$

Les relations 3.11 et 3.12 sont tracées sur la figure 3.11.

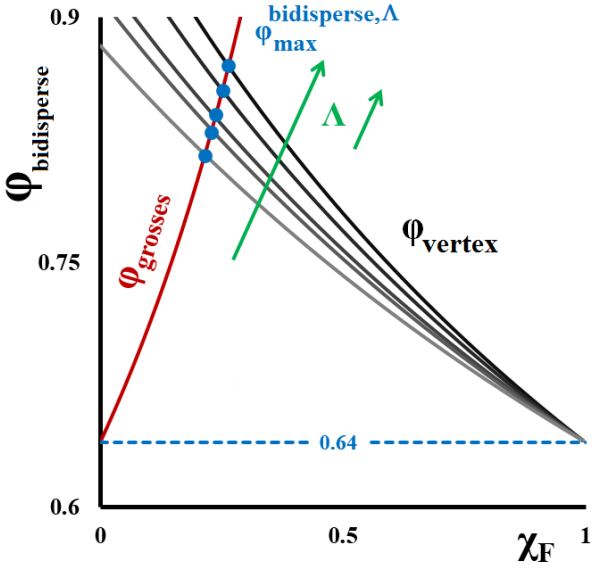


FIGURE 3.11 – $\varphi_{grosses}$ et φ_{vertex} en fonction de χ_F. φ_{vertex} est donné pour différentes valeurs de Λ. Ces courbes sont tracées avec les équations 3.11 et 3.12. Points bleus $\varphi_{max}^{bidisperse,\Lambda}$. Ce graphique illustre notamment que la compacité globale diminue quand Λ diminue.

Pour un Λ donné, $\varphi_{max}^{bidisperse,\Lambda}$ est la compacité maximale de l'assemblée des petites et des grosses billes (points bleus sur la figure 3.11). Elle correspond à une valeur de χ_F. $\varphi_{max}^{bidisperse,\Lambda}$ permet de déduire φ_{vertex}^*, les valeurs maximales de φ_{vertex} pour les Λ considérés. Elles sont tracées sur le graphique de la figure 3.12. On y voit que φ_{vertex}^* tend rapidement vers une asymptote d'équation $\varphi_{vertex}^* = 0,64$ correspondant à la valeur qui a été prise pour la fraction maximale d'empilement monodisperse en milieu infini. En effet, lorsque Λ devient très grand, les effets de bord ressentis par les petites particules dans le réseau formé des grosses deviennent négligeables et elles s'y empilent comme dans un milieu infini.

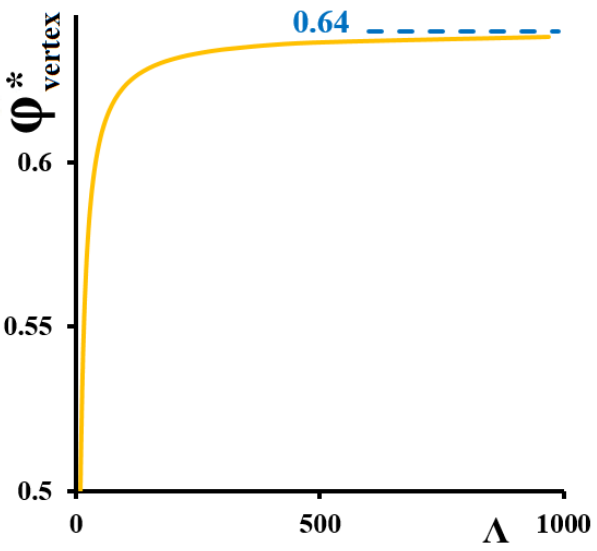


FIGURE 3.12 – φ^*_{vertex} la compacité des petites particules dans le réseau formé par les grosses particules en fonction du rapport de leur diamètre Λ.

Nous avons utilisé un modèle de mélange bidisperse pour décrire le remplissage des vertex idéaux par des particules. Ainsi, les petites particules considérées jusqu'à présent correspondent aux particules de la suspension, elles ont un diamètre d_p alors que le rayon des grosses particules correspond au rayon des sphères qui forment le vertex idéal (différent du rayon des bulles dès lors qu'elles ne sont plus sphériques) notons ce rayon de courbure r_{vertex}.

D'autre part, l'équation 1.23 nous renseigne qu'à $\Phi = 0,9$ le volume d'un vertex vaut :

$$V_{vertex} \approx 0,9r^3 \tag{3.14}$$

Rappelons que r est le rayon de courbure du bord de *Plateau*.

En égalisant cette dernière équation avec 1.21, on trouve : $r_{vertex} \approx 1,5r$. Enfin, en utilisant l'équation 1.8, on obtient :

$$\Lambda = \frac{1,5}{\left(\frac{2}{\sqrt{3}} - 1\right)\lambda} \tag{3.15}$$

Nous pouvons désormais tracer φ^*_{vertex} en fonction de λ (figure 3.13).
Le modèle d'empilement bidisperse montre une décroissance monotone de φ^*_{vertex} avec λ. On retrouve bien la valeur de compacité maximale de 64% correspondant au milieu infini pour $\lambda = 0$, alors qu'autour de $\lambda = 1$, on constate que $\varphi^*_{vertex} < 0,5$.

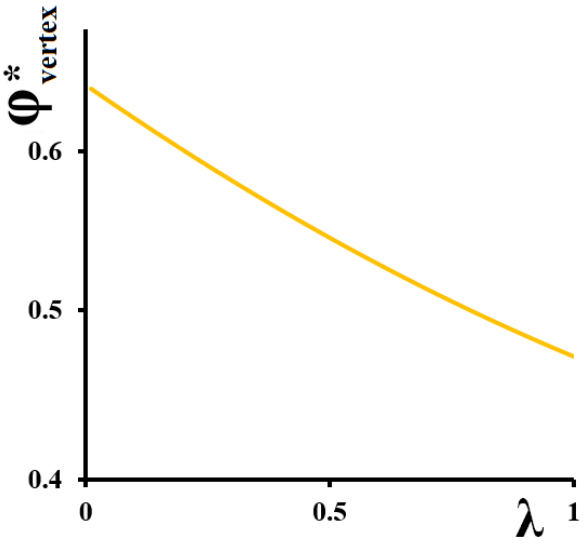


FIGURE 3.13 – En jaune, φ^*_{vertex} en fonction de λ, tracé à l'aide du modèle de compacité bidisperse.

Commentaires sur le modèle de compacité bidisperse

Le principal point qui doit nous faire nuancer les résultats donnés par le modèle de compacité bidisperse est lié à la difficulté de définir un rayon de courbure pour le vertex. Nous avons estimé la valeur de r_{vertex} géométriquement mais on peut aussi le calculer en prenant en compte l'équilibre des pressions qu'il doit y avoir dans la mousse. En particulier, l'égalité entre les points A et B du schéma de la figure 3.14 nous permet d'écrire :

$$\frac{1}{r_1^A} + \frac{1}{r_2^A} = \frac{1}{r_1^B} + \frac{1}{r_2^B} \tag{3.16}$$

En considérant ensuite que $r_1^B = r_2^B = r_{vertex}$, que $r_1^A \approx r$ et $r_1^A \ll r_2^A$, nous obtenons :

$$r_{vertex} = 2r \tag{3.17}$$

Notons que cette valeur reste relativement peu éloignée de celle trouvée par le calcul géométrique ($r_{vertex} \approx 1,5r$)

Le schéma de la figure 3.14 illustre que les vertex ont une géométrie complexe, les rayons de courbure r_1^A et r_1^B sont très différents.

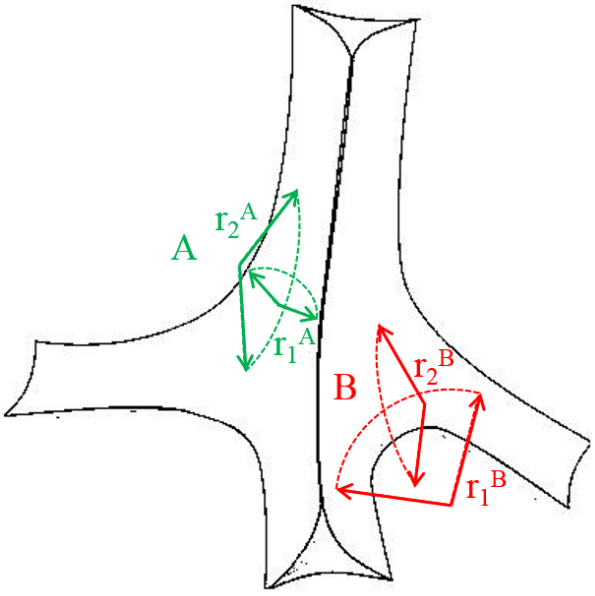


FIGURE 3.14 – Schéma de vertex et rayons de courbure.

Avec le vertex, l'autre élément du réseau de la mousse est le bord de *Plateau*, dans la partie qui suit, nous discutons de l'empilement dans une telle géométrie.

3.3.2 Empilement dans un bord de *Plateau* modèle

Dans cette partie, nous nous intéressons à l'empilement de particules sphériques monodisperses dans un bord de *Plateau*. Nous considérons alors un bord de *Plateau* idéal, ayant un unique rayon de courbure r. Ce motif correspond à l'interstice que forment trois cylindres au contact (voir le shéma (a) de la figure 3.15).
La compacité de billes monodisperses dans ce type de géométrie à été mesurée expérimentalement puis modélisée.

Pour les mesures, des cylindres de différents diamètres ont été utilisés, permettant de modéliser des bords de *Plateau* de rayon de courbure tel que : $11,5 < r < 40\ mm$. Des billes de verre de densité $\rho_{verre} = 2,5\ kg/L$ ont servi à remplir le vide formé par les trois cylindres (voir les photos en (b) de la figure 3.15). Les diamètres des billes utilisées ont varié de $1,5\ mm$ à $10\ mm$.
Dans ces conditions, nous avons pu mesurer des compacités pour $0,15 < \lambda < 1$. Ces compacités ont été déduites par pesée, elles sont tracées sur la figure 3.18 (ronds bleus). On remarque sur ce graphique que la compacité diminue quand λ augmente, le comportement est linéaire jusqu'à $\lambda \approx 0,5$ puis les mesures sont plus dispersées pour la plage : $0,5 < \lambda < 1$.

Lorsque λ est très petit, la compacité tend vers celle d'un milieu infini (64%). A mesure que λ augmente, les effets de bord se font de plus en plus importants, les effets de volume exclu sont plus forts et la valeur de la compacité maximale d'empilement diminue.

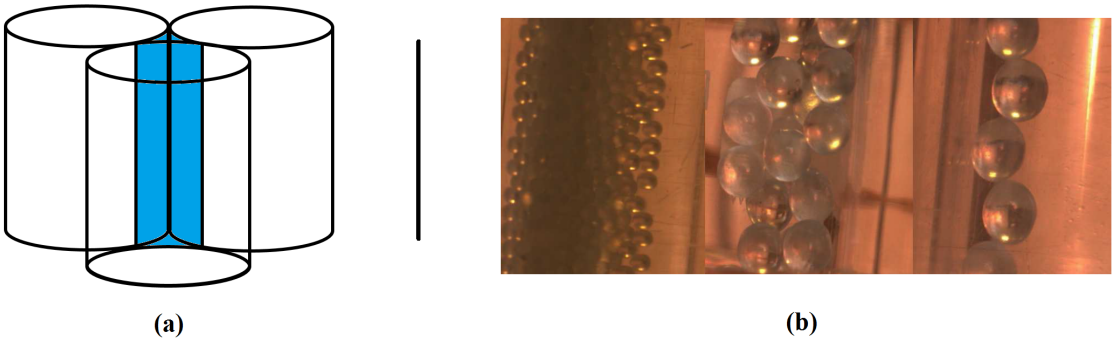


FIGURE 3.15 – (a) Bord de *Plateau* idéal formé par trois cylindres au contact. (b) Photos d'expériences visant à déterminer la compacité de billes monodisperses dans une telle géométrie. $0,2 < \lambda < 0,8$.

On peut modéliser ces effets en considérant la couche de billes au contact avec la paroi et les trois coins de la section du bord de *Plateau*. Ces deux éléments constituent des volumes exclus qui augmentent avec λ (voir le schéma (b) de la figure 3.18). Les équations 3.18 à 3.20 prennent ces effets en compte.

$$S_{paroi} = \left(\frac{\pi}{2} - 3\alpha\right) r^2 \tan^2\alpha + 3\left(\frac{\pi}{2} - \alpha\right)\frac{d_p^2}{4} \tag{3.18}$$

$$S_{coins} = 3\left(\tan\alpha - \alpha\right) r^2 - 3\left(\frac{\pi}{2} - \alpha\right)\frac{d_p^2}{4} \tag{3.19}$$

$$S_{volume} = \left(\sqrt{3} - \frac{\pi}{2} - S_{paroi} - S_{coins}\right) \tag{3.20}$$

En considérant des billes organisées selon la structure d'un cristal cubique à faces centrées, on a comme fraction maximale d'empilement en volume : $\varphi^*_{volume} = \frac{\pi}{3\sqrt{2}}$ et en surface : $\varphi^*_{paroi} = \frac{\pi}{3\sqrt{3}}$. φ^*_{paroi} correspond au calcul de la compacité d'une monocouche de billes emipilées (réseau triangulaire) entre deux plan.

On peut désormais écrire la compacité de billes monodisperses dans un bord de *Plateau* idéal pour $0 < \lambda < 0,5$:

$$\varphi^*_{Plateau} = \frac{\varphi^*_{paroi} S_{paroi} + \varphi^*_{volume} S_{volume}}{\sqrt{3} - \pi/2} \tag{3.21}$$

Cette dernière équation est ajustable par la fonction suivante :

$$\varphi^*_{Plateau}/\varphi^*_{volume} = 1 - 0,7\lambda + 0,08\lambda^2 \tag{3.22}$$

Le fait que la fraction maximale d'empilement ne soit plus monotone pour $\lambda > 0,5$ s'explique par certaines tailles de particules qui conduisent à des configurations cristallisées minimisant la fraction d'empilement (voir figure 3.16).

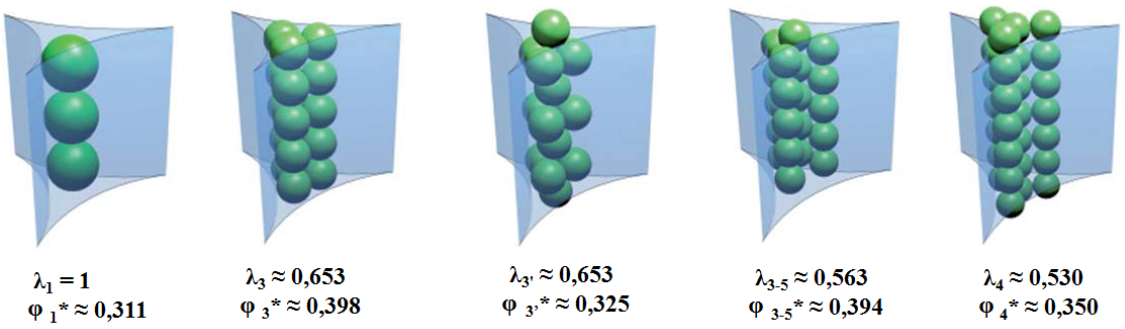


FIGURE 3.16 – Valeurs de λ conduisant à des empilements ordonnés. Ces schémas correspondent aux étoiles vertes sur la figure 3.18 (graphique (a)).

Le remplissage correspondant à λ_3 (figure 3.16) est observé sur la photo de la (figure 3.17). Les particules sont cristallisées dans les bords de *Plateau* (empilées trois par trois).

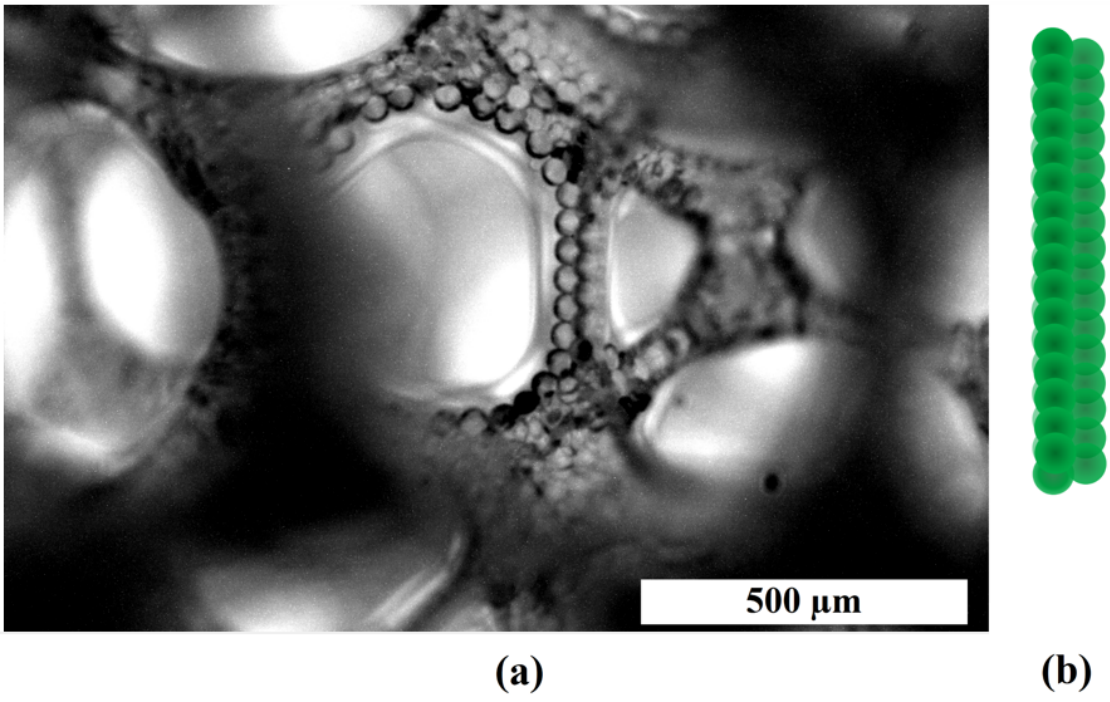


FIGURE 3.17 – (a) Quelques bulles d'une mousse chargée, échantillon d'environ cinq millimètres de hauteur. $D_b = 1000\ \mu m$, $d_p = 40\ \mu m$. (b) Les particules de la suspension sont empilées trois par trois dans les bords de *Plateau*.

Pour ces plus grandes valeurs de λ, la description de $\varphi^*_{Plateau}$ se fait en paramétrant la distance entre les centres des billes contenues dans le bord de *Plateau* :

$$\frac{2l}{d_p} = \left(2+\sqrt{3}\right)\lambda^{-1} - \sqrt{1+\left(4\sqrt{3}+6\right)\lambda^{-1}} \tag{3.23}$$

Ainsi, on établit pour le passage des configurations λ_1 à λ_3 :

$$\frac{2z_1}{d_p} = \sqrt{4 - 3\left(\frac{2l}{d_p}\right)^2} \tag{3.24}$$

$$\varphi^*_{1\to 3} = \frac{4\pi\left(7 - 4\sqrt{3}\right)\lambda^2}{9\left(\sqrt{3} - \pi/2\right) max\left(\frac{2z_1}{d_p}; \frac{2}{3}\right)} \tag{3.25}$$

Pour le passage des configurations $\lambda_{3'}$ à λ_{3-5} :

$$\frac{2z_3}{d_p} = \sqrt{4 - (2l/d_p)^2} \tag{3.26}$$

$$\varphi^*_{3'\to 3-5} = \frac{8\pi\left(7 - 4\sqrt{3}\right)}{9\left(\sqrt{3} - \pi/2\right)} \frac{\lambda^2}{\frac{2z_3}{d_p}} \tag{3.27}$$

Et le passage des configurations λ_{3-5} à λ_4 :

$$\varphi^*_{3-5\to 4} = \frac{8\pi\left(7 - 4\sqrt{3}\right)}{9\left(\sqrt{3} - \pi/2\right)}\lambda^2 \tag{3.28}$$

L'ensemble de ces fonctions ainsi que les valeurs particulières illustrées sur les schémas de la figure 3.16 sont tracés sur la figure 3.18.

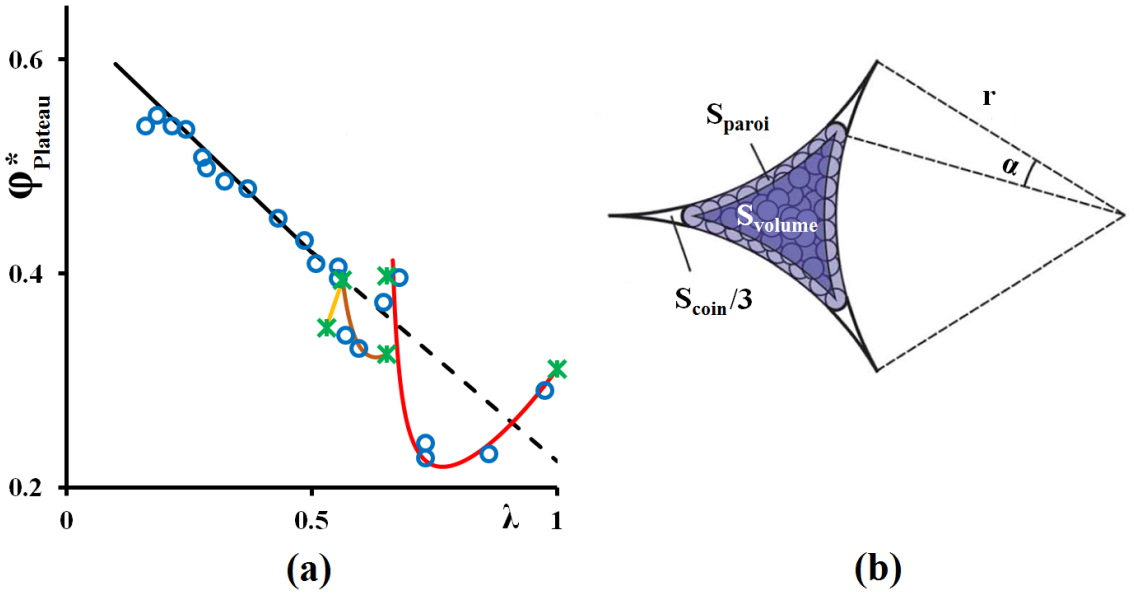


FIGURE 3.18 – (a) Compacité dans un bord de *Plateau* idéal. Ronds bleus : mesures expérimentales de la compacité de billes monodisperses. Les courbes sont calculées à l'aide des équations : 3.22 (courbe noire), 3.24-3.25 (courbe rouge), 3.26-3.27 (courbe orange), 3.28 (courbe jaune). Configurations cristallisées de la figure 3.16 (étoiles vertes). (b) section d'un bord de *Plateau* chargé en particules.

Le graphique (a) de la figure 3.18 montre à quel point $\varphi^*_{Plateau}$ est dépendant de la valeur de λ.

Ces calculs de compacité (pour les vertex et pour le bords de *Plateau*) seront des éléments de modélisation très importants dans la partie sur le drainage.

Modèle de compacité pour $\lambda \geq 1$

Dans ce qui suit, nous traitons la compacité de particules empilées en "collier" dans le réseau de la mousse (cette configuration est illustrée sur le schéma de la figure 3.19 et observée sur la photo de la figure 3.20).

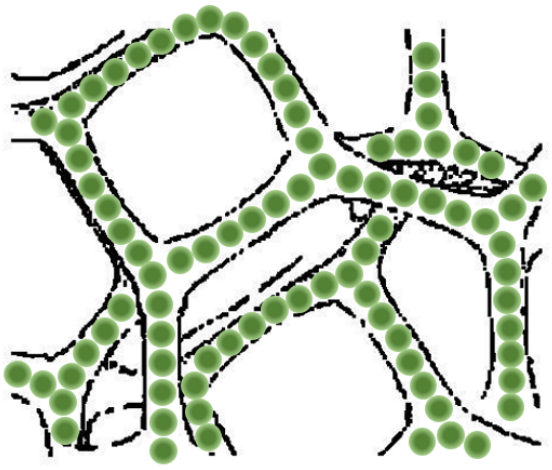


FIGURE 3.19 – Sur ce schéma les particules sont empilées en "collier" dans le réseau.

Nous supposons que les particules sont en contact et forment un chapelet continu, déformant le cas échéant le réseau, on applique cette configuration pour $\lambda \geq 1$.

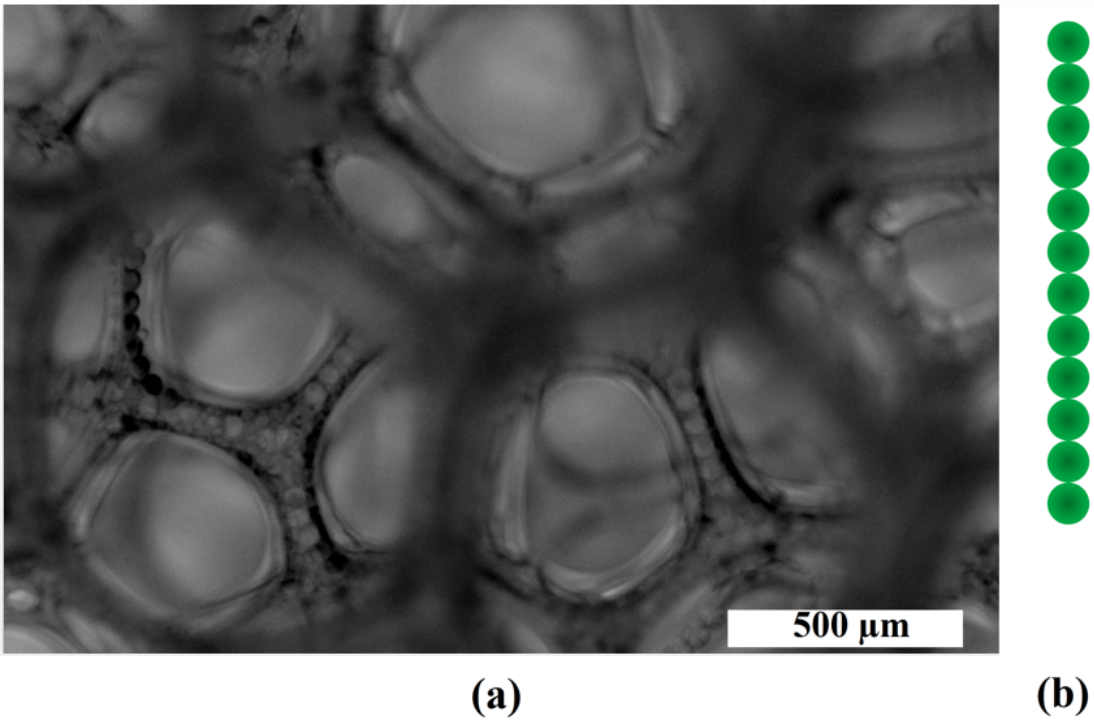


FIGURE 3.20 – (a) Quelques bulles d'une mousse chargée, échantillon d'environ cinq millimètres de hauteur. $D_b = 600\ \mu m$, $d_p = 40\ \mu m$. (b) Les particules forment des "colliers" dans les bords de *Plateau* (particules empilées une à une).

Pour cela, nous travaillons sur une cellule de *Kelvin* pour laquelle nous avons la relation donnée par 1.7. Avec celle-ci et en considérant les 12 arêtes et les 6 sommets que l'on compte par bulle, nous pouvons écrire le nombre de particules par bulle :

$$N_b = \frac{12l}{d_p} - 6 \tag{3.29}$$

6 est retranché afin de ne pas compter deux fois les particules aux sommets (qui correspondent aux vertex). On peut considérer qu'il n'y a la place de ne mettre qu'une seule particule dans chaque vertex lorsque $\lambda \approx 1,5$.

Finalement la fraction volumique des particules dans la phase interstitielle est :

$$\varphi_p^{collier} = \left[N_b \frac{\pi d_p^3}{6}\right][1-\Phi]\left[\frac{6}{\Phi \pi D_b^3}\right] = \frac{d_p^3\,(1-\Phi)}{\Phi D_b^3} N_b \tag{3.30}$$

3.3.3 Les zones de rétention dans la mousse

Nous traitons à présent de la rétention selon les régions de la mousse, en effet, les particules ne sont pas capturées dans les mêmes conditions partout dans la mousse. Le schéma (c) de la figure 3.21 représente le cœur de la mousse, pour cette partie on peut distinguer une zone spécifique où les particules ne sont pas capturées (hauteur H_1 sur le schéma) cette partie correspond au pied. Le schéma (d) de la même figure correspond à la

zone périphérique de la mousse, pour une taille de particule donnée, la capture s'y produit à une altitude plus grande que pour la partie correspondant au cœur (voir schémas 3.22). Ici la hauteur de pied (hauteur à partir de laquelle les particules sont capturées) est notée H_2.

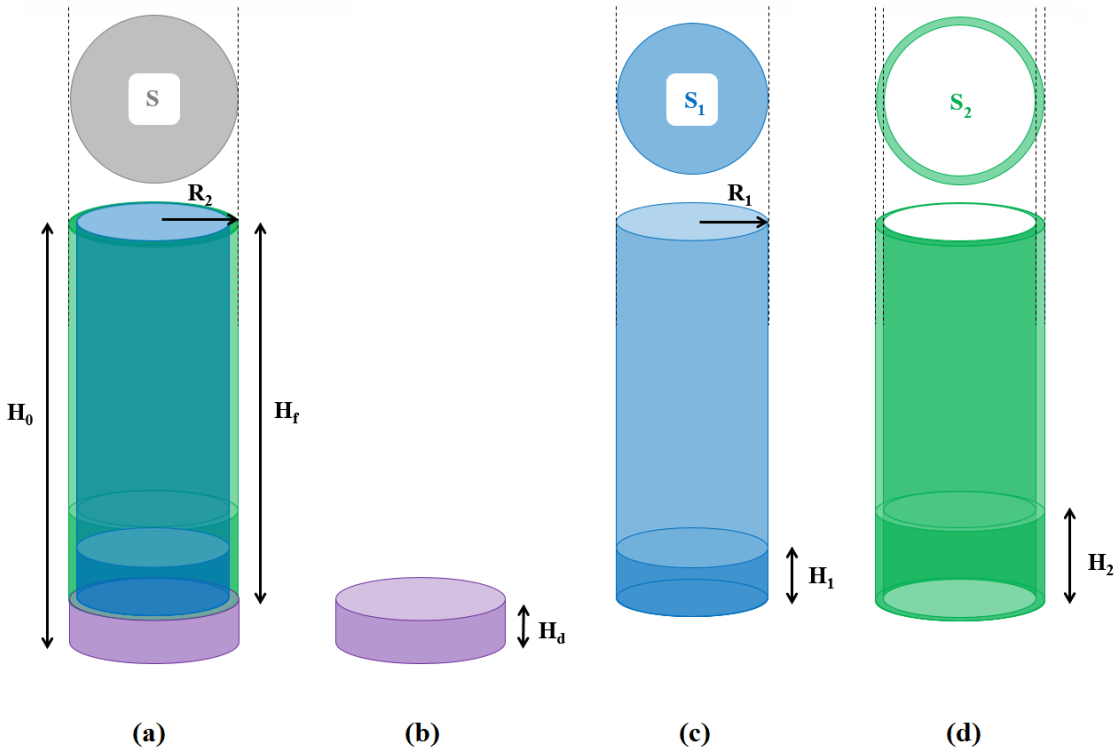


FIGURE 3.21 – (a) Cellule de mesure de hauteur H_0 et de section S. Mousse après drainage de hauteur H_f. (b) Hauteur de liquide drainé H_d. (c) Cœur de la mousse, de section S_1, on distingue H_1 la hauteur correspondant au pied. (d) Périphérie la mousse, de section $S_2 = S - S_1$, on distingue la hauteur H_2 correspondant au pied ($H_2 > H_1$).

Effets de bord : pied et paroi

L'équilibre entre la capillarité et l'hydrostatique donne la relation suivante :

$$\frac{\gamma}{r(z)} = \frac{\gamma}{r\,(z=0)} + \rho g z \tag{3.31}$$

Avec $r(z)$ et $r\,(z=0)$ respectivement les rayons de courbure des bords de *Plateau* à l'altitude z et à l'altitude 0.

Avec l'équation 1.18, on obtient la fraction volumique gazeuse d'une mousse à l'équilibre en fonction de l'altitude z avec $\Phi\,(z=0)$, la fraction en gaz à l'altitude $z=0$:

$$\Phi\,(z) \approx 1 - \left[(1-\Phi\,(z=0))^{-1/2} + \frac{\rho g D_b}{\gamma} z\right]^{-2} \tag{3.32}$$

Avec cette relation et l'équation 1.53, nous avons accès au diamètre de passage des constrictions du réseau en fonction de z.

Pour le cœur de la mousse (schéma (c) de la figure 3.21) les particules sont capturées lorsque $\lambda = 1$, pour des valeurs plus petites, les particules s'écoulent, c'est le cas dans le pied.
Pour la partie située à la périphérie de la mousse (schéma (d) de la figure 3.21) les diamètres de passages sont environ $1,6$ fois plus grand (voir figure 3.22), la capture se produit alors à une altitude plus élevée.

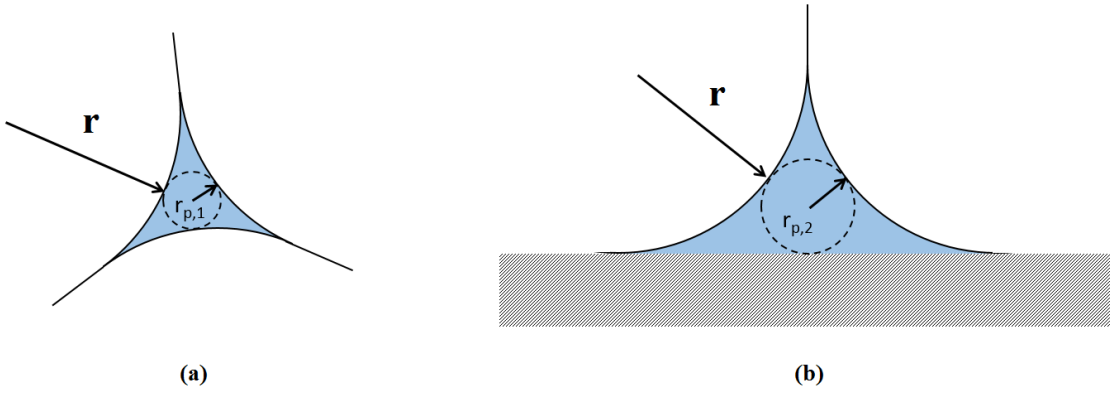


FIGURE 3.22 – (a) Constriction dans le cœur de la mousse et à la périphérie (b).

Les rayons $r_{p,1}$ et $r_{p,2}$ sont donnés par :

$$r_{p,1} = \left(\frac{2}{\sqrt{3}} - 1\right) r \tag{3.33}$$

et

$$r_{p,2} = \frac{1}{4} r \tag{3.34}$$

En tenant compte de $r_{p,1}$ et $r_{p,2}$ dans les équations 3.32 et 1.53, nous pouvons tracer les diamètres des constrictions en fonction de la fraction Φ et de l'altitude z (voir figure 3.23).

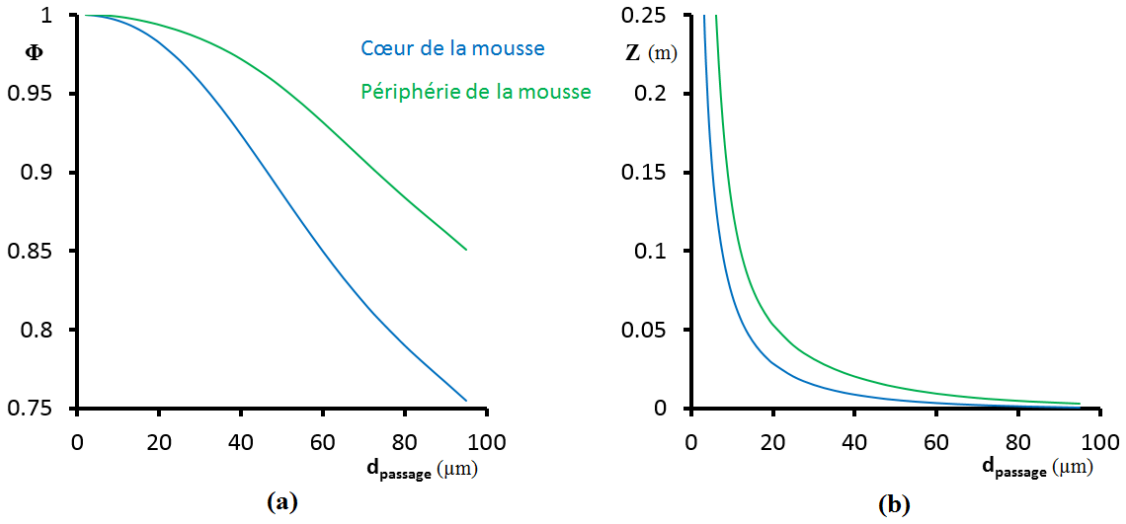


FIGURE 3.23 – (a) Fraction gazeuse en fonction du plus petit diamètre de passage dans le réseau de la mousse. (b) Altitude en fonction de la taille des constrictions. $\gamma = 35\ mN/m$, $\rho = 1050\ kg/m^3$, $D_b = 660\ \mu m$, $g = 9,81\ ms^{-2}$,$\Phi\,(z = 0) = 0,74$.

Sur le graphique (b) de la figure 3.23, nous voyons que pour un diamètre de passage donné, les différences d'altitude entre le cœur et la périphérie peuvent être importantes, en particulier pour les petits diamètres de passage.
Ces différences pour les conditions de capture, entre le cœur et la périphérie ont également un rôle très important sur les vitesses de drainage (traitées dans la seconde partie de la thèse). Pour certaines expériences, la suspension s'écoule à la paroi pendant le drainage alors qu'elle est bloquée dans le cœur.

3.3.4 Modélisation

Nous proposons ensuite de modéliser cette rétention, pour cela nous travaillons sur plusieurs éléments : la capture progressive des particules pendant le drainage et les effets de bord liés à la géométrie de la cellule de mesure.

Pour commencer, nous travaillons sur la hauteur de mousse à l'état final, que nous considérons égale à H_0. En réalité, elle est différente de celle de l'état initial puisqu'il faut retirer la hauteur de liquide drainé en bas de la colonne, c'est la hauteur H_f (voir le schéma (a) de la figure 3.21).
Le fait de de prendre $H_f = H_0$ sera discutée plus loin. La mousse drainée est d'abord séparée en deux éléments : le cœur au centre de celle-ci et la partie à la périphérie. Pour chacune de ces deux zones, le diamètre des constrictions est dépendant de l'altitude. Dans le cœur et pour une taille de particules donnée, la capture s'effectue à la hauteur de mousse : H_1, à cette altitude, la fraction en gaz vaut : Φ_1.
Rappelons que le pied concerne la partie en dessous de la hauteur de capture. Au dessus de cette hauteur, les particules sont piégées mais le liquide continue de s'écouler jusqu'à atteindre l'équilibre qui correspond à la fin du drainage.

Dans ces conditions, le volume de particules retenues dans le cœur de la mousse s'écrit :

$$V_{R,1} = \varphi_p S_1 \left(1 - \Phi_{R,1}\right) \left(H_f - H_{R,1}\right) \tag{3.35}$$

Avec $\Phi_{R,1} = max\left(\Phi_0, \Phi_1\right)$ pour tenir compte du cas où la fraction gazeuse correspondant à la capture est supérieure à la fraction initiale de gaz (particules jamais capturées). Dans un tel cas, $H_1 > H_f$, nous définissons alors $H_{R,1} = min\left(H_1, H_f\right)$. S_1 est la section de la zone correspondant au cœur de la mousse (schéma (c), figure 3.21).

De façon analogue, on peut définir pour la périphérie :

$$V_{R,2} = \varphi_p S_2 \left(1 - \Phi_{R,2}\right) \left(H_f - H_{R,2}\right) \tag{3.36}$$

Avec $\Phi_{R,2} = max\left(\Phi_0, \Phi_2\right)$ et $H_{R,2} = min\left(H_2, H_f\right)$. S_2 est la section de la zone correspondant à la périphérie de la mousse (schéma (d), figure 3.21).

La section de la cellule de mesure s'écrit ainsi : $S = \pi R_2^2$ (voir figure 3.21). En comptant ν l'épaisseur en nombre de bulles de la partie périphérique, on écrit :

$$S_1 = \pi \left(R_2 - \nu\right)^2 \tag{3.37}$$

et

$$S_2 = S - S_1 \tag{3.38}$$

ν permet de faire la transition entre les constrictions de périphérie et celle du cœur (figure 3.22), en réalité elle s'effectue de façon continue sur quelques épaisseurs de bulles.

A ces deux contributions (équations 3.35 et 3.36), nous devons ajouter celle du pied, pour laquelle nous négligeons la distinction entre le cas de la périphérie de celui du cœur, on prend $H_{R,1} = H_{R,2}$.

A l'aide de l'équation 3.32, nous pouvons écrire le volume de particules contenues dans la partie où $z < H_{R,1}$:

$$V_{z<H_{R,1}} = \varphi_p S \times \int_0^{H_{R,1}} \left[\left(1 - \Phi\left(z = 0\right)\right)^{-0,5} + \frac{\rho g D_b}{\gamma} z\right]^{-2} dz \tag{3.39}$$

$$V_{z<H_{R,1}} = \frac{\gamma}{\rho g D_b} \left(\left(1 - \Phi\left(z = 0\right)\right)^{1/2} - \frac{1}{\left(1 - \Phi\left(z = 0\right)\right)^{-1/2} + \frac{\rho g D_b}{\gamma} H_{R,1}}) \right) \tag{3.40}$$

Pour ce volume, nous devons tenir compte de la quantité de suspension qui sort de la mousse par "rinçage" (ce sont autant de particules non retenues). Lorsque les particules sont capturées au dessus du pied, le liquide (sans les particules) continue de s'écouler jusqu'à la fin du drainage, il vient remplacer la suspension dans le pied (voir le schéma de la figure 3.24).

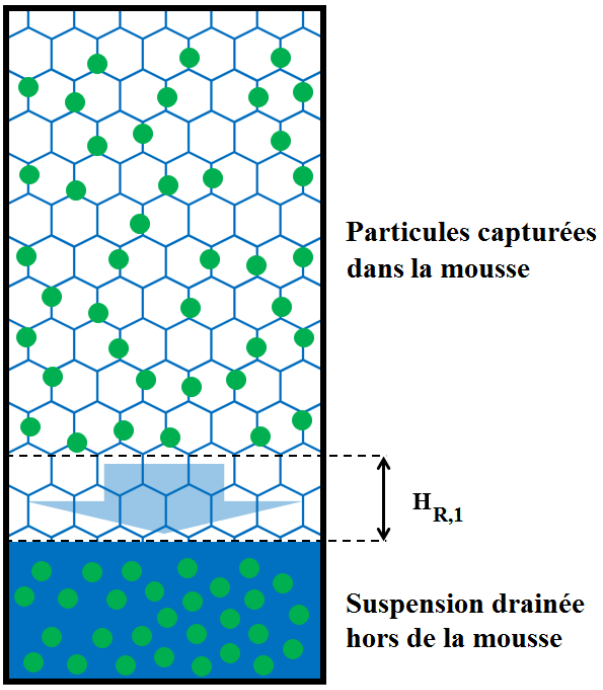


FIGURE 3.24 – Schéma du "Rinçage". Au dessus du pied les particules sont capturées, en conséquence le liquide s'écoule seul dans le pied et remplace la suspension.

On calcule le volume de "rinçage" de la façon suivante :

$$V_{rincage} = \varphi_p S \int_{H_{R,1}}^{H_0} \left((1 - \Phi_{R,1}) - \left[(1 - \Phi\,(z=0))^{-0,5} + \frac{\rho g D_b}{\gamma} z \right]^{-2} \right) dz \tag{3.41}$$

$$V_{rincage} = \frac{\gamma}{\rho g D_b} \left(\frac{1}{(1 - \Phi\,(z=0))^{-1/2} + \frac{\rho g D_b}{\gamma} H_{R,1}} - \frac{1}{(1 - \Phi\,(z=0))^{-1/2} + \frac{\rho g D_b}{\gamma} H_0}) \right) + (1 - \Phi_{R,1})\,(H_0 - H_{R,1}) \tag{3.42}$$

Le membre de gauche dans l'intégrale de l'équation 3.41 correspond à la quantité de suspension présente dans la mousse, au dessus du pied, lorsque l'on capture les particule ($\Phi = \Phi_{R,1}$). Le membre de droite de cette même intégrale correspond à la quantité de liquide qu'il reste dans la mousse une fois l'équilibre atteint.

Le volume de particule contenues dans le pied vient comme :

$$V_{pied} = V_{z<H_{R,1}} - V_{rincage} \tag{3.43}$$

Cette équation (3.43) n'est pas retenue dans le calcul de la rétention R. La mesure de la rétention s'effectue au bout d'un temps assez long (supérieur à une heure) et pour les

λ les plus petits, nous avons utilisé des particules de PMMA (voir partie sur le système), légèrement plus dense que le liquide suspendant et qui par conséquent, sédimentent. Cette contribution ne concernant que les petits λ (voir la courbe rouge sur la figure 3.25) nous ne la prenons pas en compte.

Les autres contributions nous permettent néanmoins d'écrire la proportion de particules retenues dans l'ensemble de la mousse après le drainage :

$$R = \frac{V_{R,1} + V_{R,2}}{\varphi_p \left(1 - \Phi_0\right) S H_0} \tag{3.44}$$

Comme indiqué plus tôt, pour tracer la courbe donnant la rétention de particules dans la mousse, nous avons besoin de connaître la hauteur H_f de la mousse à la fin du drainage. Cette hauteur dépend elle-même de la rétention de particules et sa mesure n'est pas précise. Cependant, pour une mousse avec initialement $\Phi > 0,9$, il vient logiquement $0,9 < H_f/H0 < 1$, si l'on ajoute la quantité de liquide retenu par la mousse à l'équilibre et les éventuelles particules piégées, nous pouvons même considérer : $0,95 \lessapprox H_f/H0 < 1$ ce qui nous permet d'approximer $H_f \approx H_0$ pour le calcul de R.

La fonction de rétention R (équation 3.44) est tracée sur la graphique de la figure 3.25, ν est pris égale à 4.

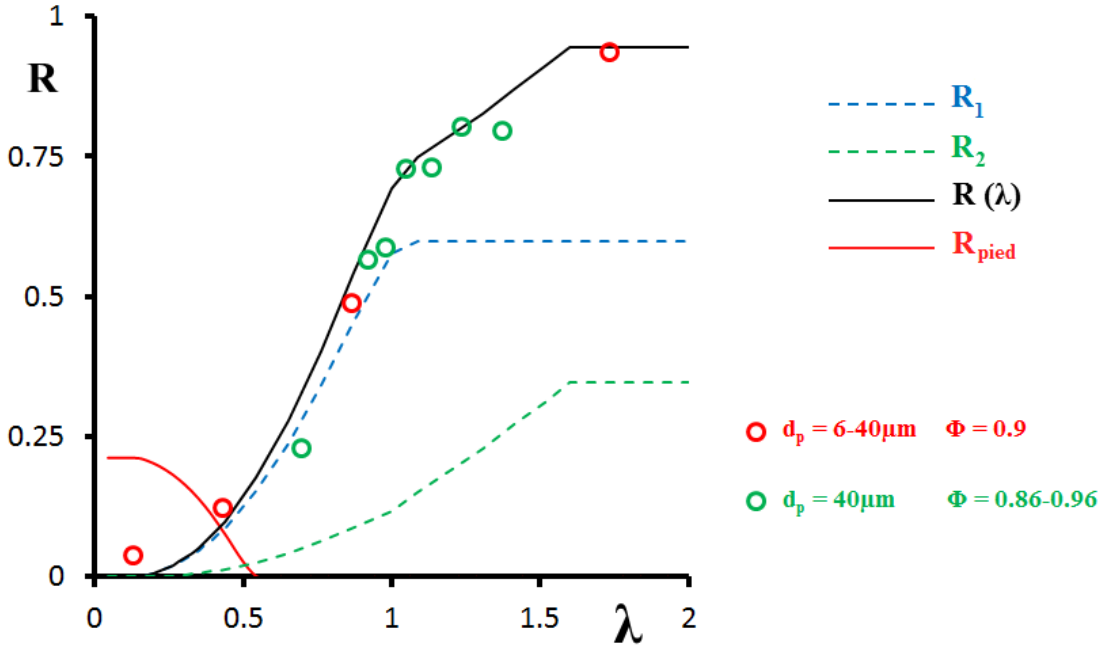


FIGURE 3.25 – (a) Fonction de rétention en noir, $D_b = 660\ \mu m$, $\Phi_0 = 0,9$ et $\nu = 4$. Les différentes contributions à la rétention sont également tracés : cœur de la mousse en pointillés bleus, périphérie en pointillés verts, pied en rouge. Points de mesures à $\varphi_p = 0,16$ et $D_b = 660\ \mu m$.

La figure 3.25 confronte le modèle de rétention aux mesures pour $D_b = 660\ \mu m$. Nous constatons un bon accord entre expérience et théorie. La contribution du pied n'est pas

prise en compte pour la modélisation de la rétention, comme dit précédemment, elle n'a d'intérêt qu'aux petits λ. L'unique point concerné serait celui à $\lambda = 0,13$ pour lequel nous avons utilisé des particules de PMMA, plus dense, qui ont sédimenté avant la mesure.

Limites du modèle

Même si ce modèle décrit globalement la rétention de particules par la mousse, on note certaines limites.
Dans un premier temps, le nombre de couches de bulles qui composent la zone périphérique peut être discuté. Nous l'avons pris tel que $\nu = 4$. Expérimentalement, on observe que le changement de géométrie entre les bords de *Plateau* de paroi et ceux de volume n'est pas brutal, il se fait de façon continue, sur quelques épaisseurs de bulles. D'autre part, ici la rétention est considérée comme purement géométrique et donc indépendante de φ_p, mettant les effets de capture collective à part. Dans la partie consacrée au drainage, nous verrons que nous ne pouvons les ignorer lorsque λ se rapproche (ou dépasse) l'unité et pour $\varphi_p > 0,35$.

3.4 Rétention capillaire

Nous cherchons à quantifier la rétention de liquide dans la mousse une fois le drainage terminé. Pour cela, nous exploitons les hauteurs de suspension drainée à l'équilibre.

3.4.1 Rétention de liquide : le rôle de φ_p

Pour mesurer la quantité de liquide retenu en plus des particules, nous exploitons la hauteur de suspension drainée : H_d. Nous comparons les systèmes de mousses de suspension à des cas de référence de mousses non chargées.

Pour la mousse non chargée, nous mesurons une hauteur de liquide drainé égale à H_d^0. Pour la mousse chargée, cette hauteur vaut H_d^c.

La proportion de liquide drainé hors de la mousse, pour la mousse de référence vaut :

$$\frac{H_d^0}{(1-\Phi)\,H_0} \tag{3.45}$$

Pour la mousse chargée, en tenant compte des particules qui restent piégées et en notant $R(\lambda)$ la fonction de rétention, la proportion théorique de liquide drainé s'écrit :

$$\frac{H_d^0}{(1-\Phi)\,H_0} - \varphi_p R(\lambda) \tag{3.46}$$

Si l'on considère que tout le liquide retenu en plus que ce qui est donné par l'équation 3.46 constitue de la rétention capillaire, nous introduisons le paramètre Γ :

$$\Gamma = 1 - \frac{H_d^c/(1-\Phi)\,H_0}{H_d^0/(1-\Phi)\,H_0 - \varphi_p R(\lambda)} \tag{3.47}$$

Γ mesure l'écart relatif à la quantité de liquide attendu. Lorsque $\Gamma = 0$, la mousse ne retient pas de liquide supplémentaire, en revanche, lorsque $\Gamma = 1$, tout le liquide est retenu dans la mousse.

Sur la figure 3.26, on trouve deux images montrant H_d pour une mousse chargée et une mousse non chargée.

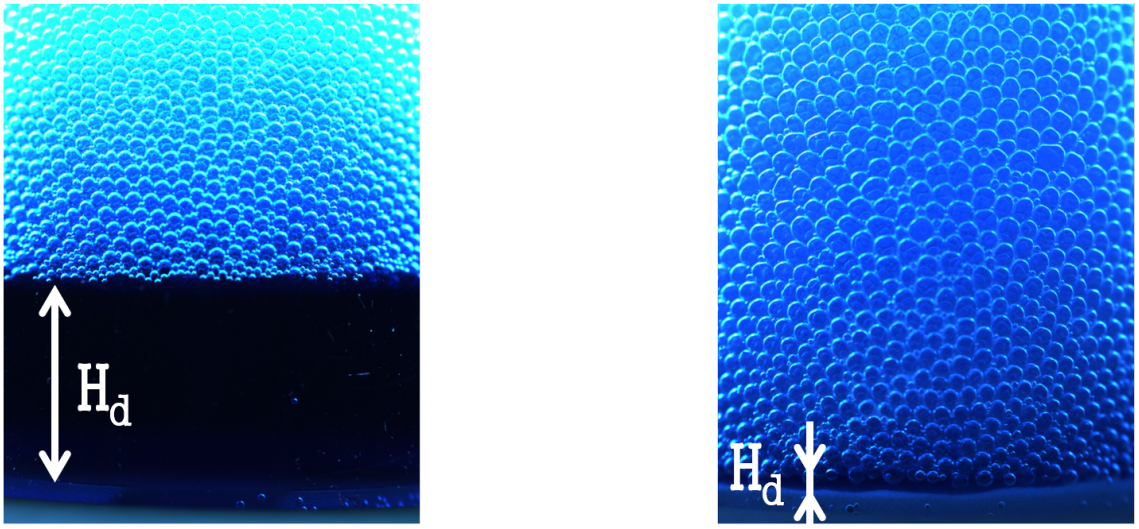


FIGURE 3.26 – H_d pour une mousse non chargée et une mousse chargée. (a) $\Phi = 0,9$, $D_b = 660\ \mu m$, et $\Gamma = 0$. (b) $\lambda = 0,65$, $\Phi = 0,9$, $\varphi_p = 0,47$, $D_b = 660\ \mu m$, $d_p = 30\ \mu m$ et $\Gamma = 0,83$.

Γ est tracé en fonction de φ_p pour cinq valeurs de D_b sur la figure 3.27.

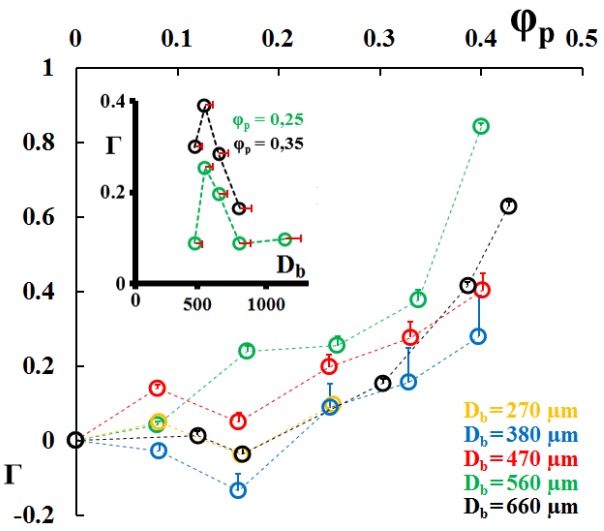


FIGURE 3.27 – Γ en fonction de φ_p pour cinq valeurs de D_b. $d_p = 40\ \mu m$, mousses produites à $\Phi = 0,9$. Le maximum pour Γ correspond à $D_b = 560\ \mu m$, peu importe φ_p. En encart, Γ est tracé en fonction de D_b pour deux valeurs de φ_p.

Les résultats de la figure 3.27 sont assez bruités. Les barres d'erreur ne correspondant qu'à l'erreur induite par le régulateur de gaz sont représentées (voir le paragraphe sur l'erreur liée au régulateur dans la partie sur le système *Difficultés expérimentales*).
Ces résultats montrent néanmoins que seulement 40% de suspension dans la phase interstitielle peuvent conduire à des échantillons drainant très peu ($\Gamma > 0,8$ pour $d_p = 40\ \mu m$ et $D_b = 560\ \mu m$).

3.4.2 Échantillons drainant très peu : le rôle de λ

Diagramme de drainage

Le paramètre Γ nous permet de construire le diagramme φ_p/λ (figure 3.28) où l'on fait apparaître les points suivants :

— Points bleus : lorsque $\Gamma < 2/3$, le système est considéré comme drainant.
— Étoiles rouges : lorsque $\Gamma > 2/3$, le système est considéré comme peu drainant.

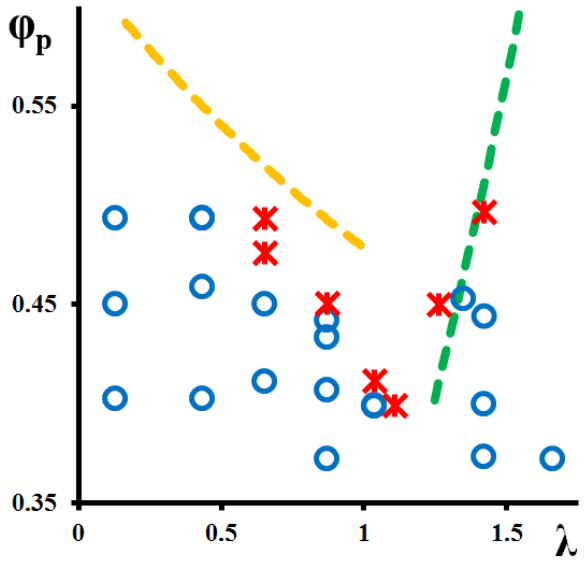


FIGURE 3.28 – Diagramme de drainage. Les points correspondant aux systèmes drainant peu sont matérialisés par les étoiles rouges, les systèmes drainant correspondent aux cercles bleus. La courbe jaune est calculée pour φ^*_{vertex} (voir figure 3.13). La droite en pointillés verts correspond à la limite donnée par les colliers de particules (équation 3.30).

On remarque que l'augmentation de φ_p conduit à la stabilisation et que certaines valeurs de λ donnent des systèmes stables pour des fractions en particules relativement faibles. En particulier on note un minimum autour de $\lambda = 1,1$ et $\varphi_p = 0,40$.

Notons que les valeurs de λ du diagramme 3.28 concernent les systèmes à l'état initial ($\lambda_{initial}$). Les mesures de rétention se faisant à l'état final (λ_{final}), après drainage de l'échantillon, nous avons : $\lambda_{initial} < \lambda_{final}$.

3.5 Conclusion

Les mesures de particules et de liquide retenus dans les mousses à l'équilibre (après drainage) ont permis la modélisation de la rétention et la construction d'un diagramme séparant les échantillons drainant de ceux qui drainent le moins.

Outre la géométrie du système et φ_p qui apparaissent comme des paramètres essentiels, nous savons désormais que la capture s'effectue différemment selon les zones de la mousse.

Il serait cependant intéressant de poursuivre ce travail, en particulier de le compléter par des mesures plus propres de rétention de liquide et de particules. Cet ajout permettrait :

— De mettre en évidence de façon précise la valeur de λ pour laquelle les échantillons drainent peu alors que φ_p est minimal.
— De mieux dessiner la "frontière" entre les systèmes drainant et les systèmes peu drainant du diagramme φ_p/λ.

Néanmoins, ce travail sur la rétention est essentiel pour la prochaine partie consacrée à la cinétique de drainage. Ces résultats, couplés aux observations de structures ont permis la modélisation des empilements de particules dans le réseau interstitiel. Nous l'utilisons pour les vitesses de drainage.

D'autre part, les mesures de rétention exploitées sur le premier régime de drainage permettent la modélisation des vitesses lors de la capture individuelle des particules.

Chapitre 4

Vitesse de drainage

Sommaire

4.1 Introduction 100
4.2 Régime 1 : Effet sur la viscosité, $\lambda < \lambda_I$ 102
4.2.1 Résultats 102
4.2.2 Discussion sur la viscosité effective en fonction de λ 105
4.2.3 Comparaison avec les compacités des vertex et des bords de *Plateau* 108
4.2.4 Ajustement de la viscosité pour tous les φ_p 110
4.2.5 Conclusion 111
4.3 Régime 2 : Capture individuelle, $\lambda_I < \lambda < \lambda_{II}$ 112
4.3.1 Description semi-empirique de la capture individuelle 112
4.3.2 Modélisation de la transition de capture individuelle 116
4.3.3 Conclusion 120
4.4 Régime 3 : Vers l'exclusion des particules, $\lambda > \lambda_{II}$ 122
4.4.1 Limite des particules exclues du réseau 122
4.4.2 Description aux grandes valeurs de λ 124
4.4.3 Conclusion 126
4.5 Vertex chargé d'une unique particule 127
4.5.1 Préambule 127
4.5.2 Mesure à l'échelle de la mousse 128
4.5.3 Modèle de surface spécifique des mousses non chargées 129
4.5.4 Modèle de surface spécifique des mousses chargées 132
4.5.5 Comparaison micro, macro et numérique 134
4.6 Conclusion 136

4.1 Introduction

Cette partie concerne les résultats des mesures de vitesses de drainage des mousses chargées en particules. Cette vitesse est comparée à la vitesse obtenue pour une mousse de référence non chargée (même taille de bulles et même fraction liquide).

Pour cette seconde série de mesures, uniquement la partie linéaire des courbes donnant la hauteur de front de liquide drainé en fonction du temps a été traitée, elle permet de déduire les vitesses de drainage.
Dans ce premier régime, la phase interstitielle draine dans une mousse à l'état initiale, c'est-à-dire aux paramètres imposés lors de la production de l'échantillon : Φ, φ_p, D_b et d_p.

Afin de vérifier que le drainage des mousses chargées ne présente pas de comportement physique singulier (s'écartant du comportement de drainage des mousses aqueuses) nous avons recalé l'ensemble des courbes brutes donnant l'évolution temporelle de liquide ou de suspension drainés hors de la mousse. Les données des mousses non chargées ont été ajoutées, les gammes suivantes sont concernées : $0 < \lambda < 20$ et $0 < \varphi_p < 0,5$.

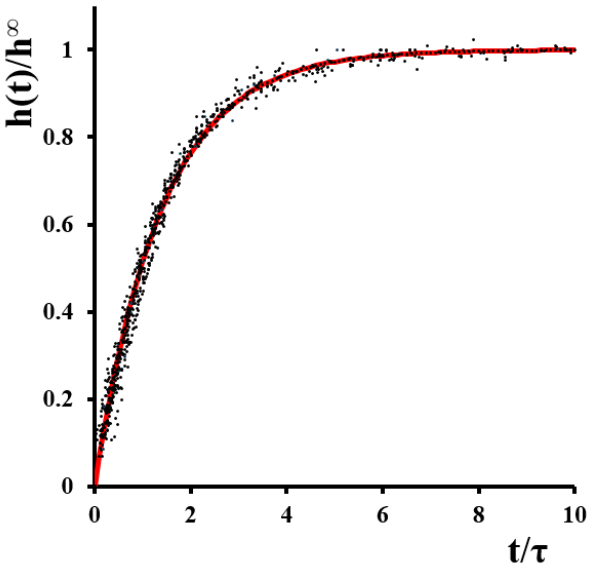


FIGURE 4.1 – Courbes brutes de drainage : évolution temporelle de la hauteur du front de liquide drainé pour une centaine de mesures, avec : $0 < \lambda < 20$ et $0 < \varphi_p < 0,5$. La courbe rouge correspond à une mousse sans particule.

L'ensemble de ces données se recale sur une courbe maîtresse, aucune d'entre elles ne présente de comportement s'écartant du drainage classiquement observé pour les mousses aqueuses (voir figure 4.1).
Cette information nous permet de comparer les mesures les unes aux autres et notamment d'adimensionner les vitesses de drainage des mousses chargées par celles des mousses non chargées.

Comme la fraction en particules φ_p, λ est un paramètre d'étude de cette campagne de mesures, en le variant sur la gamme $0 - 20$, nous avons pu constater l'existence de trois régimes de drainage :

— $\lambda < \lambda_I$: Dans ce premier cas, les particules ne sont pas capturées individuellement par le réseau de la mousse mais leur présence vient augmenter la viscosité effective de la suspension.
Nous verrons que cette augmentation de viscosité est reliée à la valeur de λ et qu'elle peut conduire à une divergence aux grandes valeurs de φ_p (transition de *jamming*).

— $\lambda_I < \lambda < \lambda_{II}$: Ce deuxième régime concerne la transition de capture, quand les particules ne sont plus assez petites pour couler librement dans le réseau interstitiel. Les particules bloquées viennent modifier le réseau de la mousse : sa géométrie et les conditions limites d'écoulement du fluide (glissement aux parois de la mousse, non glissement à la surface des particules).

— $\lambda > \lambda_{II}$: Ce dernier cas est celui de particules piégées, qui déforment le réseau, voire qui en sont exclues (pour $\lambda > 15$). L'effet qu'apporte leur grande taille sur la diminution de la vitesse de drainage (grande déformation du réseau) se voit fortement limité par la faible quantité de billes. En effet, pour une fraction volumique donnée, les billes sont de moins en moins nombreuses à mesure que λ augmente.

Ces régimes sont traités individuellement dans les trois parties qui suivent, la fraction en particules est également variée. Les résultats sont ensuite discutés et confrontés à des éléments de modélisation.

Enfin, le cas particulier correspondant à une particule par vertex est traité, il est notamment confronté aux travaux numériques de *Florence Rouyer* ainsi qu'aux travaux expérimentaux de *Nicolas Louvet*.

4.2 Régime 1 : Effet sur la viscosité, $\lambda < \lambda_I$

Le premier régime, celui des particules non capturées correspond au cas où λ est inférieur à λ_I. Avec $\lambda_I = 0,9$ (valeur observée expérimentalement, notamment lors des mesures de rétention de suspension).

4.2.1 Résultats

Les relevés des hauteurs de liquide drainé pendant le drainage des échantillons constituent les données brutes de ces expériences. En particulier, les vitesses sont données par :

$$U = \frac{1}{2}\frac{h^{\infty}_{\varphi_c}}{\tau_{\varphi_p}} \tag{4.1}$$

Avec $h^{\infty}_{\varphi_c}$ la hauteur de front mesurée lorsque la mousse a atteint sa position d'équilibre et τ_{φ_p} le temps au bout duquel la moitié du liquide à drainer pour atteindre l'équilibre a été drainé. Ainsi, les résultats adimensionnés s'expriment comme :

$$U^* = \frac{U_{\varphi_p}}{U_0} = \frac{\tau_0}{\tau_{\varphi_p}}\frac{h^{\infty}_{\varphi_p}}{h^{\infty}_{\varphi_0}} \tag{4.2}$$

Avec pour la mousse non chargée : U_0, $h^{\infty}_{\varphi_0}$, τ_0 respectivement la vitesse de drainage, la hauteur de front à l'équilibre et le temps caractéristique de drainage défini plus haut.

En pratique, les vitesses de drainage ont été déduites par ajustement linéaire de la pente du premier régime.

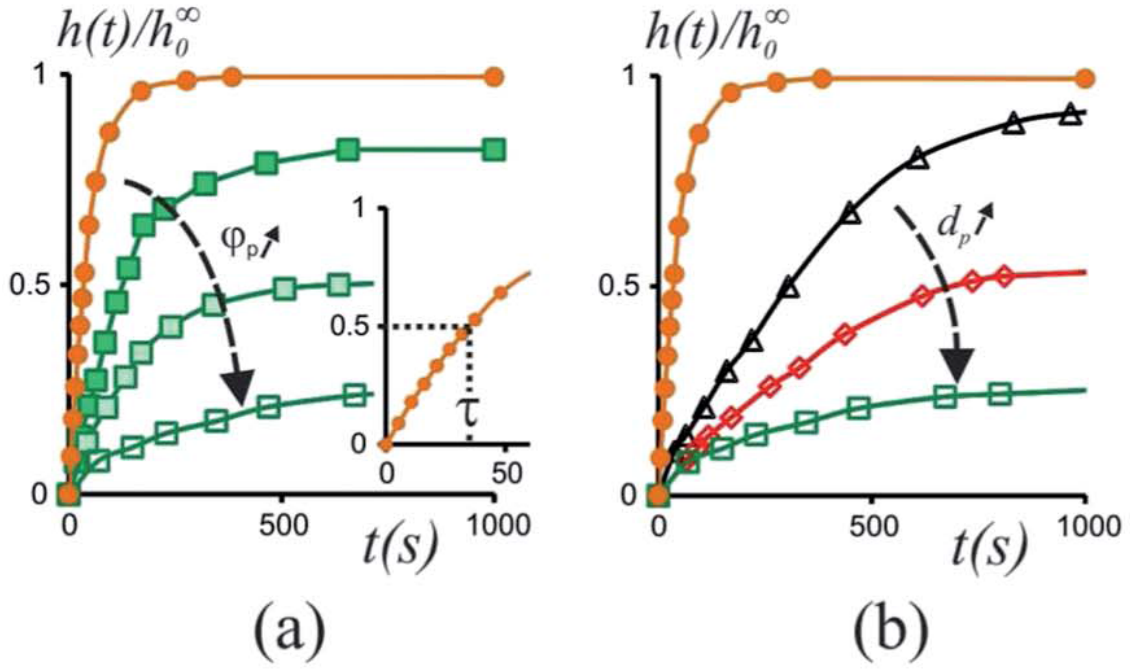


FIGURE 4.2 – Hauteurs de front adimensionnées tracées en fonction du temps. En a) mousses chargées avec des particules de 40 μm, 4 valeurs de φ_p sont représentées : ronds oranges $\varphi_p = 0$, carrés verts foncés $\varphi_p = 0,16$, carrés verts clairs $\varphi_p = 0,37$, carrés vides $\varphi_p = 0,45$. Encart : zoom sur le régime linéaire depuis lequel est mesuré τ b) Effet de la taille des particules pour une fraction en particules fixée à $\varphi_p = 0,45$. 3 valeurs de d_p sont représentées : courbe noire $d_p = 6$ μm, courbe rouge $d_p = 20$ μm, courbe verte $d_p = 40$ μm.

Les graphiques de la figure 4.2 donnent l'évolution temporelle des hauteurs de front de liquide/suspension drainé pour une mousse non chargée et trois valeurs de φ_p (a) et pour une mousse non chargée et trois valeurs de d_p (b).
L'augmentation de la fraction en particules dans la phase interstitielle comme l'augmentation de la taille des particules ont pour effet de diminuer la vitesse de drainage (ainsi que la hauteur de front à l'équilibre).
En (a), on mesure une vitesse de drainage pour $\varphi_p = 0,45$ environs vingt fois plus petite que celle mesurée sur la mousse non chargée correspondante. On remarque que cette diminution de U avec l'augmentation de φ_p s'accompagne d'une diminution de la valeur de $h^{\infty}_{\varphi_p}$.
En (b), on retrouve cet effet sur la vitesse avec l'augmentation de la taille des particules. L'analyse du deuxième régime de drainage indique que l'augmentation de d_p participe aussi à la diminution de $h^{\infty}_{\varphi_p}$, on note par exemple que lorsque l'on passe de $d_p = 6$ μm à $d_p = 40$ μm la quantité de suspension drainée devient trois fois moins importante.

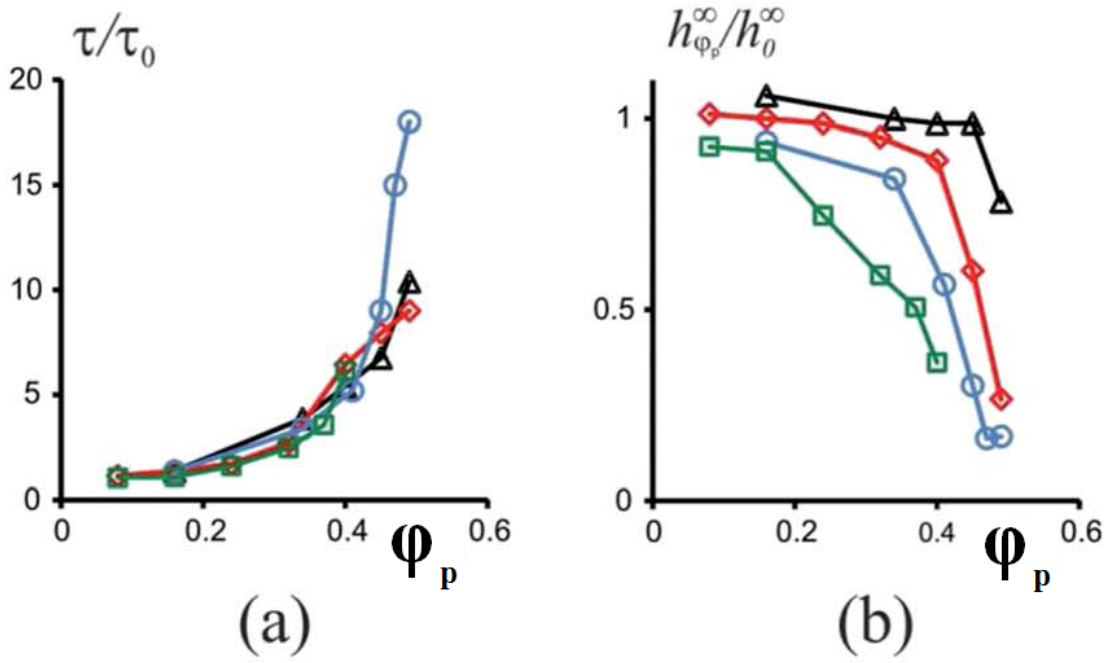


FIGURE 4.3 – a) τ/τ_0 en fonction de φ_p. b) $h^{\infty}_{\varphi_p}/h^{\infty}_0$ en fonction de φ_p. Les 4 tailles de particules suivantes sont concernées : $\triangle = 6\ \mu m$, $\diamond = 20\ \mu m$, $\bigcirc = 30\ \mu m$, $\square = 40\ \mu m$.

Le graphique (a) de la figure 4.3 donne τ/τ_0 en fonction de φ_p pour les différentes tailles de particules, les temps caractéristiques de drainage tendent à diverger lorsque $\varphi_p \approx 0,50$.

Le graphique (b) de la figure 4.3 donne les hauteurs de front rapportés à la hauteur de front de la mousse non chargée en fonction de φ_p. Ces hauteurs concernent la mousse à l'équilibre, donc à la fin du deuxième régime de drainage, durant lequel la mousse s'est asséchée, changeant alors les conditions de drainage et menant a un réseau plus étroit, fait de constrictions plus petites.
Ceci explique la rétention de particules que l'on observe même pour des particules pouvant circuler librement dans le réseau interstitiel à l'instant zéro du drainage ($\lambda < \lambda_I$).
Plus les particules sont grosses, plus cet effet intervient tôt, mais il survient toujours dans le deuxième régime de drainage, à l'instant où $\lambda > \lambda_I$ (Régime traité dans la partie sur la rétention).
Durant l'expérience, les observations vont dans ce sens : à la caméra on voit que les particules sont relâchées pendant le premier régime. Plus d_p est grand, plus $h^{\infty}_{\varphi_p}$ est petit et plus U^* est petit.
Enfin, plus φ_p est grand, plus $h^{\infty}_{\varphi_p}$ est petit, les particules, plus nombreuses, occupent plus de place et se retrouvent plus vite confinées. L'augmentation de φ_p conduit systématiquement à la diminution de U^*.

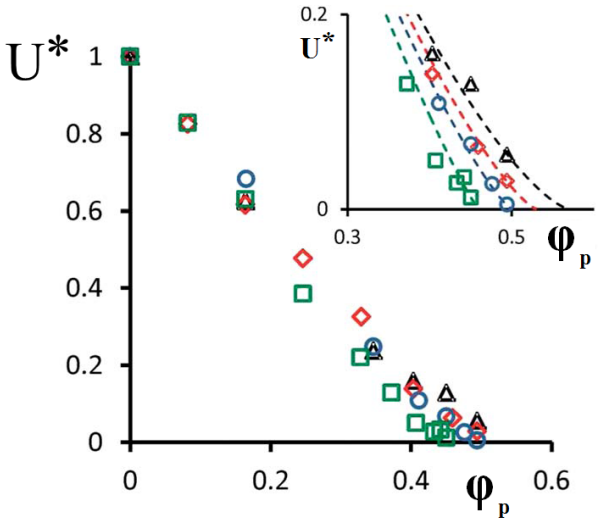


FIGURE 4.4 – Vitesses de drainage réduites en fonction de la concentration en particules dans la phase interstitielle φ_p. Encart : zoom sur les grandes valeurs de φ_p. $\triangle = 6\ \mu m$, $\diamond = 20\ \mu m$, $\bigcirc = 30\ \mu m$, $\square = 40\ \mu m$.

La figure 4.4 donne les vitesses adimensionnées en fonction de φ_p pour les quatre tailles de particules.
On remarque que pour toutes les tailles de particule, les courbes présentent une décroissance linéaire, partant de 1 pour le cas de la mousse non chargée jusqu'à annulation de la vitesse pour $\varphi_p \approx 0,5$.
L'encart qui fait un zoom sur les grandes valeurs de φ_p montrent que toutes les tailles de particules ne sont pas confondues, en effet les vitesses tendent à s'annuler pour des valeurs de φ_p de moins en moins grandes à mesure que l'on augmente d_p (ou λ).

4.2.2 Discussion sur la viscosité effective en fonction de λ

Dans ce qui a été présenté jusqu'alors, la fraction φ_p et la taille d_p des particules ont été variées alors que l'on a fixé les paramètres suivant $\Phi = 0,9$ et $D_b = 660\ \mu m$. Les quatre séries de mesures peuvent ainsi être différenciées à l'aide de λ, ainsi les mousses chargées de particules de 6 μm correspondent à $\lambda = 0,13$, celles de 20 μm à $\lambda = 0,43$, les 30 μm à $\lambda = 0,65$ enfin, pour les particules de 40 μm, on mesure $\lambda = 0,87$.

D'autre part, en ayant fixé $\Phi = 0,9$, nous considérons le régime des mousses humides, avec la majorité de phase interstitielle contenue dans les vertex, on peut alors utiliser l'équation 1.23 et estimer le volume des vertex.
Ainsi, en prenant $\Phi = 0,9$, on trouve : $V_{vertex} \approx 0,9r^3$ ou $V_{vertex} \approx 0,01D_b^3$. Ce qui donne $V_{vertex} \approx 3\ \mu L$ pour des bulles telles que $D_b = 660\ \mu m$.
Le volume de vertex est tracé en volumes de particule en fonction de λ sur la figure 4.5.

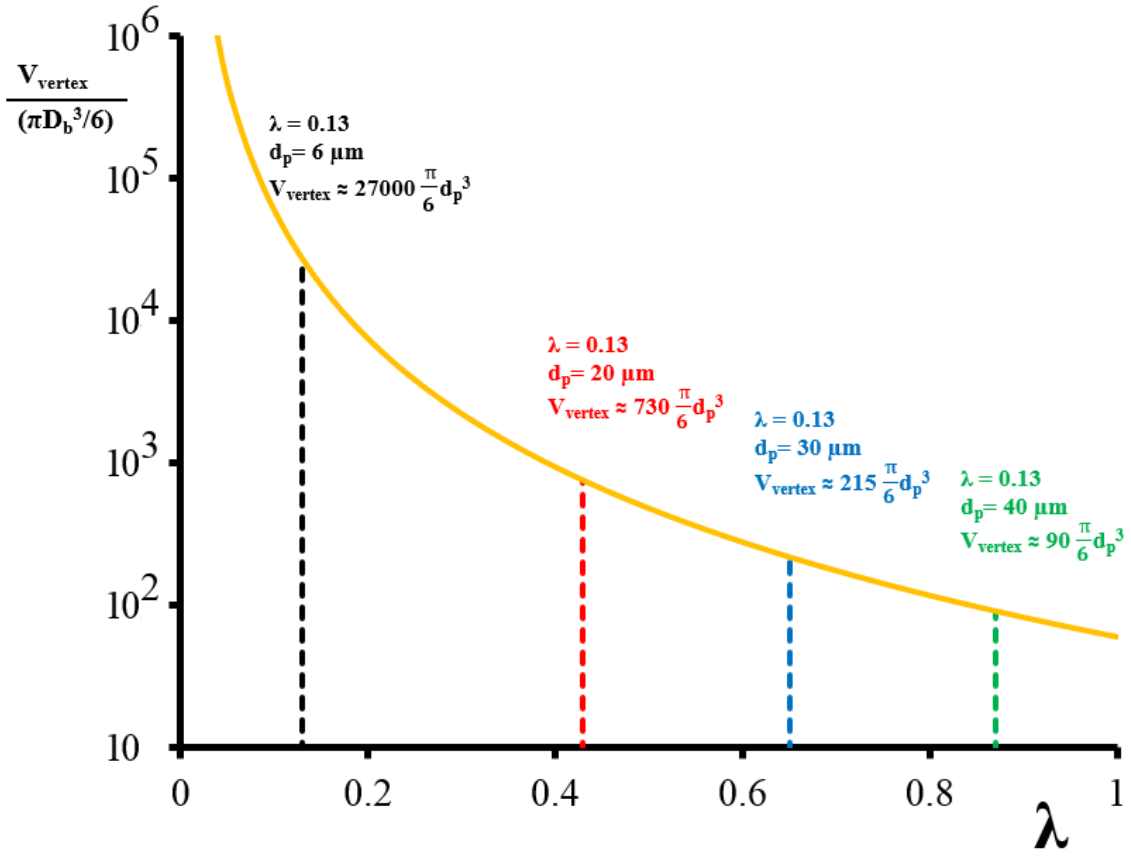


FIGURE 4.5 – Volume d'un vertex exprimé en volumes de particule en fonction de λ pour une mousse monodisperse avec $D_b = 660\ \mu m$ et $\Phi = 0,9$.

Nous choisissons d'analyser les résultats de ces expériences en terme de viscosité effective réduite η^*. En première approche, l'écoulement de la suspension interstitielle peut être analysé comme celui d'un liquide simple de viscosité effective supérieure. L'équation 1.51 (régime des vertex) nous permet alors d'écrire :

$$U^* = \frac{U_{\varphi_p}}{U_0} = \frac{\eta_0}{\eta_{\varphi_p}} = \frac{1}{\eta^*} \tag{4.3}$$

Le régime des mousses humides nous permet de faire l'hypothèse que seul les vertex sont responsables des variations de viscosité effective, en effet, les constrictions du réseau ne participent pas à la perte de charge globale du liquide drainant. Ceci s'explique par le glissement aux parois qui ne conduit pas à de la dissipation, alors que dans les vertex, la suspension est cisaillée.

Ainsi nous pouvons retracer les données de la figure 4.4 en viscosité effective réduite (figure 4.6). Avec ce nouveau tracé, on observe des divergences pour chacune des valeur de λ, elles surviennent d'autant plus tôt que la valeur de λ est grande.

L'augmentation de η^* en fonction de φ_p est décrite aux petites valeurs de φ_p par l'équation de *Batchelor* (équation 1.56). Pour les plus grandes fractions en particules,

c'est le modèle de *Krieger-Dougherty* (équation 1.58) qui est tracé (graphique (b) de la figure 4.6). La fraction de divergence a été prise comme paramètre ajustable, sa valeur (φ^*) correspondant à chaque λ est reportée en abscisse du graphique.

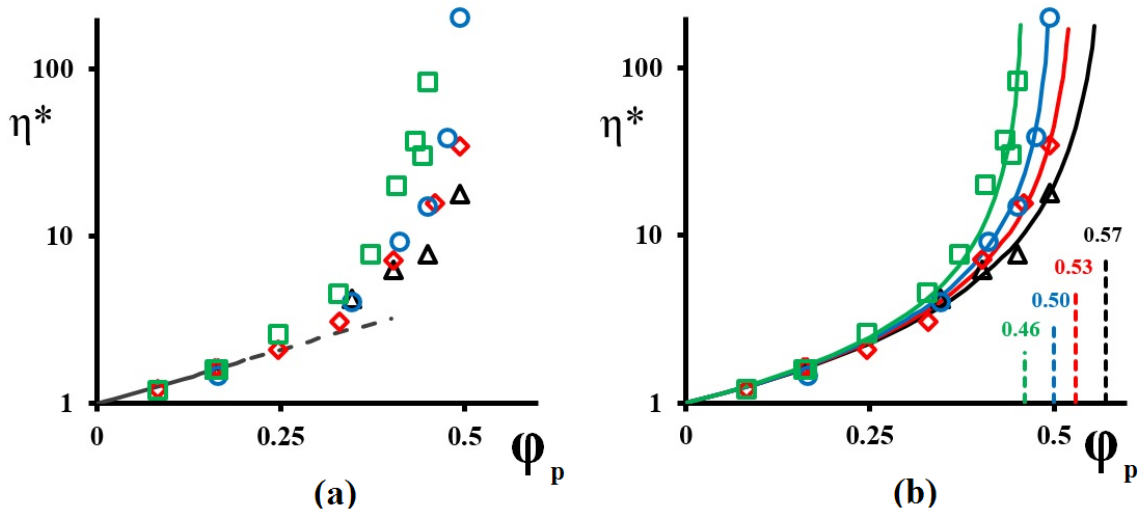


FIGURE 4.6 – (a) η^* (φ_p), le modèle de viscosité effective de *Batchelor* est tracé en gris. (b) Les mêmes données avec les ajustements de *Krieger-Dougherty*. $\triangle$ $\lambda = 0,13$, $\diamond$ $\lambda = 0,43$, $\bigcirc$ $\lambda = 0,65$, $\square$ $\lambda = 0,87$.

Cet effet de diminution de la valeur de φ^* avec l'augmentation de λ (voir figure 4.7) rend compte de l'empilement des particules. Plus elles sont grosses, plus elles encombrent vite le réseau.
En effet, pour une concentration donnée, lorsque le diamètre des particules augmente il est de plus en plus difficile de les empiler dans les vertex. Le volume exclu est important lorsque les particules sont grosses alors qu'il est faible lorsqu'elles sont petites.

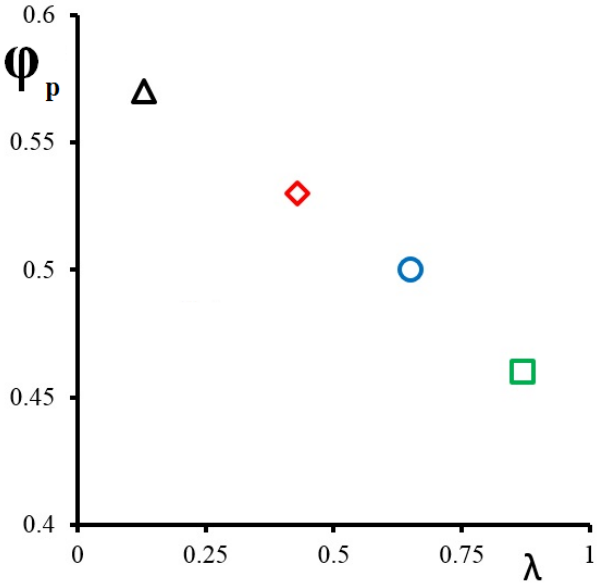


FIGURE 4.7 – Valeurs de φ^* en fonction de λ. $\triangle$ $\lambda = 0,13$, $\diamond$ $\lambda = 0,43$, $\bigcirc$ $\lambda = 0,65$, $\square$ $\lambda = 0,87$.

4.2.3 Comparaison avec les compacités des vertex et des bords de *Plateau*

Le détail du calcul de φ^*_{vertex} est présenté dans la partie consacrée à la rétention (*Modèles d'empilement de billes*). Nous le confrontons aux mesures.

Les mesures sont légèrement en dessous de la courbe donnée par le modèle de compacité bidisperse (voir figure 4.8). Si dans la réalité les viscosités divergent un peu plus tôt pour chaque λ, c'est parce que nous avons fait l'hypothèse d'un vertex fait d'un tétraèdre de quatre billes non déformées, correspondant à une mousse très humide où les jonctions sont plus volumineuses.

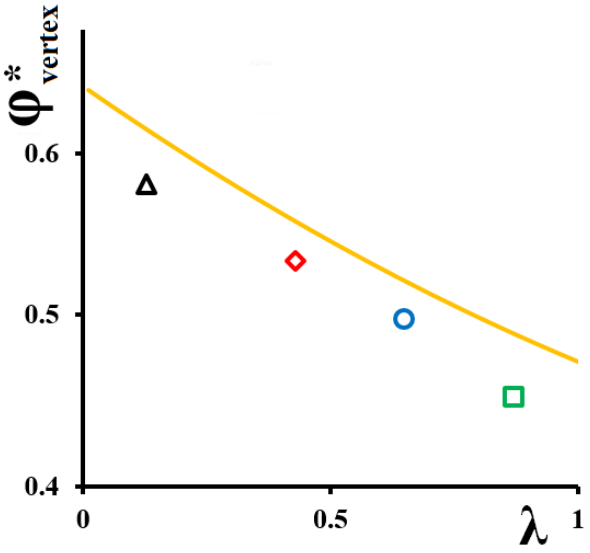


FIGURE 4.8 – En jaune, φ^*_{vertex} en fonction de λ, tracé à l'aide du modèle de compacité bidisperse. On trouve sur le même graphique les valeurs de divergences ajustées depuis les mesures expérimentales avec la relation de *Krieger-Dougherty*. $\triangle$ $\lambda = 0,13$, $\diamond$ $\lambda = 0,43$, $\bigcirc$ $\lambda = 0,65$, $\square$ $\lambda = 0,87$.

La partie de la thèse consacrée aux modèles d'empilement de billes donne également la compacité d'empilement maximale des particules dans les bords de *Plateau* en fonction de λ. Ceci nous permet de tracer la figure 4.9, elle confronte les mesures et les modèles pour la fraction $\varphi^*(\lambda)$ dans le cas des vertex et dans celui des bords de *Plateau*. Les courbes en gris entre les deux régimes théoriques sont obtenues par combinaison en utilisant la relation 1.16.

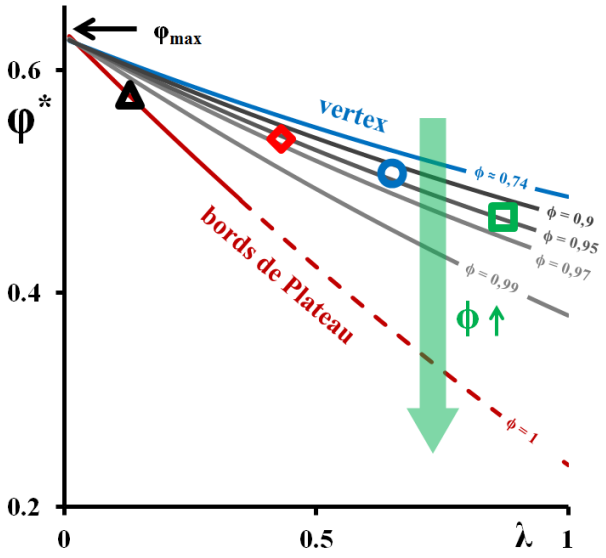


FIGURE 4.9 – φ^* en fonction de λ. La courbe calculée pour les vertex est tracée en bleu, celle correspondant au bords de *Plateau* est en rouge. Les courbes en gris sont des combinaisons des courbes bleue et rouge, elles sont tracées en tenant compte de la proportion volumique des vertex et des bords de *Plateau* (voir courbe tracée sur la figure 1.6). Les données ont été mesurées pour $\Phi = 0,9$, $\triangle$ $\lambda = 0,13$, $\diamond$ $\lambda = 0,43$, $\bigcirc$ $\lambda = 0,65$, $\square$ $\lambda = 0,87$.

Les données représentées sur le graphique 4.9 ont été réalisée à $\Phi = 0,9$. En tenant compte des proportions de vertex et de bords de *Plateau* (pondérées par leur fraction volumique), les mesures s'ajustent avec les courbes correspondant à $\Phi = 0,9 - 0,95$.

4.2.4 Ajustement de la viscosité pour tous les φ_p

En particulier pour une mousse humide, dominée par les vertex, nous comprenons que lorsqu'on augmente φ_p, les effets de confinement se font de plus en plus forts pour les λ élevés. Dans ces conditions, U dépend à la fois de λ et de φ_p.

Le travail réalisé jusqu'à présent nous permet de prendre en compte le changement des conditions de confinement dans le vertex en fonction de λ. Ainsi, nous obtenons une fonction φ^*_{vertex} par ajustement des valeurs de divergence que nous avions mesurées (Encart du graphique (b) de la figure 4.10) :

$$\varphi^*_{vertex}(\lambda) = 0,6 - \lambda/6 \tag{4.4}$$

Cette équation qui ajuste les données (mesures à $\Phi = 0,9$) nous permet de déduire la viscosité adimensionnée en fonction de λ en utilisant l'équation 4.4 comme valeur critique de divergence dans l'équation de *Krieger-Dougherty* :

$$\eta^*(\varphi_p) = \left(1 - \frac{\varphi_p}{\varphi^*_{vertex}(\lambda)}\right)^{-2,5\varphi^*_{vertex}(\lambda)} \tag{4.5}$$

Avec cette équation (tracée en vitesse et viscosité sur la figure 4.10), nous obtenons en particulier $U^*(\lambda_I, \varphi_p)$, la vitesse de drainage qui correspond à la fin du premier régime et qui fait le lien avec le régime suivant.

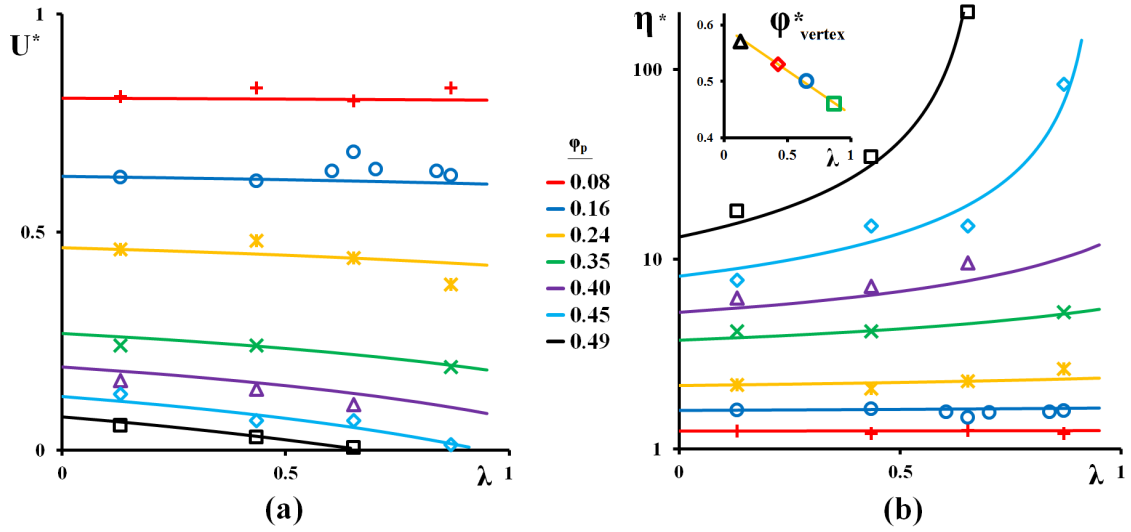


FIGURE 4.10 – (a) Mesures des vitesses de drainage pour $0,08 < \varphi_p < 0,49$ et $\lambda < \lambda_I$. (b) η^* en fonction de λ. Ces données ont été ajustées par 4.5. En encart : la fraction maximale d'empilement d'un vertex. La courbe jaune est déduite par ajustement.

4.2.5 Conclusion

Nous avons réalisé des expériences de drainage de mousses de suspension, dans le cas de particules non piégées par le réseau de la mousse. Nous avons ensuite mesuré des vitesses de drainage. Les conditions de mobilité aux interfaces de la mousse ne conduisent pas à de la dissipation visqueuse dans les bords de *Plateau*, la suspension ne se retrouvant cisaillée que dans les vertex.

Ces considérations nous permettent d'écrire l'égalité suivante : $U^* = 1/\eta^*$, les mesures des vitesses de drainage constituant alors une mesure de la viscosité effective de la suspension s'écoulant dans le réseau de la mousse. Ces valeurs de viscosité ont été tracées pour différents λ en fonction de la fraction interstitielle en particules φ_p.
Les divergences de viscosité ont ensuite été extrapolées à l'aide de la relation de *Krieger-Dougherty* pour chaque valeur de λ pour ainsi obtenir $\varphi^*(\lambda)$.

Ces dernières valeurs ont alors été comparées à deux modèles de compacité, correspondant aux deux empilements des deux géométries typiques que l'on trouve dans une mousse : celles des vertex et celle des bords de *Plateau*.
Le modèle correspondant aux vertex est celui d'un vertex idéal assimilé à l'interstice que forme un tétraèdre de quatre billes. Alors que le modèle des bords de *Plateau* correspond à l'espace interstitiel formé par trois cylindres au contact.
Les mesures et la théorie concernant ce régime de drainage sont en bon accord, ce travail a donné lieu à publication : [24].

4.3 Régime 2 : Capture individuelle, $\lambda_I < \lambda < \lambda_{II}$

Dans cette partie nous nous intéressons à la capture individuelle des particules qui se produit lorsque λ devient plus grand que λ_I.

Dans un premier temps, des expériences sont réalisées pour $0,08 < \varphi_p < 0,49$ puis ces résultats sont interprétés à l'aide d'un modèle semi-empirique englobant toute la gamme de φ_p. Cette description pour la transition prolonge le modèle présenté précédemment pour $\lambda < \lambda_I$, et devient valable sur la gamme $0 < \lambda < \lambda_{II}$ avec $\lambda_{II} = 1,75$.

Dans la partie suivante, un modèle de surface spécifique est proposé. Il prend en compte à la fois la modification de la résistance hydraulique du réseau en présence de particules capturées et le renforcement de la viscosité effective dû aux particules libres.

4.3.1 Description semi-empirique de la capture individuelle

Dans cette section, nous décrivons la capture individuelle des particules pour la gamme de fraction granulaire suivante : $0,08 < \varphi_p < 0,40$.

Expériences menées

Les expériences présentées ici sont réalisées pour des fractions en particules telles que : $0 < \varphi_p < 0,49$. La capture n'est étudiée que pour $\varphi_p < 0,40$, ce qui correspond aux limites expérimentales. Nous pouvons noter que seules les données à $\varphi_p = 0,16$ peuvent être réalisées à des $\Phi \neq 0,9$. Pour cette fraction en particules relativement faible, nous avons également varié λ à l'aide de Φ, de façon à obtenir des données pour un maximum de valeurs de λ à une valeur de φ_p fixée.

Nous avons vu précédemment que $U^* = 1/\eta^*$.
Cette égalité n'a de sens qu'avec $\lambda < \lambda_I$ puisque pour des valeurs supérieures de λ, les particules se bloquent dans le réseau interstitiel. C'est pourquoi nous parlons de résistance hydraulique lorsque $\lambda > \lambda_I$. On a alors :

$$R^* = \frac{1}{U^*} \tag{4.6}$$

On remarque qu'avec la résistance hydraulique, on s'intéresse toujours à l'inverse de la vitesse adimensionnée.

Sur le graphique (a) de la figure 4.11 sont tracées les vitesses adimensionnées pour toutes les fractions en particules données précédemment. On remarque que le comportement liée à la capture individuelle des particules ne varie pas beaucoup d'une concentration à l'autre lorsque $\varphi_p \lesssim 0,4$, la transition est forte et s'effectue entre λ_I et λ_{II}, avec :

$$\lambda_I = 0,9 \tag{4.7}$$

et :

$$\lambda_{II} = 1,75 \tag{4.8}$$

Pour des valeurs de fractions granulaires supérieures, la vitesse de drainage peut s'être annulée lors du premier régime (voir en particulier la courbe noire, $\varphi_p = 0,49$ sur le graphique (a) de la figure 4.11)
Nous avons vu que pour ce premier régime et pour des petites concentrations en particules, la vitesse de drainage ne dépendait pas de la taille des grains (voir section sur la capture collective).

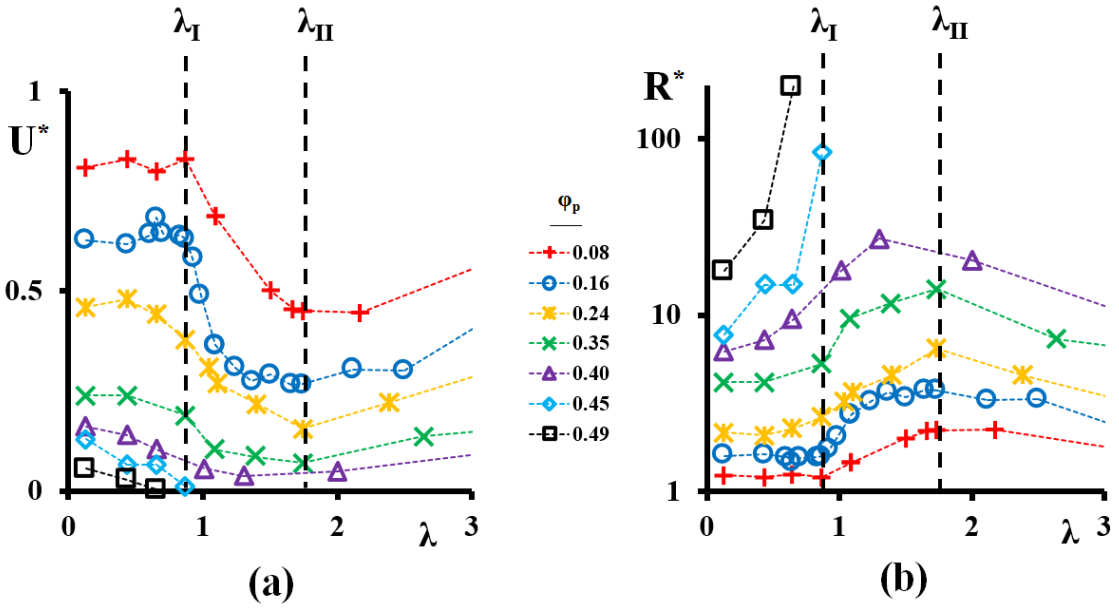


FIGURE 4.11 – (a) Mesures des vitesses pour $0,08 < \varphi_p < 0,49$ et $\lambda < 3$. (b) R^* en fonction de λ. La transition de capture concerne la gamme : $\lambda_I < \lambda < \lambda_{II}$.

Cependant, pour $\lambda > \lambda_I$, on remarque que la vitesse est fortement diminuée, cette transition correspond à la capture individuelle des particules qui deviennent trop grosses pour être entrainées hors de la mousse. Cette diminution brutale de la vitesse se poursuit jusqu'à un minimum situé entre $\lambda = 1,5$ et $\lambda = 2$, nous le prenons à $\lambda_{II} = 1,75$.

Vitesses de drainage à $\lambda = \lambda_{II}$

Désormais nous cherchons une expression donnant la vitesse de drainage en fonction de φ_p à la valeur particulière de $\lambda = \lambda_{II}$. Cette information sera déterminante pour obtenir l'expression de $U^*(\lambda, \varphi_p)$.

Nous proposons alors d'ajuster $U^*(\lambda_{II}, \varphi_p)$ sur les mesures réalisées aux différents φ_p :

$$U^*\left(\lambda_{II}, \varphi_p\right) = 1 + 1,176\varphi_p^{3/2} - 2,005\sqrt{\varphi_p} \tag{4.9}$$

Cette fonction est tracée en vitesse et en résistance sur la figure 4.12

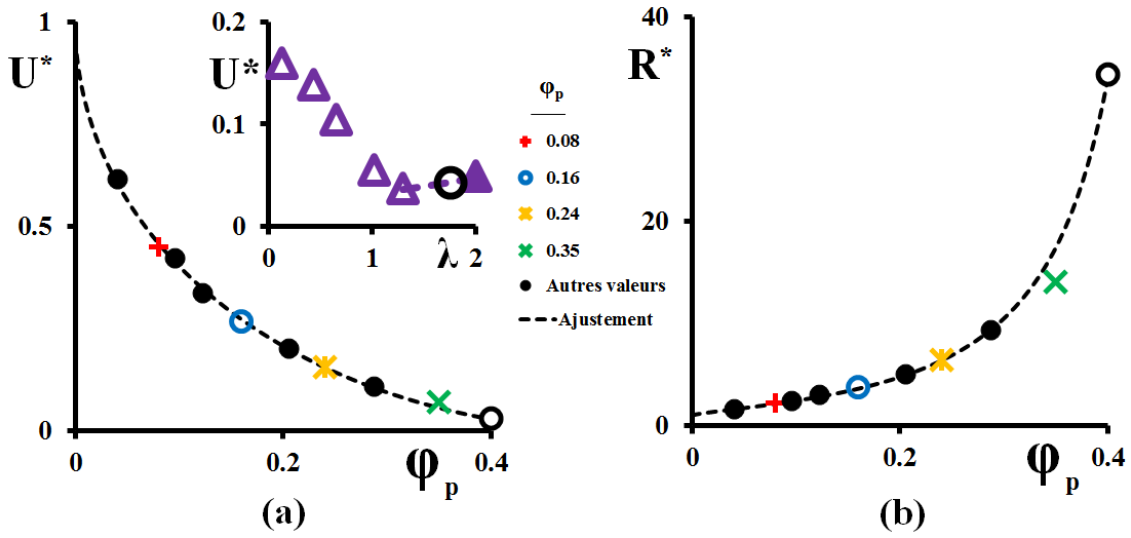


FIGURE 4.12 – (a) U^* en fonction de φ_p à $\lambda = \lambda_{II}$. La valeur ◯ a été interpolée pour $\varphi_p = 0,40$ (voir encart : $U^*(\lambda)$ pour $\varphi_p = 0,40$). (b) R^* en fonction de φ_p. Ces données ont été ajustées avec l'équation 4.9.

Modèle semi-empirique de capture individuelle pour tous les φ_p

Nous choisissons de normaliser les données de $U^*(\lambda, \varphi_p)$ pour toutes les valeurs de λ et de φ_p. Nous traçons alors $\bar{U}$ en fonction de $\bar{\lambda}$ sur la fenêtre $[\lambda_I, \lambda_{II}]$ et $[U(\lambda_{II}), U(\lambda_I)]$, avec :

$$\bar{U} = \frac{U^* - U^*(\lambda_{II})}{U^*(\lambda_I) - U^*(\lambda_{II})} \tag{4.10}$$

et :

$$\bar{\lambda} = \frac{\lambda - \lambda_I}{\lambda_{II} - \lambda_I} \tag{4.11}$$

L'écart entre λ_I et λ_{II} rend compte des effets de bord dans le processus de capture individuelle des particules. Dans un cas idéal, sans effets de bord, les particules seraient toutes capturées à $\lambda \approx 1$. Nous pouvons noter que dans les conditions de nos expériences, la transition de capture s'étale de λ_I à λ_{II} dont le rapport vaut : $\lambda_{II}/\lambda_I \approx 1,9$ alors que le rapport des tailles de constrictions à la paroi de la cellule de drainage et celles situées dans le volume de la mousse sont de l'ordre de $1,6$ (voir figure 3.22).

La fonction $\bar{U}(\bar{\lambda})$ est tracée sur la figure 4.13. On remarque que l'ensemble des points se recale selon une même courbe, ils décrivent le même type de transition brutale. Cette tendance est bien décrite par la courbe tracée en pointillés, d'équation :

$$\bar{U} = e^{-4\bar{\lambda}} \tag{4.12}$$

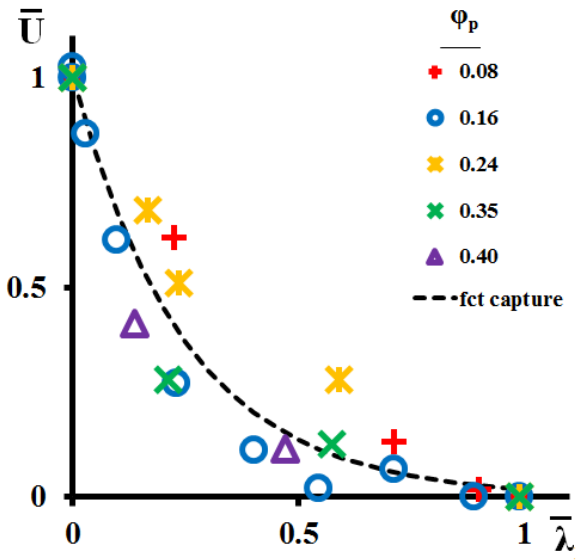


FIGURE 4.13 – $\bar{U}$ en fonction de $\bar{\lambda}$ pour $0,08 < \varphi_p < 0,40$. Ces données ont été ajustées par la fonction $\bar{U} = e^{-4\bar{\lambda}}$

Le graphique de la figure 4.13 illustre que la transition qui concerne la capture individuelle est gouvernée par λ, elle est plus ou moins marquée selon la fraction en particules mais est pilotée par la même physique.

Nous sommes à présent capable de fournir une expression de la vitesse de drainage pour la transition de capture individuelle en fonction de λ et de φ_p :

$$U^*(\lambda) = e^{-4\left(\frac{\lambda-\lambda_I}{\lambda_{II}-\lambda_I}\right)}\Delta U^* + U^*(\lambda_{II}) \tag{4.13}$$

avec :

$$\Delta U^* = U^*(\lambda_I) - U^*(\lambda_{II}) \tag{4.14}$$

La dépendance en φ_p est contenue dans $U^*(\lambda_I)$ et $U^*(\lambda_{II})$.
$U^*(\lambda_I)$ est modélisée par l'équation 4.5 alors que $U^*(\lambda_{II})$ est ajustée empiriquement (équation 4.9).

Ainsi, à l'aide de la relation 4.13, nous décrivons les vitesses en fonction de λ et φ_p lorsque $\lambda_I < \lambda < \lambda_{II}$ (voir figure 4.14).

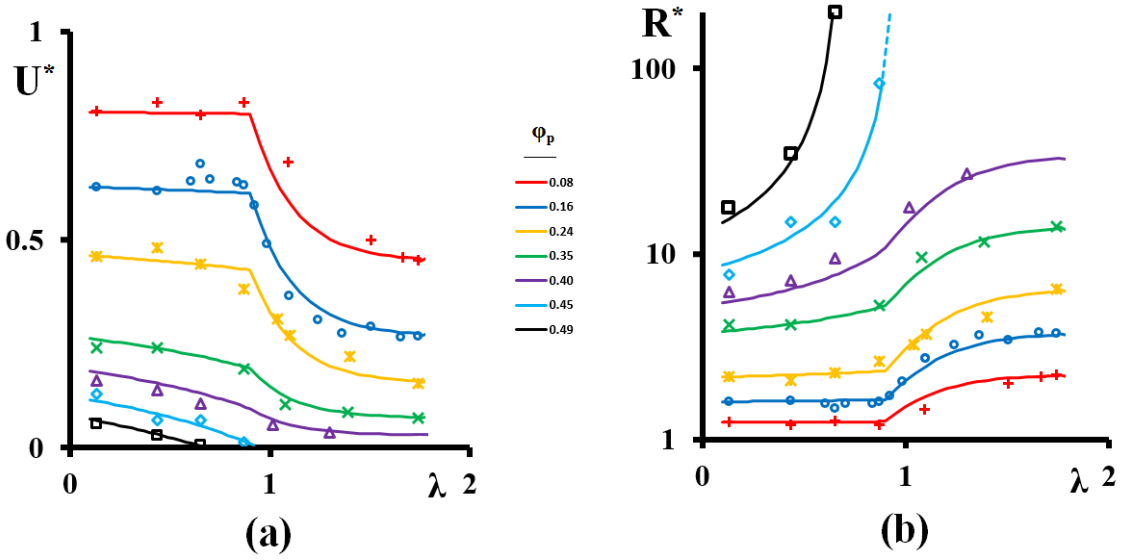


FIGURE 4.14 – Mesures ajustées par la relation 4.13 $U^*(\lambda, \varphi_p)$ (a) et $R^*(\lambda, \varphi_p)$ (b) pour $0,08 < \varphi_p < 0,49$ et $0 < \lambda < \lambda_{II}$.

4.3.2 Modélisation de la transition de capture individuelle

Dans cette section, la modélisation est abordée du point de vue de la surface spécifique. Les données qui concernent $\lambda < \lambda_{II}$ sont reprisent.

Remplissage d'un vertex

Pour commencer, nous avons besoin de décrire le remplissage des vertex par les particules. Nous faisons les deux hypothèses suivantes :

— On suppose que les particules s'empilent dans les vertex à φ^*_{vertex} lorsque $\lambda < \lambda_I$ (ajusté sur les mesures du premier régime, équation 4.4) et à $\varphi_p = \varphi^*_{vertex}(\lambda_I)$ lorsque $\lambda_I < \lambda < \lambda_{II}$.

— Pour rendre compte de la capture progressive, nous considérons deux types de particules : celles qui sont piégées au cœur du réseau de la mousse et celles qui circulent librement à la paroi de la cellule de drainage. La proportion du total des particules piégées dans les vertex est donnée par ξ_τ (équation 3.3), son complémentaire étant la proportion de particules non piégées. Le problème est traité selon une approche de milieu effectif, ξ_τ donnant le remplissage moyen du vertex considéré.

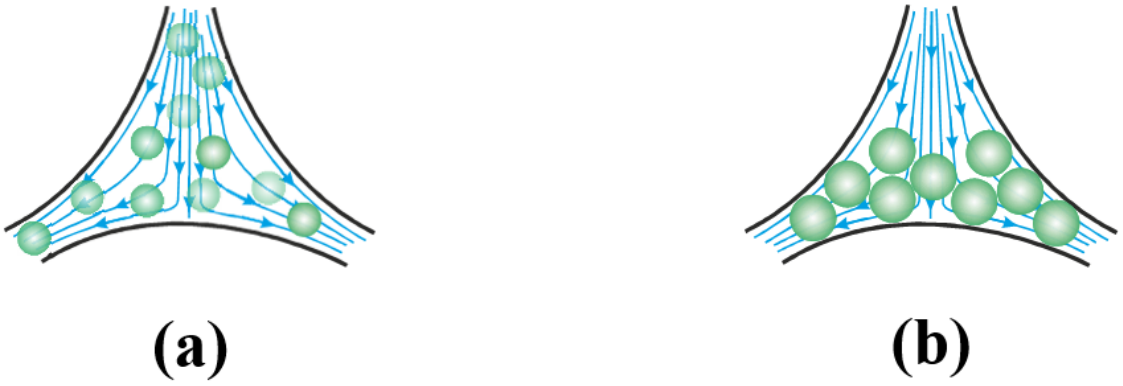


FIGURE 4.15 – Schémas de Vertex avec particules non piégées (a) et particules piégées (b)

La fonction suivante donne la fraction volumique du vertex occupée par l'empilement.

$$\varphi_v(\lambda) = \xi_\tau \frac{\varphi_p}{\varphi^*_{vertex}} \tag{4.15}$$

Modèle de capture individuelle

On considère que les particules piégées participent à la réduction de la vitesse de drainage en créant des empilements poreux dans les vertex de la mousse. La perte de charge qui lui est associée est déduite du modèle de *Carman-Kozeny* :

$$\nabla P = U\eta \frac{C_K}{(1-\varphi^*_{vertex})^3} A_s^2 \tag{4.16}$$

Avec ∇P le gradient de pression, U la vitesse du liquide, C_K la constante de *Carman-Kozeny*, prise égale à 5 pour un empilement de sphères et A_s^2 la surface spécifique des particules composant le poreux, pour des sphères de diamètre d_p, elle vaut :

$$A_s = \varphi^*_{vertex} \frac{\pi d_{p^2}}{\frac{\pi}{6} d_p^3} = \varphi^*_{vertex} \frac{6}{d_p} \tag{4.17}$$

Ce qui nous permet de réécrire ∇P de la façon suivante :

$$\nabla P = \frac{U\eta}{d_p^2} 180 \frac{(\varphi^*_{vertex})^2}{(1-\varphi^*_{vertex})^3} = \frac{U\eta}{C_{CK} d_p^2} \tag{4.18}$$

Avec $C_{CK} \approx 6 \times 10^{-4}$ lorsque $\varphi^*_{vertex} = 0,64$.

Le reste du vertex est non occupé par les particules, sa perte de charge est prise en compte en utilisant la loi de *Darcy* (en considérant la mousse comme un milieu poreux) :

$$\nabla P = \frac{\eta U}{K} = \frac{\eta U}{\tilde{K}_v r^2} \tag{4.19}$$

Avec K la perméabilité du vertex vide, r le rayon du courbure du bord de *Plateau* et $\tilde{K_v}$ la perméabilité réduite.

On propose ensuite d'assembler en série la résistance due au vertex chargé et celle due au vertex non chargé en pondérant ces deux contributions par les fractions de particules piégées/non piégées.

$$\nabla P(\varphi_v) = \left[(1-\varphi_v)\,\frac{\eta}{\tilde{K_v} r^2} + \varphi_v \frac{\eta}{C_{CK} d_p^2}\right] U \tag{4.20}$$

Que l'on peut réécrire en vitesse :

$$U(\varphi_v) = \left[\nabla P \frac{\eta}{\tilde{K_v} r^2}\right]^{-1} \left[(1-\varphi_v) + \varphi_v \frac{\tilde{K_v} r^2}{C_{CK} d_p^2}\right] \tag{4.21}$$

Et en vitesse adimensionnée, en faisant apparaître λ avec les équations 1.8 et 3.1 :

$$U^*(\lambda) = \left[(1-\varphi_v) + \frac{\tilde{K_v}}{C_{CK} \times 4\left(\frac{2}{\sqrt{3}} - 1\right)^2 \lambda^2} \varphi_v\right]^{-1} \tag{4.22}$$

Dans l'équation 4.22, le membre de gauche concerne la suspension (particules non capturées qui s'écoulent) alors que le membre de droite réfère aux particules piégées. Pour prendre en compte l'augmentation de la viscosité effective due à la présence des particules libres dans la suspension, nous utilisons l'équation de *Krieger-Dougherty* :

$$\tilde{\eta}(\lambda) = \left(1 - (1 - \xi_\tau(\lambda))\,\frac{\varphi_p}{\varphi^*_{vertex}}\right)^{-2{,}5\varphi^*_{vertex}} \tag{4.23}$$

L'équation 4.23 donne la viscosité effective de la suspension qui s'écoule à travers les vertex partiellement chargés. La proportion de particules non piégées est donnée par : $(1 - \xi_\tau(\lambda))$.
La vitesse adimensionnée s'écrit alors :

$$U^*(\lambda) = \left[(1-\varphi_v)\,\tilde{\eta}(\lambda) + \frac{\tilde{K_v}}{C_{CK} \times 4\left(\frac{2}{\sqrt{3}} - 1\right)^2 \lambda^2} \varphi_v\right]^{-1} \tag{4.24}$$

$\tilde{K_v}$ est utilisée comme paramètre ajustable sur chaque valeur de φ_p. Les $\tilde{K_v}\,(\varphi_p)$ obtenus sont ensuite ajustés à l'aide de léquation suivante (voir figure 4.16) :

$$\tilde{K_v}\,(\varphi_p) = a + b \times \varphi_p \times e^{c \times \varphi_p} \tag{4.25}$$

Avec $a = 10^{-2}$, $b = 4 \times 10^{-4}$ et $c = 13,2$.

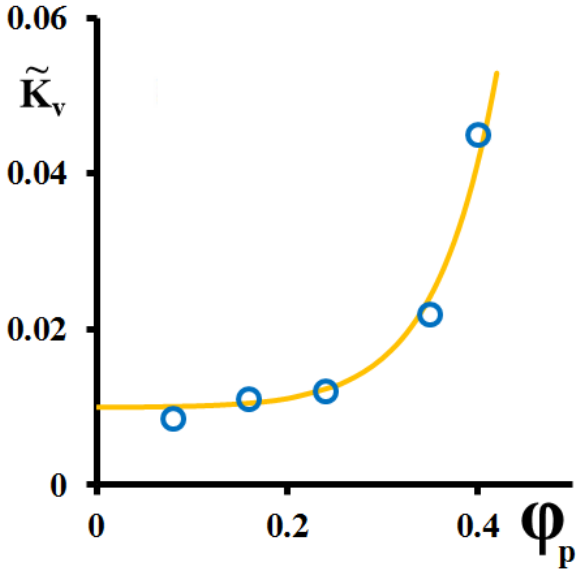


FIGURE 4.16 – Ajustement des $\tilde{K_v}$ au différents φ_p (ronds bleus). L'équation 4.25 est tracée en jaune.

Nous remarquons que $\tilde{K_v}$ augmente très vite avec φ_p. Nous pouvons affirmer que les particules modifient la nature du vertex, si ce n'était pas le cas, $\tilde{K_v}$ serait indépendant de φ_p.

L'équation 4.24 permet de déduire la résistance d'un vertex non chargé (Expression extraite de [30] considérée pour des mousses sèches ($\Phi > 0,99$)) :

$$\tilde{R_v} \approx 26 \frac{(1-\Phi)^{0,6}}{\tilde{K_v}} \tag{4.26}$$

On trouve ainsi $\tilde{R_v}$ de l'ordre de 600 pour un vertex faiblement chargé, alors supposé non déformé. Ces valeurs sont cohérentes avec celles jusqu'alors mesurées [19, 21, 23, 36, 72].

La figure 4.17 confronte le modèle donné par 4.24 et les mesures expérimentales.

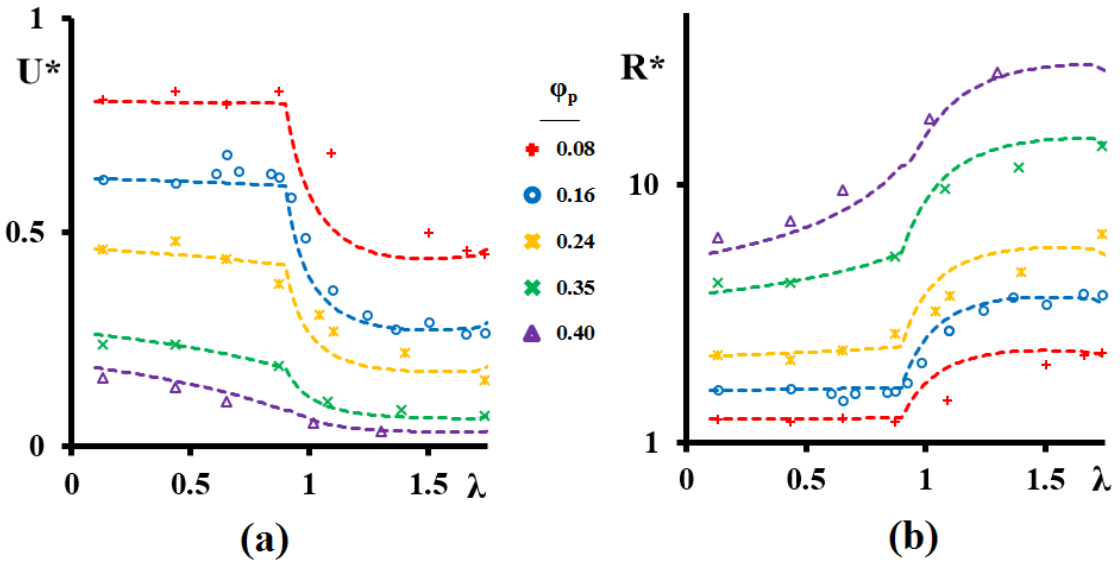


FIGURE 4.17 – (a) Mesures de vitesses de drainage (points) avec le modèle de surface spécifique (lignes en pointillés). (b) Mesures de résistances et le modèle.

La transition sur la vitesse de drainage est pilotée par λ. Ce comportement a pu être modélisé grâce à la prise en compte de la rétention en particules par la mousse.

Notons que lorsque λ augmente ou/et lorsque φ_p diminue, le nombre de particules par vertex diminue. Par exemple, on ne compte plus qu'une particule par vertex à $\lambda = \lambda_{II}$ quand $\varphi_p \approx 0,1$. Dans ces conditions, on comprend que le modèle marche moins bien aux faibles fractions granulaires. Ce premier travail mettant en évidence la transition correspondant à la capture individuelle de particules est publié ici : [73].

4.3.3 Conclusion

Le comportement conduisant à la capture individuelle des particules a été modélisé pour des fractions en particules telles que $0 < \varphi_p < 0,40$.
Cette transition a été identifiée comme se produisant pour des valeurs de λ comprises entre λ_I et λ_{II}.

L'ajustement que nous proposons repose sur la détermination de $U^*(\lambda_I)$ et $U^*(\lambda_{II})$ pour toutes les valeurs de φ_p, ces vitesses ont été ajustées empiriquement.
Cette capture individuelle se produit selon un même comportement à toutes les valeurs de φ_p, elle reste ainsi pilotée par λ et apparaît comme géométrique.

Le modèle détaillé dans un second temps ne peut être étendu à toutes les fractions en particules. C'est un modèle de surface spécifique qui prend en compte l'aire des particules en contact avec le liquide interstitiel. Cette aire est très dépendante de l'empilement, lui-même dépendant de λ et φ_p et sa détermination est rendue très compliquée. Cependant,

ce problème sera traité dans une section prochaine, notamment grâce à des outils numériques pour le cas très particulier de mousses chargées à une particule par vertex.

Nous pouvons néanmoins remarquer que le modèle de surface spécifique déduit du modèle de *Carman-Kozeny* comme l'ajustement proposé par la relation 4.13 décrivent bien les transitions observées expérimentalement (voir figure 4.18).

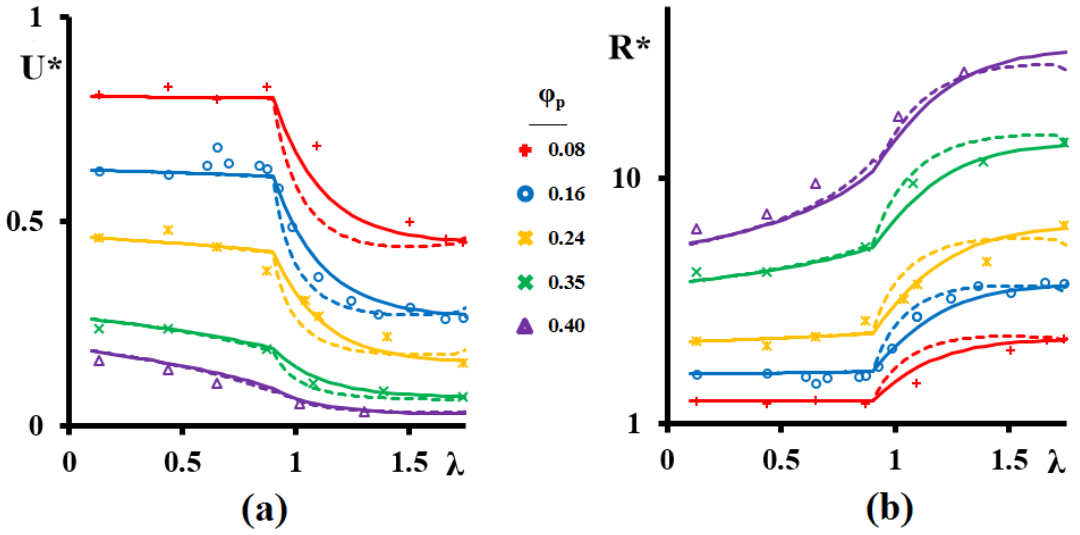


FIGURE 4.18 – (a) $U^*(\lambda)$ pour $0 < \varphi_p < 0,40$. Le modèle de surface spécifique est tracé en pointillé. L'ajustement proposé par la relation 4.13 est tracé en lignes pleines. (b) Mesures de résistances, modèle et ajustement.

4.4 Régime 3 : Vers l'exclusion des particules, $\lambda > \lambda_{II}$

Cette troisième partie sur le drainage est consacrée aux grandes valeurs de λ, elles conduisent à une remontée de la vitesse de drainage (ou à la réduction de la résistance hydraulique), un minimum apparaît autour de $\lambda = \lambda_{II}$.
Pour conclure cette partie, une interprétation à la fois empirique et théorique sera proposée, elle viendra compléter la modélisation sur une gamme de λ plus élargie.

Sur le graphique (a) de la figure 4.19 sont tracées les vitesses adimensionnées pour $0,08 < \varphi_p < 0,45$ et $\lambda_{II} < \lambda < 20$. Comme pour les valeurs de λ explorées précédemment, on remarque que le fait d'augmenter la fraction en particules diminue systématiquement la valeur de U^*.

Pour toutes les concentrations tracées sur le graphique, on note que U^* augmente avec λ, d'abord rapidement (entre λ_{II} et $\lambda \approx 5$) avant de rejoindre doucement la valeur limite de $R^*(\lambda_\infty)$ lorsque λ devient plus grand que λ_∞, avec $\lambda_\infty \approx 15$.
Quand λ devient grand, la fraction granulaire de la phase interstitielle est expérimentalement limitée à $\varphi_p = 0,35$.

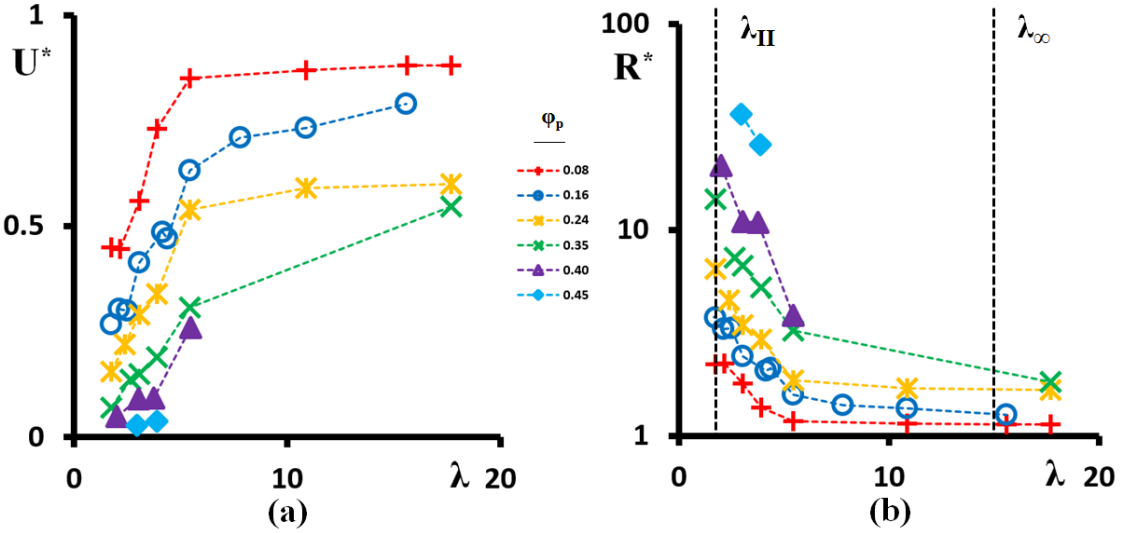


FIGURE 4.19 – (a) Mesures des vitesses pour $0,08 < \varphi_p < 0,45$ et $\lambda_{II} < \lambda < 20$. (b) Mesures exprimées en résistance.

4.4.1 Limite des particules exclues du réseau

Lorsque les particules sont exclues du réseau, la mousse se comporte vis-à-vis du drainage comme une mousse liquide, de fraction gazeuse plus élevée. Les particules sont en dehors du réseau et la phase interstitielle se voit privée de leur contribution. A mesure que λ augmente, les portion de surface des particules que voit le liquide diminue jusqu'à devenir négligeable. L'équation 1.46 détaillée dans l'état de l'art et $\tilde{R_v} = r^3 R_v/\eta$ nous

permettent d'écrire la résistance d'un vertex aux parois mobiles en fonction de la fraction volumique gazeuse Φ :

$$R_v = \frac{\eta}{r^3}\frac{1,3}{\alpha_v} D_b^2 \left(1-\Phi\right)^{3/2} \tag{4.27}$$

Avec α_v le coefficient de perméabilité associé au vertex.

Nous écrivons ensuite la résistance réduite R^* en supposant que les parois de la mousses sont mobiles.

Il vient alors, avec R_0 la résistance de la mousse non chargée :

$$R^* = \frac{R}{R_0} = \left[\frac{\left(1-\Phi\right)\left(1-\varphi_p\right)}{\left(1-\Phi\right)}\right]^{-3/2} = \left(1-\varphi_p\right)^{-3/2} \tag{4.28}$$

Ou pour la vitesse :

$$U^* = \left(1-\varphi_p\right)^{3/2} \tag{4.29}$$

L'expression de R^* est confrontée aux mesures expérimentales sur la figure 4.20. Les mesures sont en bon accord avec l'expression 4.28.

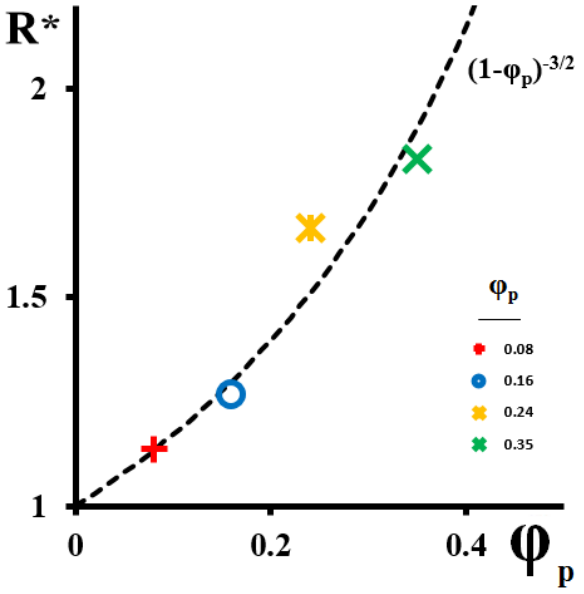


FIGURE 4.20 – R^* en fonction de φ_p. La courbe en pointillés est calculée pour des particules exclues du réseau de la mousse.

La dépendance de la résistance hydraulique réduite en $\left(1-\Phi\right)^{3/2}$ a été vérifiée sur les mesures de drainage réalisées pour les mousses non chargées (voir figure 4.21).

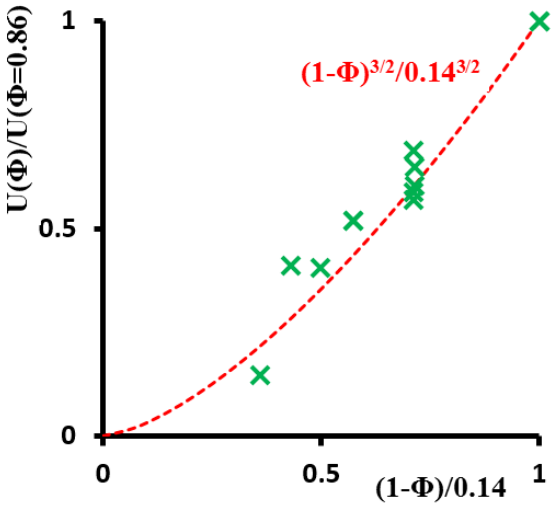


FIGURE 4.21 – Vitesses de drainage réduite par la vitesse d'une mousse à $\Phi = 0,86$ en fonction de $(1-\Phi)/0,14$ (points verts). La courbe rouge en pointillés montre la dépendance en $(1-\Phi)^{3/2}$. $D_b = 660\ \mu m$.

4.4.2 Description aux grandes valeurs de λ

En supposant que l'exclusion progressive des particules qui a lieu pour $\lambda_{II} < \lambda < \lambda_\infty$ ait le même comportement à toutes les valeurs de φ_p, il est possible de normaliser R^* pour toutes les valeurs de λ et de φ_p.

Ainsi, nous traçons $\bar{R}$ sur la fenêtre $[\lambda_{II}, \lambda_\infty]$ et $[R^*(\lambda_{II}), R^*(\lambda_\infty)]$:

$$\bar{R}(\lambda) = \frac{R^*(\lambda) - R^*(\lambda_{II})}{R^*(\lambda_{II}) - R^*(\lambda_\infty)} \tag{4.30}$$

La fonction $\bar{R}(\lambda)$ est tracée sur la figure 4.22. L'ensemble des points se recale selon une même courbe, ils décrivent la diminution de R^* qui correspond à l'exclusion et à la raréfaction des particules.
Ce comportement est bien décrit par la courbe tracée en pointillés noirs d'équation :

$$\Theta_{\bar{R}(\lambda)} = 2,65\lambda^{-7/4} \tag{4.31}$$

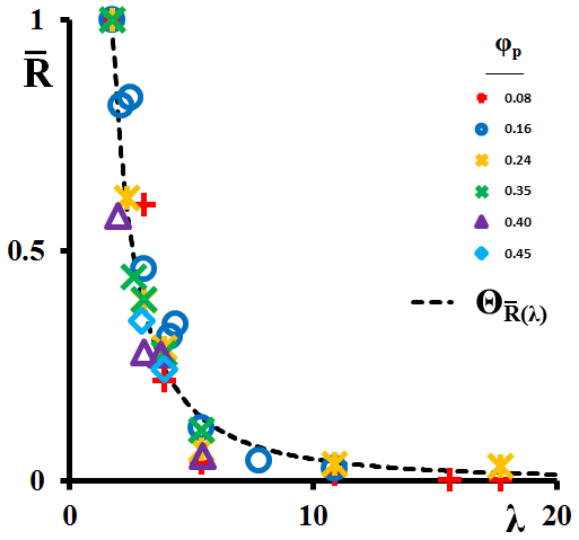


FIGURE 4.22 – $\bar{R}$ en fonction de λ pour $0,08 < \varphi_p < 0,45$. Ces données sont ajustées par $\Theta_{\bar{R}(\lambda)}$ (pointillés noirs).

Nous pouvons ainsi fournir une expression de la résistance réduite R^* en fonction de λ et φ_p :

$$R^* = 2,65\lambda^{-7/4}\left(R^*(\lambda_{II}) - R^*(\lambda_\infty)\right) + R^*(\lambda_{II}) \tag{4.32}$$

La dépendance en φ_p est contenue dans $U^*(\lambda_{II})$ et $U^*(\lambda_\infty)$. $U^*(\lambda_{II})$ est ajustée par l'équation 4.9 et $U^*(\lambda_\infty)$ est modélisée et donnée par l'équation 4.28.

Les mesures de U^* et R^* sont tracées sur les graphique (a) et (b) de la figure 4.23 pour l'ensemble des gammes de λ et φ_p.

On remarque qu'à une valeur donnée de λ, U^* diminue avec φ_p. En revanche, la variation de U^* n'est pas monotone avec λ pour φ_p fixé. On note en particulier un minimum très prononcé autour de λ_{II} pour toutes les valeurs de φ_p.

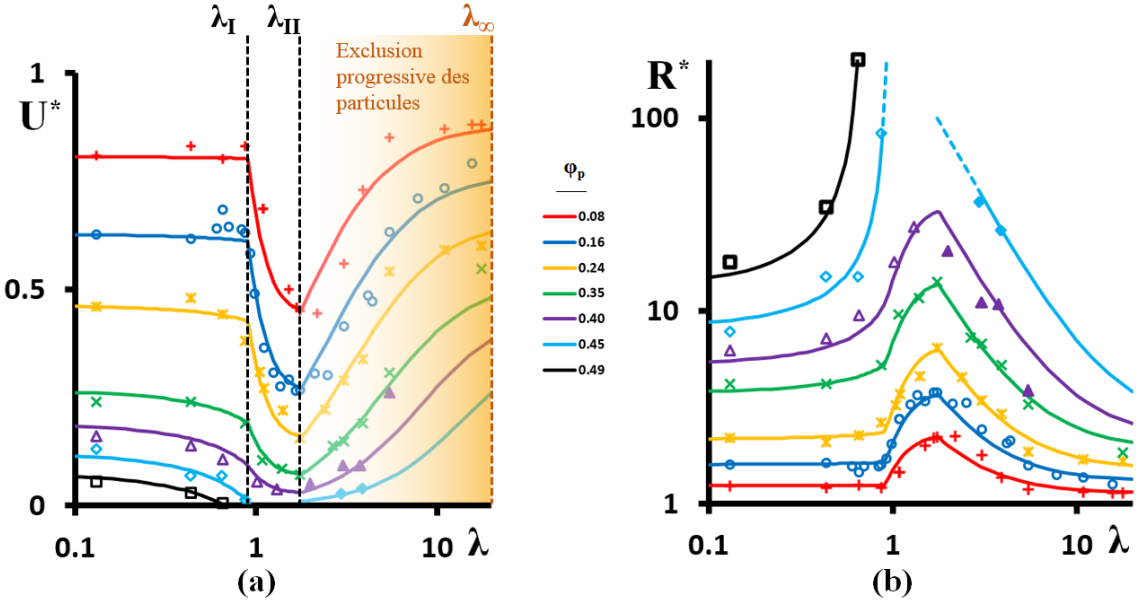


FIGURE 4.23 – Mesures et modèle semi-empirique exprimés en vitesse (a) et en résistance (b) pour $0,08 < \varphi_p < 0,49$ et $0,1 < \lambda < 20$.

4.4.3 Conclusion

Nous avons proposé une description qui prend en compte l'exclusion progressive des particules du réseau de la mousse.

Cette transition s'étend du minimum des vitesses, mesuré à $\lambda = \lambda_{II}$ jusqu'au plateau correspondant aux grandes valeurs de λ pour lequel la vitesse est maximale.
La borne supérieure des vitesses est modélisée en considérant l'exclusion totale des particules alors que la valeur de $U^*(\lambda_{II})$ qui correspond à la vitesse minimale s'appuie sur l'ajustement donné par 4.9.

4.5 Vertex chargé d'une unique particule

4.5.1 Préambule

Dans cette partie, nous traitons le cas particulier du drainage de mousses chargées à une particule par vertex, ainsi λ va de $\lambda \approx 1,3$ à $\lambda \approx 2,7$.

Ces mesures permettent de déduire la résistance d'un vertex chargé, elles sont complétées par des mesures menées sur un unique vertex, réalisées par *Nicolas Louvet* pendant sa thèse [11].

Tous les résultats expérimentaux sont ensuite comparés à des simulations numériques réalisées par *Florence Rouyer*. Simulations et expériences sont alors confrontées à un modèle basé sur la surface spécifique.

Lorsque l'on compte une unique particule par vertex, l'expression donnant le nombre de particules par vertex est fortement simplifiée et nous pouvons écrire une relation bijective entre λ et $\varphi_{p,1}$:

$$\varphi_{p,1} = \frac{6\Phi}{1-\Phi}\left(\frac{d_p}{D_b}\right)^3 = \frac{6\Phi}{1-\Phi}\left(\frac{\lambda}{C(\varphi)}\right)^3 \tag{4.33}$$

Avec $\varphi_{p,1}$ la fraction en particules correspondant à une mousse chargée à une particule par vertex. $C(\Phi)$ est donné par l'équation :

$$C\left(\Phi\right) = \frac{1 + 0,57\left(1-\Phi\right)^{0,27}}{0,27\sqrt{1-\Phi} + 3,17\left(1-\Phi\right)^{2,75}} \tag{4.34}$$

L'équation 4.33 nous permet de tracer le graphique de la figure 4.24.

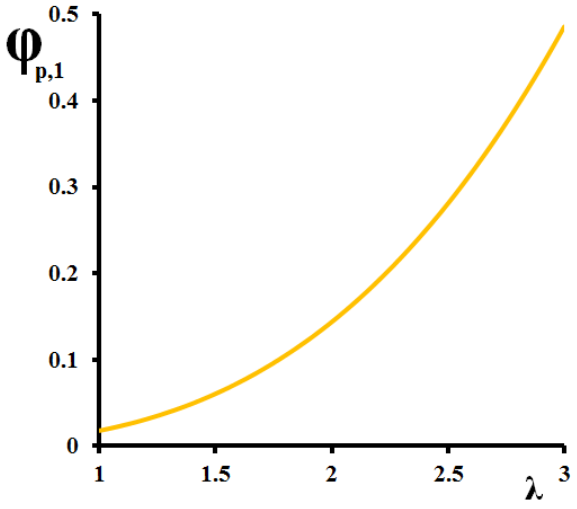


FIGURE 4.24 – $\varphi_{p,1}$ en fonction de λ. Cas d'une mousse chargée à une particule par vertex.

4.5.2 Mesure à l'échelle de la mousse

Nous avons réalisé des expériences de drainage pour des mousses chargées à une particules par vertex.

Dans ce contexte, nous nous sommes confrontés à deux limites pour λ :

— Celle concernant les petites valeurs de λ, qui correspond à $\lambda \approx 1,5$. Nous savons effet qu'en dessous de cette valeur, les particules ne sont plus entièrement piégées par le réseau interstitiel, il devient impossible d'assurer que la mousse est chargée à une particule par vertex.

— La limite haute, $\lambda \approx 2,7$ qui correspond à $\varphi_p \approx 0,35$. C'est la limite imposée par le système expérimental, au-delà de laquelle le mélange mousse/particules n'est plus satisfaisant.

La figure 4.25 est une vue au microscope d'une mousse chargée à une particule par vertex. Nous voyons que si φ_p est choisi correctement (voir graphique 4.24), les particules se logent dans les vertex du réseau.

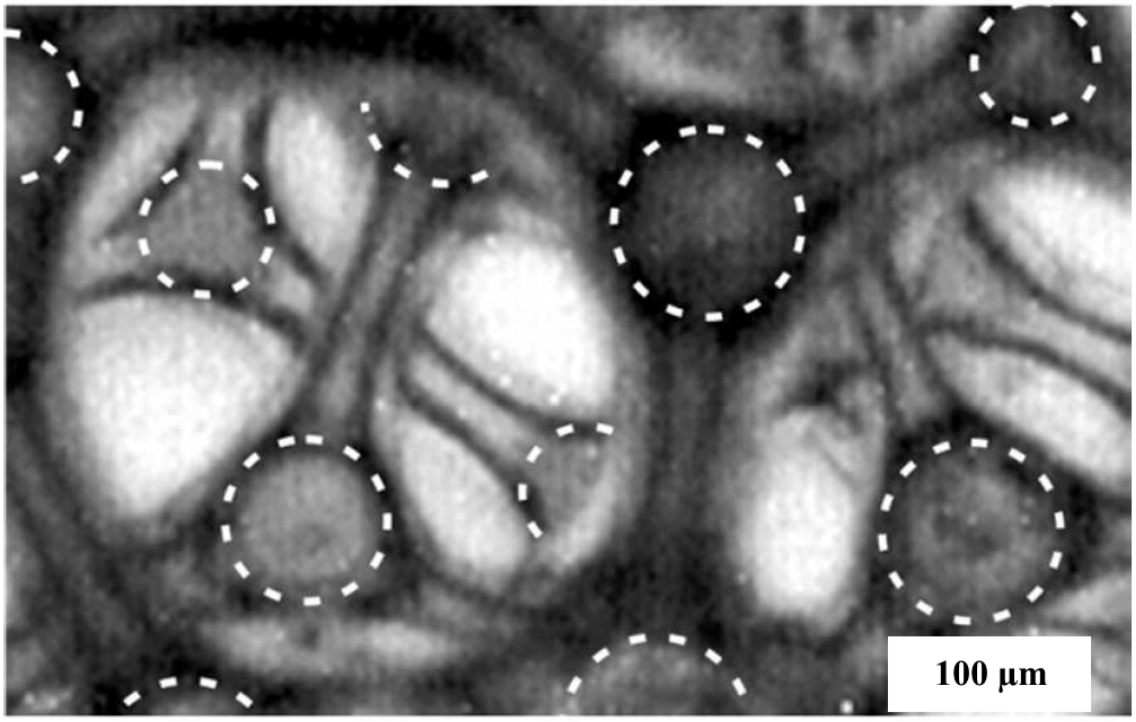


FIGURE 4.25 – Image d'une mousse chargée à une particule par vertex. Les cercles en pointillés blancs entourent les particules.

Résultats

Le graphique (a) de la figure 4.26 montre que la résistance réduite des vertex chargés augmente avec λ. Rappelons que la particule déforme le vertex dès que λ devient supérieur à 2. Cet effet sera discuté ultérieurement.

L'augmentation de R^* avec λ ne peut être directement comparée aux mesures présentées précédemment, en particulier à la diminution observée lors de la capture individuelle, car ici, nous ne travaillons pas à φ_p constant. Rappelons qu'à une particule par vertex, φ_p augmente comme le cube de λ.

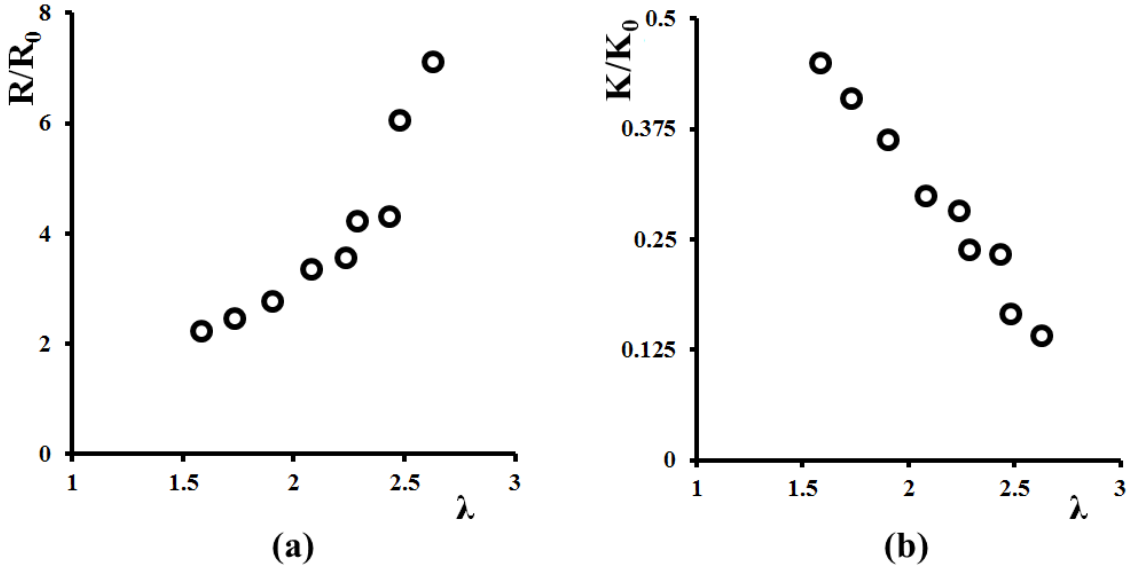


FIGURE 4.26 – (a) Mesure de résistances adimensionnées en fonction de λ. (b) Mêmes mesures, exprimées en $K/K_0 = U/U_0$.

Ces expériences sont complétées par celles menées à l'échelle d'un unique vertex, elles sont décrites en détails dans la thèse de *Nicolas Louvet* [11], et résumées dans l'annexe C.

4.5.3 Modèle de surface spécifique des mousses non chargées

Nous commençons par écrire la perméabilité sous sa forme générale :

$$K = \frac{(1-\Phi)^3}{C_K A_s^2} \tag{4.35}$$

Sa détermination dépend notamment de la surface spécifique de la mousse, sa forme générale est la suivante :

$$A_s = \Phi \frac{S_b}{V_b} \tag{4.36}$$

Ici, la surface est écrite sur une bulle, avec V_b son volume et S_b la surface en contact avec le liquide. La difficulté réside dans la détermination de S_b qui est fortement dépendant de la déformation des bulles.

Cas limite des mousses sèches

Dans un premier temps, un calcul simplifié permet de déterminer la surface spécifique pour une mousse sèche (dominé par les bord de *Plateau*).

On écrit le rayon hydraulique d'un bord de *Plateau* :

$$m = \frac{S_{bP}}{P_{bP}} \tag{4.37}$$

Avec S_{bP} la section du bord de *Plateau* et P_{bP} le périmètre de cette section.
Puis, avec la relation que l'on a entre r et D_b pour les mousses de *Kelvin* :

$$r = \sqrt{3}\frac{D_b}{2}\sqrt{1-\Phi} \tag{4.38}$$

On peut écrire :

$$D_b A_s = \frac{2\pi\sqrt{1-\Phi}}{\sqrt{3}\delta_a} \tag{4.39}$$

Où $D_b A_s$ est la surface spécifique adimensionnée de la mousse. Cette relation est valable pour $\Phi > 0,99$ (voir courbe rouge en pointillés sur le graphique (b) de la figure 4.27).

Surface spécifique étendue aux mousses humides

Pour les mousses humides, la détermination de la surface spécifique a été proposée par *Pitois et al.* [74].

Ainsi, en raisonnant sur une bulle, on peut déterminer la surface mouillée (S_b) en la prenant égale à la surface de la bulle ($S(\Phi)$) à laquelle on retranche celle des films :

$$S_b = S(\Phi) - S_f(\Phi) \tag{4.40}$$

Lorsque la fraction en gaz est telle que les bulles quittent le régime des mousses ($\Phi < 0,68$ pour les simulations proposées par [74]), les bulles ne se touchent plus et par conséquent, la surface des films devient nulle ($S_f = 0$). L'autre limite (théorique) vaut pour $\Phi = 1$, la surface de la bulle déformée correspond exactement à S_f, elle est prise égale à la surface de la cellule de kelvin C, nous avons alors :

$$S_f = S(\Phi = 1) = CS_0 \tag{4.41}$$

Avec :

$$C = \frac{27}{4\pi\left(6\sqrt{2}/\pi\right)^{2/3}} \tag{4.42}$$

Et $S_0 = \pi D_b^2$ la surface d'une bulle sphérique.

L'excès de densité d'énergie interfaciale adimensionné (voir figure 4.27, graphique (a)) a été déterminé numériquement à l'aide de *Surface Evolver* [16, 75, 76], ce qui nous permet d'écrire :

$$\frac{S(\Phi)}{S_0} = 1 + \frac{U}{3\Phi} \tag{4.43}$$

D'autre part, une expression de la fraction de la surface totale de la bulle recouverte de films a été déduite numériquement par *Hilgenfeldt et al.* [38] :

$$\alpha(\Phi) = \frac{S_f}{S(\Phi = 1)} = \left(1 - 1,52\,(1-\Phi)^{1/2}\right)^2 \tag{4.44}$$

Il vient alors :

$$\frac{S_f(\Phi)}{S_0} = C\alpha(\Phi) \tag{4.45}$$

En écrivant la surface spécifique adimensionnée à l'aide de équation 4.40 :

$$D_b A_s = 6\Phi \left[\frac{S(\Phi)}{S_0} - \frac{S_f(\Phi)}{S_0}\right] \tag{4.46}$$

En remplaçant les expressions des surfaces de bulle et de films trouvées numériquement, on obtient une expression de la surface spécifique adimensionnée :

$$D_b A_s = 6\Phi \left[1 + \frac{U(\Phi)}{3\Phi} - C\alpha(\Phi)\right] \tag{4.47}$$

Cette fonction est tracée sur le graphique (b) de la figure 4.27 (courbe bleue).
On détermine en particulier la surface spécifique pour la fraction gazeuse de $\Phi = 0,9$:

$$A_s(\Phi = 0,9) = \frac{3,88}{D_b} \tag{4.48}$$

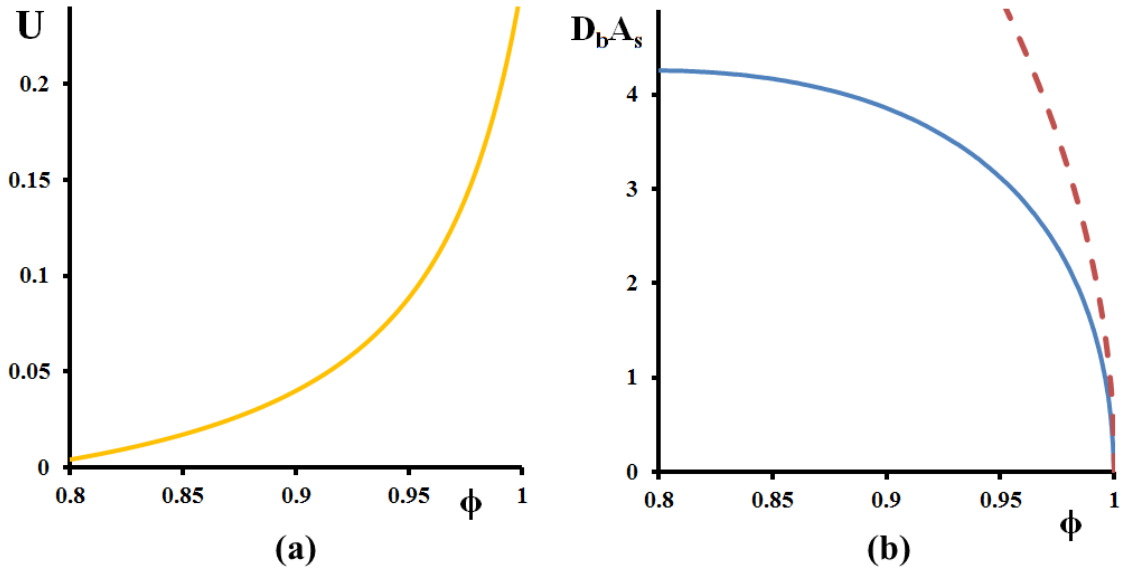


FIGURE 4.27 – (a) Excès de densité d'énergie interfaciale adimensionné en fonction de Φ. (b) Surface spécifique réduite en fonction de Φ. La limite sèche est donnée par la courbe en pointillés rouges, celle englobant les mousses humides est tracée en bleu.

4.5.4 Modèle de surface spécifique des mousses chargées

Dans cette partie, nous appliquons le modèle de *Carman-Kozeny* aux systèmes de mousses chargées à une particule par vertex.
Nous venons de voir que ce modèle est applicable aux mousses liquides, pour traiter le cas des mousses chargées, nous devons tenir compte de certains effets :

— La contribution des particules.
— Les points de contact entre les particules et la paroi du réseau qui participent à la réduction de la surface spécifique.
— La déformation du vertex par la particule.

Contribution des particules

Toujours en raisonnant sur une bulle avec six vertex et un particule par vertex, le rapport de la surface des particules S_p et de la surface de la bulle S_0 est :

$$\frac{S_p}{S_0} = \frac{6d_p^2}{D_b^2} \tag{4.49}$$

Ce qui donne pour la surface spécifique :

$$A_{sp} = \frac{6\Phi}{D_b}\frac{S_p}{S_0} = \frac{6^2\Phi d_p^2}{D_b^3} \tag{4.50}$$

Il faut maintenant tenir compte des contacts entre les particules et la paroi, on en compte quatre par particule. Le facteur de forme F_f déterminé avec *Surface Evolver* considère cet effet. En venant corriger la surface spécifique avec F_f, on obtient l'expression de la surface spécifique des particules dans le vertex déformé :

$$A_{sp}^{def} = A_{sp}\left(1 - F_f(\lambda)\right) \tag{4.51}$$

F_f qui représente la fraction de la surface spécifique de la particule en contact avec la paroi est tracé en fonction de λ sur le graphique (a) de la figure 4.28. On remarquera que F_f est nul pour $\lambda < 2$.

Contribution des vertex

De la même façon, on introduit un nouveau facteur de forme F_n afin de tenir compte de la déformation du vertex par la particule, lui aussi déduit de *Surface Evolver*, il s'écrit de la façon suivante :

$$F_n(\lambda) = \frac{Surface\ deformee}{Surface\ non\ deformee} \tag{4.52}$$

En venant corriger la surface spécifique avec F_n, on obtient l'expression de la surface spécifique du vertex déformé par la particule :

$$A_{sv}^{def} = A_s^0 F_n(\lambda) \tag{4.53}$$

F_n qui représente la réduction de la surface spécifique du vertex est tracé en fonction de λ sur le graphique (b) de la figure 4.28. On remarquera que F_n vaut 1 lorsque $\lambda < 2$.

Perméabilité des mousses chargées

Nous pouvons à présent obtenir une expression de la surface spécifique d'une mousse chargée en fonction de λ :

$$A_s^{def} = A_{sv}^{def} + A_{sp}^{def} \tag{4.54}$$

Le graphique (c) de la figure 4.28 montre un vertex déformé par une particule (en rouge) et non déformé (en bleu). Les facteurs de forme F_f et F_n rendent compte de la présence de la particule.

La détermination de A_s^{def} permet le calcul de la perméabilité :

$$K = \frac{\left(1-\Phi\right)^3\left(1-\varphi_{p,1}\right)^3}{C_K {A_s^{def}}^2} \tag{4.55}$$

Ce qui donne en utilisant les équations 4.33, 4.51, 4.53 :

$$K = \frac{\left(1-\Phi\right)^3\left(1-\varphi_{p,1}\right)^3}{C_K\left[F_n(\lambda)A_s(\Phi) + D_b\left(1-2F_f(\lambda)\right)\left(6^4\Phi\varphi_{p,1}^2\left(1-\Phi\right)^2\right)^{1/3}\right]^2} \tag{4.56}$$

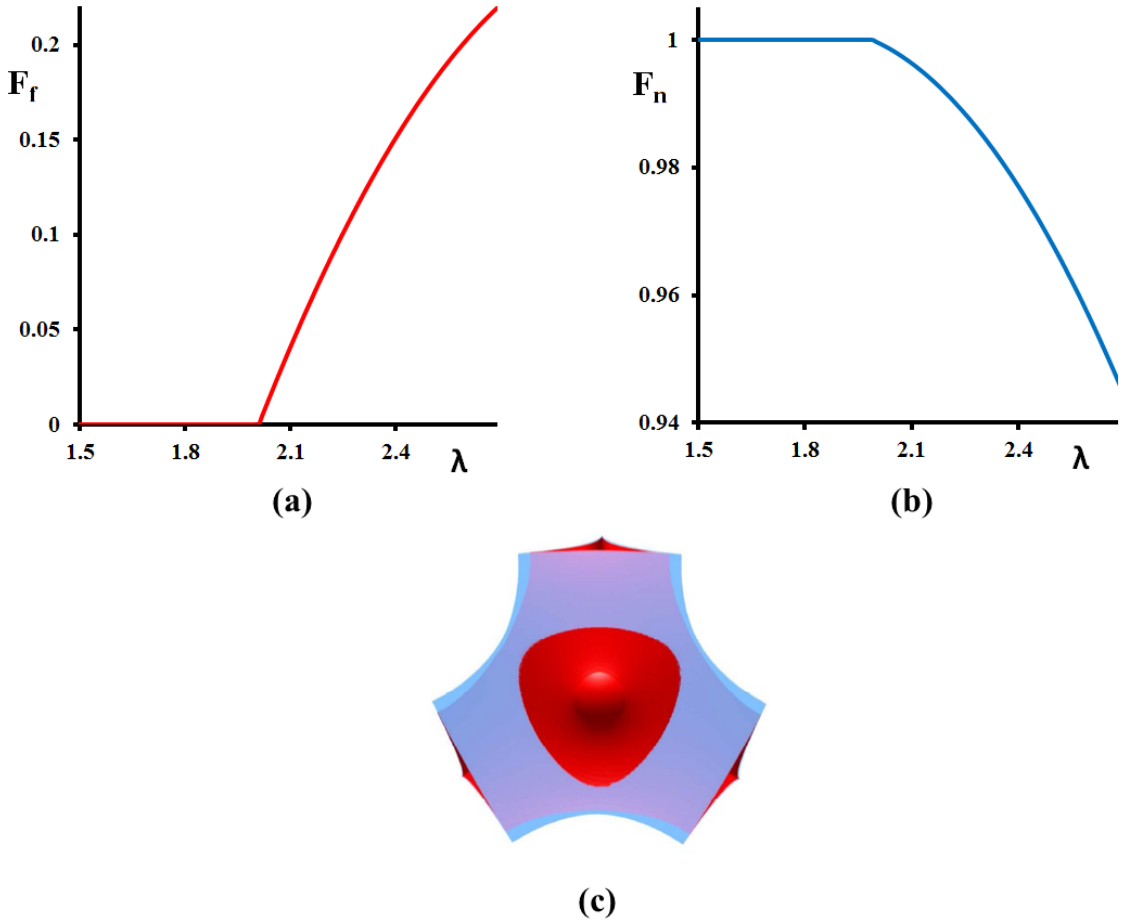


FIGURE 4.28 – Évolutions des facteurs de forme en fonction de λ. (a) F_f pour les particules. (b) F_n pour le vertex. (c) Superposition d'un vertex déformé à $\lambda = 2,7$ (en rouge) et d'un non déformé (en bleu).

4.5.5 Comparaison micro, macro et numérique

Nous comparons à présent les résistances mesurées sur un vertex isolé (Annexe C), celles mesurées à l'échelle de la mousse, les résultats obtenus numériquement (Détaillé dans l'annexe D) et le modèle de *Carman-Kozeny* modifié de la surface spécifique dans le cas d'une mousse chargée.

L'ensemble de ces données est tracé sur le graphique (a) de la figure 4.29. On y remarque que les données expérimentales réalisées à l'échelle micro (en rouge) comme à l'échelle macro (en noir) ont la même tendance. Toutefois, les points correspondant à l'expérience micro ont des résistances moins importantes. On y voit que R^* augmente rapidement avec λ.

Le modèle de *Carman-Kozeny* est tracé en jaune sur cette même figure, il s'écarte des mesures expérimentales aux faibles valeurs de λ et il est systématiquement en dessous de ces données. Ceci est dû au fait que l'on considère les parois du réseau comme rigides (vi-

tesse du liquide nulle à la paroi). Ainsi, en traçant R/R_0, on sous-évalue l'effet de l'apport d'une particule à paroi rigide dans un vertex aux parois mobiles.

Enfin, les simulations numériques sont tracées pour une particule centrée dans le vertex ($\lambda > 2$) où la configuration d'écoulement influe peu sur la valeur de R^*. Ces courbes sont tracées en pointillés bleus pour trois valeurs de Bq : $0,1$, 1 et 10.
Pour $Bq = 10$, qui correspond à une interface rigide, la courbe rejoint celle de *Carman-Kozeny*. Celle de $Bq = 0,1$ correspond au cas mobile. La courbe de $Bq = 1$ est celle qui ajuste le mieux les données expériementales.
Cette dernière configuration fait apparaître une augmentation de la rigidité "effective" des parois par rapport au cas sans particules.

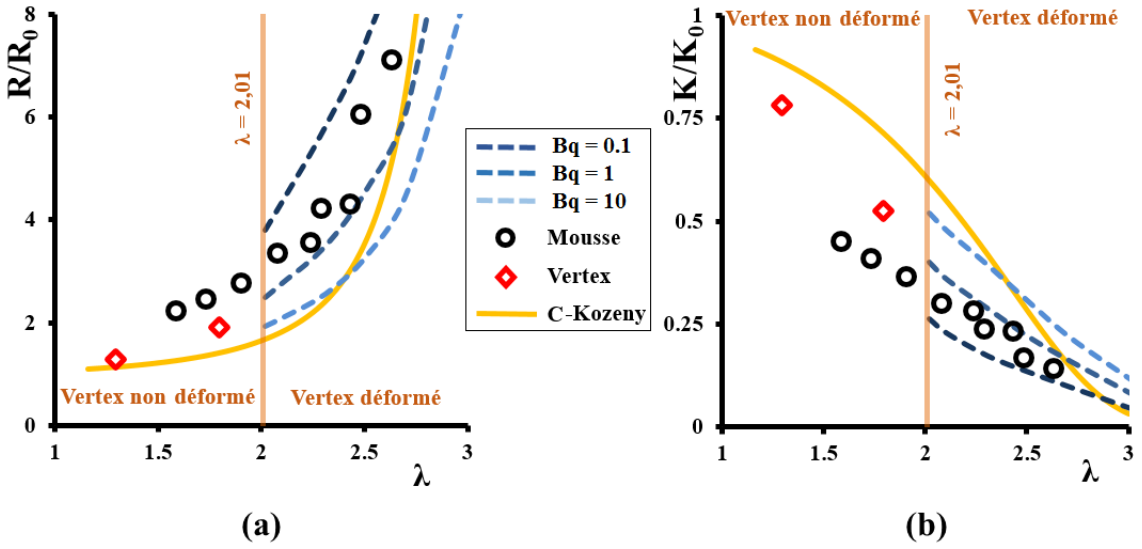


FIGURE 4.29 – (a) Mesures de résistances (micro et macro). Sont également tracés : le modèle déduit de *Carman-Kozeny* et les résultats obtenus numériquement, ajustés sur 3 valeurs du nombre de *Boussinesq*. (b) Mesures, modèle et simulations numériques exprimés en perméabilité adimensionnée.

4.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exploité la partie linéaire de la courbe brute de drainage.

Ces mesures conduisent aux perméabilités réduites et aux résistances réduites.

Les systèmes les plus stables, ceux qui drainent le moins vite, sont obtenus en augmentant la fraction en particules.
D'un autre coté, le rapport d'aspect λ : taille de particules/taille de constrictions interstitielles a une action moins évidente sur la perméabilité (et la résistance hydraulique). Il sépare notamment plusieurs régimes de drainage :

— $\lambda < \lambda_I$: Les particules conduisent à la diminution de la vitesse de drainage par l'augmentation de la viscosité effective de la suspension interstitielle. Le drainage ne se produit plus à partir d'une certaine fraction critique, cette valeur de fraction est dépendante de λ, elle rend compte du confinement des particules dans le réseau de la mousse.

— $\lambda_I < \lambda < \lambda_{II}$: Les particules sont capturées individuellement par le réseau de la mousse, cette transition de capture conduit à un minimum pour la vitesse de drainage. Dans ces conditions, les particules ne déforment pas l'interface.

— $\lambda > \lambda_{II}$: Les particules sont de plus en plus grosses, de moins en moins nombreuses et déforment d'avantage le réseau. Ces effets s'accompagnent d'une augmentation de la vitesse de drainage. Aux plus grandes valeurs de λ, la vitesse rejoint un plateau correspondant à l'exclusion des particules du réseau de la mousse.

Enfin, lorsque l'on se place à une particule par vertex, R^* augmente de façon monotone avec λ. Cet effet a été constaté pour la gamme : $1,3 < \lambda < 2,7$.

Conclusion générale

Pour ce travail, nous avons étudié la stabilité des mousses de suspension, nous avons prêté une grande attention au choix des systèmes. Un long développement expérimental nous a permis les productions séparées des mousses et des suspensions, le contrôle des paramètres qui les caractérisent était un préalable à notre étude. D'autre part, nous avons mis au point deux types de mesures pour la caractérisation des échantillons :

— La mesure de la quantité de suspension/particules retenues dans le réseau de la mousse lors du drainage.

— La mesure des vitesses de drainage pour des systèmes rejoignant l'équilibre.

Les mesures de rétention, réalisées une fois l'équilibre atteint, concernent la capture des particules par le réseau lors du processus de drainage. Ce processus est composé de deux régimes, un premier pendant lequel le réseau n'est pas modifié par l'écoulement de la suspension et un second, plus lent, qui conduit à la diminution de la taille des pores du réseau. Ces mesures montrent qu'un choix judicieux du rapport d'aspect taille de particules/taille de constrictions permet d'obtenir des systèmes bulles/liquide/particules bloqués pour de relativement faibles valeurs de fraction volumique granulaire. L'empilement des particules dans le réseau des mousses est comparé à des modèles de compacité, les configurations conduisant aux échantillons les plus stables sont alors mis en évidence. La modélisation de la rétention est finalement proposée.

Les mesures des vitesses de drainage, alors que le système rejoint l'équilibre, s'effectuent lors du premier régime. Cela nous permet d'étudier l'écoulement dans le réseau en imposant ses caractéristiques à l'aide des conditions initiales. Nous distinguons trois cas :

— Lorsque les particules ne sont pas capturées, elles participent la réduction de la vitesse de drainage par augmentation de la viscosité effective, cette viscosité dépend de la concentration en particule. Nous observons par ailleurs que de fortes concentrations conduisent à la capture collective des particules. Ces effets de renforcement de viscosité et de *jamming* ont été modélisés.

— Quand la taille des particules augmente, on s'achemine vers une transition de capture individuelle. Les particules deviennent assez grosses pour être piégées dans les constrictions de la mousse, ce qui a pour effet de réduire fortement la dynamique de drainage. Pour ce régime on observe un minimum de vitesse. La modélisation

de cette transition est proposée, elle est basée sur la rétention des particules.

— Le dernier régime de drainage concerne des particules si grosses qu'elles déforment le réseau. A mesure que leur taille augmente, elles en sont exclues. Ce phénomène d'exclusion s'accompagne d'une augmentation de la vitesse. Ce dernier régime est décrit à l'aide d'un modèle semi-empirique.

Le couplage du mûrissement qui accompagne le drainage, ainsi que les réarrangements de structure qui surviennent dans les mousses, mériteraient une étude complémentaire à celle menée ici. En particulier, il serait intéressant de comprendre dans quelles conditions les effets de la présence des particules limitent le plus le mûrissement et les réarrangements.

Annexes

Annexe A : Production de bulles de petit diamètre

Système de poreux pour la production de bulles

Pour la production de bulles de diamètre inférieur à 100 μm nous pouvons utiliser un système de poreux monté en série.

Pour ce dispositif, une première mousse (qui peut être polydisperse mais dont les diamètres de bulles sont supérieurs à 100 μm) est poussée à $\approx 25\ ml/min$ vers un succession de deux poreux. Chacun de ces poreux est fait de billes de 300 μm empilées sur une hauteur de 7 mm (voir le schéma de la figure 4.30).

Après passage dans le poreux, les grosses bulles qui sont cisaillées en engendrent des plus petites dont le diamètre moyen vaut $\approx 80\ \mu m$ (voir la distribution de la figure 4.31).

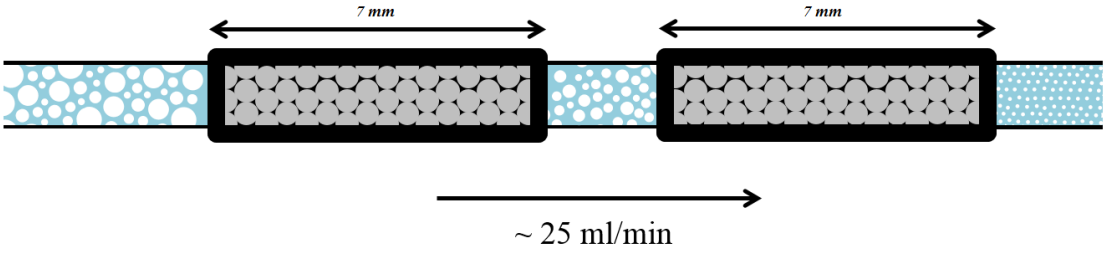


FIGURE 4.30 – Schéma de poreux en série. Une première mousse "grossière" est injectée, elle est raffinée après passage successif dans les deux poreux.

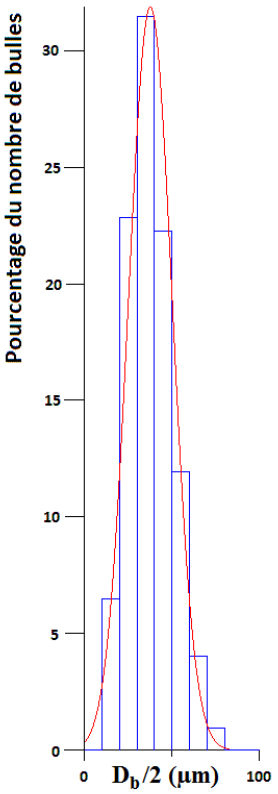


FIGURE 4.31 – Distribution en nombre des bulles obtenues avec le système suivant : deux poreux de 7 mm de longueur faits de billes de 300 μm. Gaussienne en rouge dont la moyenne vaut : $37,6$ μm et l'écart type : $12,5$ μm.

L'étalement de cette distribution a été jugé trop grand pour nos expériences et la méthode a finalement été abandonnée.
Notons que la multiplication du nombre de poreux semble rendre la distribution plus piquée. A titre d'exemple, deux poreux en série de 7 mm de longueur donne un échantillon moins polydisperse qu'un unique poreux de 14 mm de long.

Annexe B : Erreur de mesure

Erreur sur la mesure de la vitesse de drainage

Les expériences de mesures de vitesse de drainage (près de 400) permettent de caractériser la reproductibilité du système. En particulier, les écarts entre les différentes mesures de vitesse de drainage pour des mousses réalisées dans les mêmes conditions rendent compte de l'incertitude expérimentale. Ces mousses ont été réalisées en contrôlant notamment la taille des bulles, la formulation de la solution moussante, la fraction volumique interstitielle ou la fraction de particules contenues dans la mousse.
Il en sort les fluctuations suivantes :

— $\Delta U_\alpha = \pm 4\%$ comme fluctuation sur les vitesses de drainage pour des mousses contenant **plus** de 7% de fraction interstitielle **et moins** de 45% de fraction de particules solides de la phase interstitielle.
— $\Delta U_\beta = \pm 12\%$ comme fluctuation sur les vitesses de drainage pour des mousses contenant **moins** de 7% de fraction interstitielle **ou plus** de 45% de fraction de particules solides de la phase interstitielle.

En effet, des mousses trop sèches ou trop chargées en particules drainent très peu et rendent difficile le repérage de l'interface bulles/liquide.

Les résultats de vitesses des mousses chargées en particules sont systématiquement adimensionnés par la mousse non chargée correspondante, ainsi : $U^* = U/U_0$, l'incertitude sur ces vitesses adimensionnées est calculée à l'aide de la formule suivante :

$$\Delta f(x_1, x_2, ..., x_n) = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} \left(\frac{\delta f}{\delta x_i}\right)^2 (\Delta x_i)^2} \tag{4.57}$$

Ce qui donne :
— $\Delta U^*_\alpha = \pm 6\%$ pour les mousses contenant **plus** de 7% de fraction interstitielle **et moins** de 45% de fraction de particules solides de la phase interstitielle.
— $\Delta U^*_\beta = \pm 13\%$ pour les mousses contenant **moins** de 7% de fraction interstitielle **ou plus** de 45% de fraction de particules solides de la phase interstitielle.

Erreur sur la fraction en particules visée

Les mesures par pesée des particules contenues dans les échantillons produits ont permis l'estimation de l'erreur entre la masse visée et la masse obtenue. On estime cette erreur à $\Delta\varphi_p^\alpha \pm 2\%$ pour les mousses dont la fraction de particules solides de la phase interstitielle est **inférieure** à 45%, alors que l'erreur est estimée à $\Delta\varphi_p^\beta \pm 4\%$ pour les mousses **plus** chargées.

Erreur sur λ

λ est défini de la manière suivante :

$$\lambda = \frac{1 + 0,57\,(1-\Phi)^{0,27}}{0,27\,(1-\Phi)^{0,5} + 3,17\,(1-\Phi)^{2,75}} \frac{d_p}{D_b} \tag{4.58}$$

Avec Φ la fraction volumique gazeuse, d_p le diamètre des particules et D_b le diamètre des bulles.
D'autre part, en développant l'expression suivante autour de la fraction gazeuse la plus commune à nos expériences $(1-\Phi) = 0,1$, on trouve :

$$\frac{1 + 0,57(1-\Phi)^{0,27}}{0,27(1-\Phi)^{0,5} + 3,17(1-\Phi)^{2,75}} \approx \frac{d_p \times (30 - 100(1-\Phi))}{D_b} \tag{4.59}$$

Les mesures régulières des fractions liquides et des tailles de bulles permettent de déduire $\Delta(1-\Phi) = 0,03$ et $\Delta D_b = 15\ \mu m$.
D'autre part $\Delta d_p = 2\ \mu m$ est pris comme erreur pour la taille des particules. En utilisant l'équation 4.57, on trouve comme erreur pour λ :

$$\Delta\lambda = \sqrt{\left(\frac{D_b - 30d_p + 100\,(1-\Phi)}{D_b}\right)^2 (\Delta D_b)^2 + \left(\frac{30}{D_b}\right)^2 (\Delta d_p)^2 + \left(\frac{100}{D_b}\right)^2 (\Delta\,(1-\Phi))^2} \tag{4.60}$$

Annexe C : Mesures de la résistance hydraulique à l'échelle d'un vertex

La première étape consiste à fabriquer un bord de *Plateau* par retrait d'une structure métallique d'un bain de solution moussante [11]. La géométrie de cette structure est choisi pour reproduire un bord de *Plateau* vertical d'environ 5 mm. Le bord de *Plateau* ainsi créé est alimenté en solution moussante, à un débit contrôlé. La rencontre de ce bord de *Plateau* et d'une bulle permet la production d'un vertex (voir figure 4.32 (a)).

Ce dispositif a permis la mesure indirecte de la résistance d'un vertex. Un débit Q de solution moussante coulant à travers le système est imposé et la perte de charge Δp qui lui est associé est mesurée.
Dans cette approche, les résistances du bords de *Plateau* le plus en altitude (Δp_1), du vertex (Δp_v) et celle des trois bords de *Plateau* en bas du système (Δp_2) sont associées en série :

$$\Delta p = \Delta p_1 + \Delta p_v + \Delta p_2 \tag{4.61}$$

Δp_1 et Δp_2 sont déterminées par la mesure sur un bord de *Plateau* isolé. Dans ces conditions, la valeur de Δp_v est déduite de la mesure de Δp. Nous rappelons que la résistance adimensionnée d'un vertex est donnée par :

$$\tilde{R_v} = \frac{r^3}{\eta}\frac{\Delta p_v}{Q} \tag{4.62}$$

Pour cette expérience, une solution de TTAB est utilisée pour laquelle est mesurée une masse volumique $\rho \approx 1000\ kg/m^3$, une tension superficielle $\gamma \approx 38\ mN/m$ et une viscosité $\eta \approx 1\ mPa.s$. Le rayon de courbure du bord de *Plateau* est tel que : $r \approx 1,2\ mm$. Des billes de verre de diamètres 480 μm et 650 μm ont été utilisées, Δp_v est alors mesurée pour $\lambda = 1,3$ et $\lambda = 1,8$.

Ces mesures sont présentées sur la graphique (b) de la figure 4.32. Ces valeurs déduites d'expériences à l'échelle d'un unique vertex sont cohérentes avec celle données par le modèle de l'équation 4.13 :

λ	φ_p	R^*_{micro}	R^*_{modele}	Écart au modèle
1,3	0,04	1,3	1,5	13%
1,8	0,10	1,9	2,3	17%

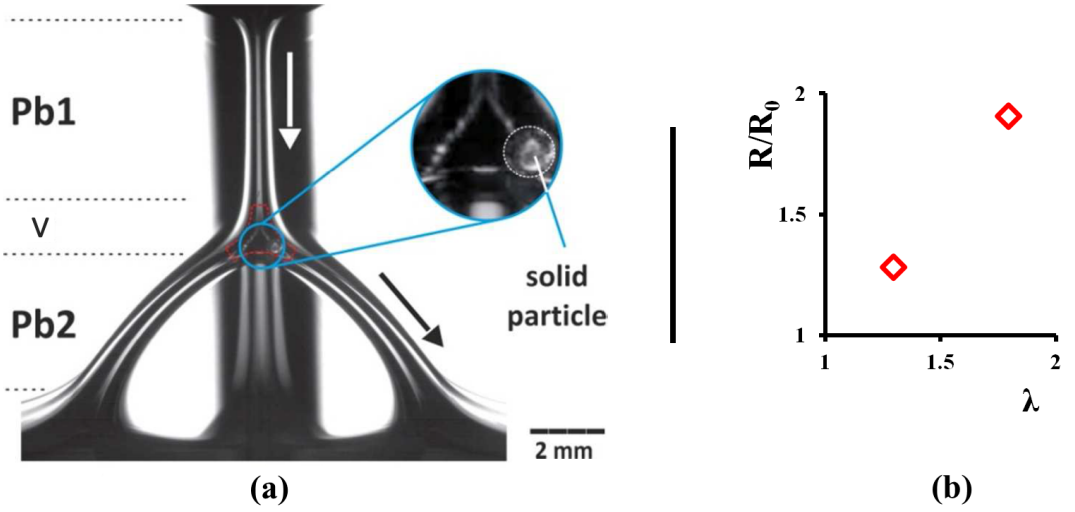


FIGURE 4.32 – (a) Expérience micro : un vertex et quatre bords de *Plateau*. (b) Mesures des résistances hydrauliques adimensionnées en fonction de λ.

Annexe D : Simulations numériques de la résistance hydraulique des vertex

Démarche suivie

Cette section concerne la détermination de la résistance de vertex chargés par simulations numériques.

Pour cela, le logiciel *Surface evolver* a été utilisé [76]. Il est basé sur la minimisation de l'énergie de surface. Ce logiciel permet d'imposer les géométries d'objets isolés et de leur associer des tensions de surface, ils sont ensuite assemblés pour former un nouveau motif dont la forme va dépendre des paramètres décidés plus tôt (forme et γ).
Le vertex est alors généré par la rencontre de quatre sphères molles ayant la même tension de surface. La particule solide est simulée par une sphère de tension de surface trente fois supérieure à celle du vertex, elle apparaît alors comme indéformable (voir 4.33).

Le rayon de courbure r du bord de *Plateau* est mesuré sur le vertex non déformé, le diamètre de la particule d_p est quant à lui imposé. Dans ces conditions, la déduction de λ vient comme :

$$\lambda = \frac{2}{\sqrt{3}-1}\frac{d_p}{r} \tag{4.63}$$

Pour ces simulations, λ varie de $1,2$ à $2,7$. La transition entre vertex déformé et vertex non déformé survient autour de $\lambda = 2$.

Ces différents motifs sont importés dans *Comsol Multiphysics*, un logiciel qui permet la simulation d'écoulement dans des géométries données.
Le système suivant est alors considéré : un vertex ayant une taille caractéristique de 100 μm, la vitesse du liquide est de 10^{-3} m/s, la masse volumique du liquide est de $\rho = 1000$ kg/m^3 et sa viscosité de $\eta = 10^{-3}$ $pa.s$.
Le nombre de *Reynolds* est tel que $R_e = 10^{-1}$, l'écoulement est alors traité par l'équation de *Stokes* et le débit Q associé à la géométrie est obtenu en fonction de la perte de charge Δp imposée (voir figure 4.34). La résistance du vertex chargé s'écrit alors :

$$R_v = \frac{\Delta p}{Q} \tag{4.64}$$

La résistance adimensionnée est ensuite déduite à l'aide de l'équation 4.62.

Un autre paramètre est à considérer, les interfaces de la mousses n'étant pas rigides, il faut tenir compte du glissement à la paroi. La viscosité de cisaillement de surface μ_s intègre cet effet [13].
μ_s permet le calcul de la mobilité : $M = \eta r/\mu_s$. Selon la valeur de M, l'interface présente plus ou moins de résistance à l'écoulement. Le nombre de *Boussinesq* est défini comme

l'inverse de la mobilité, il sera un paramètre essentiel lors des simulations, il s'écrit :

$$Bq = \frac{1}{M} \tag{4.65}$$

Dans le cas des vertex non déformés, la particule peut prendre différentes positions dans la géométrie et plusieurs configurations sont à considérer :

— La $3-1$: l'écoulement se fait depuis trois entrées du vertex vers une seule sortie partiellement encombrée par la particule.
— La $1-3$: l'écoulement se fait depuis une entrée du vertex vers trois sorties dont une est encombrée par la particule.
— La $2-2$: configuration avec deux bords de *Plateau* d'entrée et deux bords de *Plateau* de sortie. La particule encombre l'une des sorties.

Pour le cas des vertex non chargés, on considère les mêmes configurations d'écoulement, sans la particule.

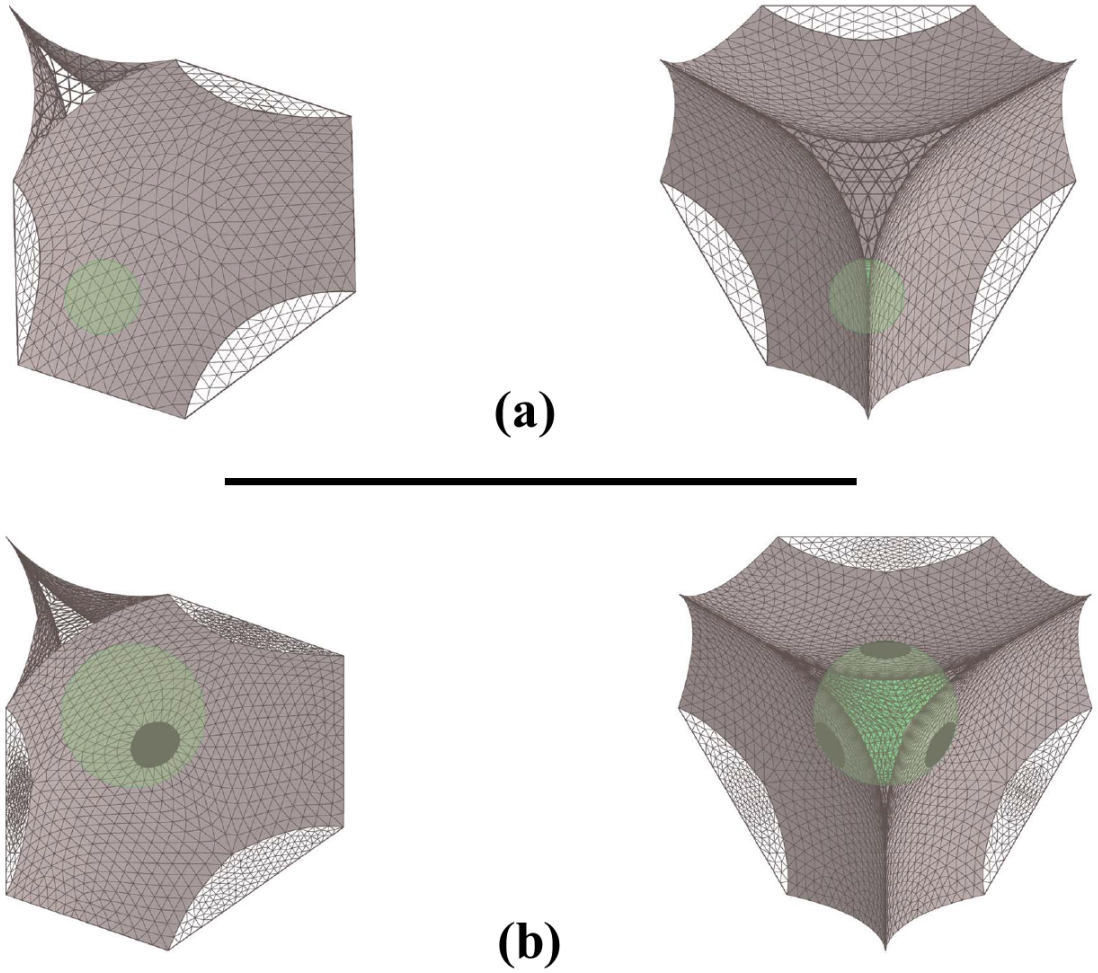


FIGURE 4.33 – Vues de vertex chargé d'une particule. Simulation faites avec *Surface Evolver*. (a) $\lambda = 1,20$. (b) $\lambda = 2,30$ (vertex déformé).

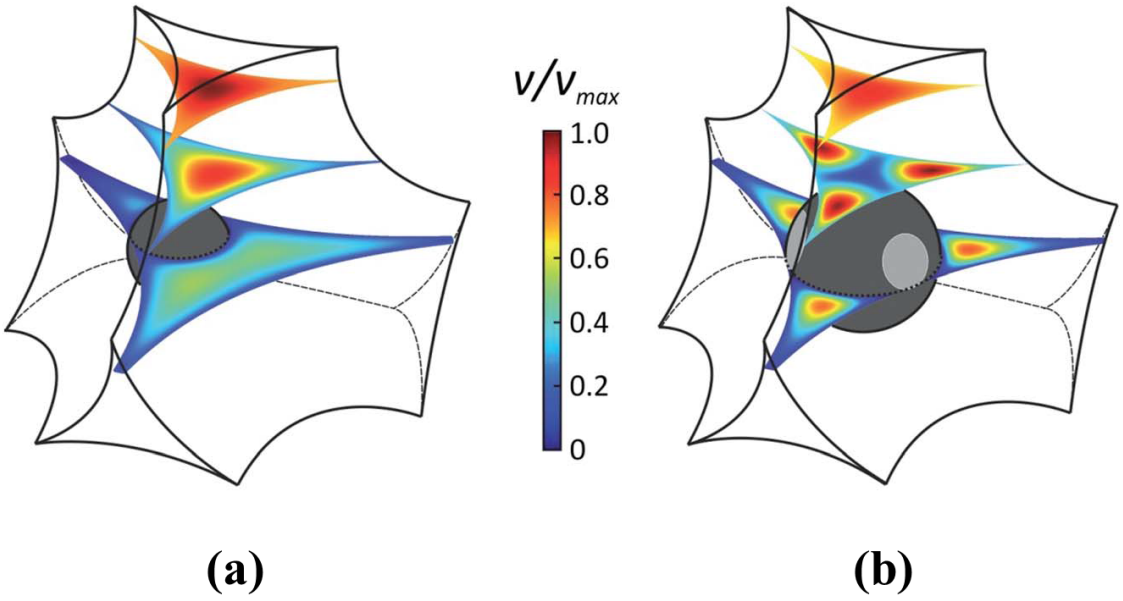


FIGURE 4.34 – Écoulements à travers un vertex chargé à une particule. Simulations faites avec *Comsol Multiphysics*. $\mu_s = 10^{-5}\ kg.s^{-1}$ - $Bq = 20$ (a) $\lambda = 1,57$ - $v_{max} = 0,875\ mm/s$. (b) $\lambda = 2,30$ - $v_{max} = 0,308\ mm/s$.

Résultats

Dans un premier temps, nous considérons le cas d'un vertex vide et d'un vertex chargé d'une particule centrée. Les résultats des simulations de $\tilde{R}$ pour ces deux vertex sont présentés sur la figure 4.35. $\tilde{R}$ y est tracé en fonction de Bq dans la configuration $1-3$ à $\lambda = 2,01$.

Nous remarquons que la résistance adimensionnée $\tilde{R}$ augmente avec Bq, rendant les interfaces de moins en moins mobiles et ainsi, de plus en plus résistantes à l'écoulement. Deux plateaux sont également à noter, un aux faibles valeurs de Bq, correspondant à la limite parfaitement mobile et un autre aux grandes valeurs de Bq pour la limite des interfaces parfaitement rigides (vitesse nulle à la paroi).

Ce comportement est observé pour les deux autres configurations : $3-1$ et $2-2$.

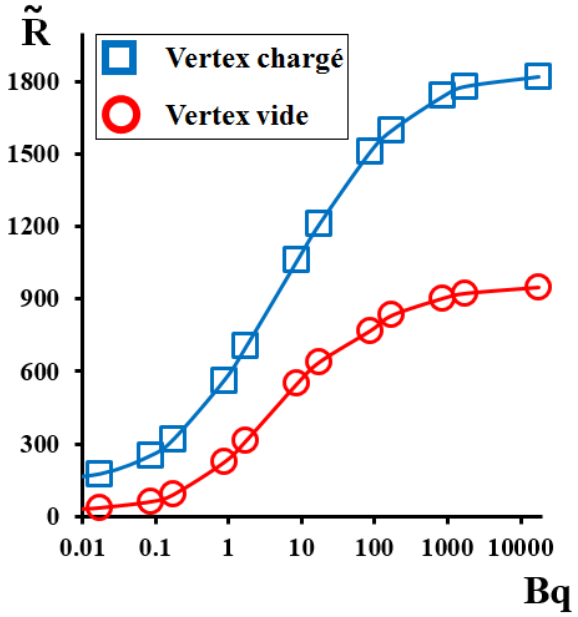


FIGURE 4.35 – $\tilde{R}$ en fonction du nombre de *Boussinesq* pour un vertex non chargé et un vertex chargé à une particule avec $\lambda = 2,01$.

Les résultats concernant les vertex chargés et déformés par la particule ($\lambda > 2$) sont tracés sur le graphique de la figure 4.36 dans la configuration $1-3$. On voit que la résistance réduite R^* diminue avec λ et Bq. On a observé précédemment, que pour un vertex isolé $\tilde{R}$ augmentait avec Bq pour $\lambda = 2,01$. A présent, nous remarquons que R^* diminue avec Bq car l'augmentation relative de la résistance adimensionnée due à la rigidification de l'interface est plus forte pour le vertex vide que pour le vertex chargé.

La configuration d'écoulement dans le cas d'une particule centrée dans le vertex a très peu d'influence, les mesures de $3-1$ et $2-2$ sont très proches de celles de $1-3$.

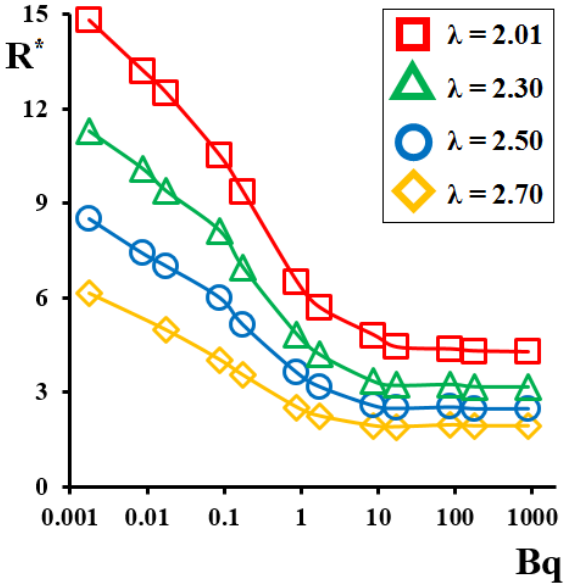


FIGURE 4.36 – Résistances adimensionnées en fonction du nombre de *Boussinesq* pour différentes valeurs de λ. Particule centrée, qui déforme le vertex ($\lambda > 2$).

Les résistances réduites des vertex chargés pour des particules non centrées dans le vertex ($\lambda < 2$) sont présentées sur la figure 4.37.
Comme pour le cas des particules bloquées, R^* diminue avec λ et Bq. Cependant, ici la configuration d'écoulement joue un rôle très important. On remarque notamment que la résistance est beaucoup plus grande dans le cas donné par $3-1$ que dans celui donné par $1-3$ (le cas $2-2$ est très proche de $1-3$).

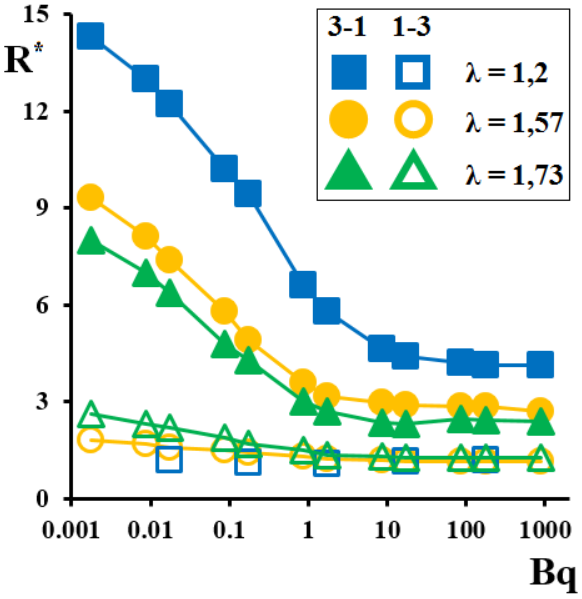


FIGURE 4.37 – Résistances adimensionnées en fonction du nombre de *Boussinesq* pour différentes valeurs de λ. La particule ne déforme pas le vertex, les deux configurations $3-1$ et $1-3$ sont données.

Les simulations nous indiquent que les configurations d'écoulement influent peu sur R^* pour un vertex non chargé.
Pour les vertex chargés, elle a également peu d'influence lorsque $\lambda > 2$.
Pour $\lambda < 2$, deux cas se distinguent : celui de $1-3$ (identique à $2-2$) et celui de $3-1$ qui est beaucoup plus résistant que le premier. Considérant que les vertex de la mousse sont associés en parallèle, cette dernière configuration ne sera pas discutée dans notre étude, les chemins qui résistent le plus pouvant être contournés par le liquide.

Table des figures

1.1 Mousses en paroi 14
1.2 Force nécessaire à l'augmentation d'interface entre deux fluides 15
1.3 Schéma vertex et bord de *Plateau* 16
1.4 Stucture cc et cfc 17
1.5 Cellule de *Kelvin* 17
1.6 Cellule de *Kelvin* et réseau liquide 20
1.7 Tétraèdre formé de quatre billes 21
1.8 Pression osmotique 23
1.9 Profil liquide et drainage 25
1.10 Données de perméabilité de mousses aqueuses 26
1.11 Écoulement pore cylindrique 27
1.12 Champ de vitesse bord de *Plateau* 29
1.13 Évolution temporelle du front de liquide drainé 32
1.14 Mûrissement de mousse $2D$ 33
1.15 Événement de type T1 34
1.16 Événement de type T2 34
1.17 Coalescence de deux bulles 35
1.18 Graphiques de drainage extraits de [8] 37
1.19 Stabilisation des films 39
1.20 Taille de constriction 40
1.21 Diagramme *jamming* 41
1.22 *Jamming* de kayaks 42
1.23 Particules en rotation 44
1.24 Quelques modèles de viscosité effective 44
1.25 Viscosité effective et confinement 45
1.26 Coupes de particules dans des bords de *Plateau* 46

2.1 Méthodes de production de bulles 50
2.2 Stockage de la mousse 51
2.3 Méthode de mesure du diamètre des bulles 52
2.4 Pavage de mousse en paroi 52
2.5 Méthodes de mélange mousse/suspension 54
2.6 Mélange fluo I 54
2.7 Mélange fluo II 55
2.8 Mélange fluo III 55
2.9 Mélange fluo IV 56

2.10 Remplissage de la cellule de mesure . . . 56
2.11 Méthode d'assèchement I . . . 57
2.12 Méthode d'assèchement II . . . 57
2.13 Mesure des vitesses de drainage . . . 59
2.14 Perméabilités réduites des mousses non chargées, effet de la température . 60
2.15 Particules retenues en fonction de Z (méthode de mesure) . . . 61
2.16 Schéma du montage . . . 63

3.1 Mousse chargée à l'équilibre I . . . 67
3.2 Mousse chargée à l'équilibre II . . . 68
3.3 Particules retenues en fonction de Z . . . 69
3.4 Rétention de particules en fonction de Φ, d_p et D_b à $\varphi_p = 0,16$. . . . 70
3.5 Rétention en fonction de λ . . . 70
3.6 Front de drainage : les deux régimes . . . 72
3.7 R_τ et ξ_τ . . . 73
3.8 Vertex idéal . . . 74
3.9 Mousse chargée à l'équilibre III . . . 75
3.10 Mousse chargée à l'équilibre IV . . . 75
3.11 Compacité mélange bidisperse I . . . 78
3.12 Compacité mélange bidisperse II . . . 79
3.13 φ^*_{vertex} en fonction de λ . . . 80
3.14 Schéma de vertex . . . 81
3.15 Bord de *Plateau* idéal . . . 82
3.16 Empilements ordonnés dans un bord de *Plateau* idéal . . . 83
3.17 Mousse chargée à l'équilibre V . . . 83
3.18 φ^* dans un bord de *Plateau* idéal en fonction de λ . . . 84
3.19 Réseau et collier de billes . . . 85
3.20 Mousse chargée à l'équilibre VI . . . 86
3.21 Zones de rétention dans la mousse . . . 87
3.22 Constrictions dans le cœur et à la périphérie de la mousse . . . 88
3.23 Diamètre de constrictions dans le cœur et en périphérie de la mousse . . . 89
3.24 Schéma du "rinçage" . . . 91
3.25 Rétention en fonction de λ . . . 92
3.26 H_d pour une mousse chargée et une mousse non chargée . . . 94
3.27 Γ en fonction de φ_p . . . 95
3.28 Diagramme de drainage ($0 < \lambda < 2$) . . . 96

4.1 Courbes de drainage recalées . . . 100
4.2 Courbes de drainage en fonction de φ_p . . . 103
4.3 Temps caractéristique et hauteur d'équilibre . . . 104
4.4 Vitesses de drainage, particules non capturées . . . 105
4.5 Volume d'un vertex en nombre de particules . . . 106
4.6 Viscosité effective, fraction de divergence . . . 107
4.7 Fraction de divergence en fonction de λ . . . 108
4.8 φ^*_{vertex} en fonction de λ (mesures et modèle) . . . 109
4.9 φ^* dans un bord de *Plateau* idéal, mousse humide . . . 110

4.10 Vitesse de drainage pour quelques φ_p, capture 111
4.11 Vitesses de drainage autour de la capture 113
4.12 U^* et R^* en fonction de φ_p à $\lambda = \lambda_{II}$ 114
4.13 $\bar{U}$ en fonction de $\bar{\lambda}$ 115
4.14 Mesures et modèle semi-empirique de capture à tous les φ_p 116
4.15 Schémas vertex et particules 117
4.16 Ajustement des $\tilde{K}_v$ 119
4.17 Vitesses de drainage réduites et modèle de capture 120
4.18 Comparaison des modèles de capture 121
4.19 Mesures des vitesses de drainage, grandes valeurs de λ 122
4.20 R^* en fonction de φ_p, grandes valeurs de λ 123
4.21 Dépendance de Φ sur la vitesse de drainage 124
4.22 $\bar{R}$ en fonction de λ 125
4.23 Mesures et modèle des vitesses de drainage, grandes valeurs de λ 126
4.24 $\varphi_{p,1}$ en fonction de λ 127
4.25 Photo d'une mousse chargée à une particule par vertex 128
4.26 Résistances adimensionnées, une particule par vertex 129
4.27 Excès de densité d'énergie interfaciale adimensionné en fonction de Φ . . . 132
4.28 Facteurs de forme en fonction de λ 134
4.29 Mesures de résistances, modèle et simulations numériques 135
4.30 Production de bulles avec des poreux (schéma) 139
4.31 Production de bulles avec des poreux (distribution en D_b) 140
4.32 Résistance d'un vertex chargé, expérience micro 144
4.33 Simulations numériques, vertex chargés 146
4.34 Simulations numériques, écoulement dans un vertex chargé 147
4.35 $\tilde{R}$ en fonction du nombre de *Boussinesq* 148
4.36 Résistances adimensionnées en fonction du nombre de *Boussinesq* I 149
4.37 Résistances adimensionnées en fonction du nombre de *Boussinesq* II 150

Bibliographie

[1] J. Plateau. *Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires, vol. 2 Gauthier-Villars*. 1873 (cit. on pp. 9, 16).

[2] D. Weaire and S. Hutzler. *The physics of foams*. Clarendon Press, 1999 (cit. on pp. 9, 16, 18).

[3] C. Dame, C. Fritz, O. Pitois, and S. Faure. "Relations between physicochemical properties and instability of decontamination foams". *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 263.1 (2005), pp. 210–218 (cit. on p. 10).

[4] A. J. Wilson. *Foams: physics, chemistry and structure*. Springer-Verlag London, 1989 (cit. on p. 10).

[5] A. R. Studart, U. T. Gonzenbach, E. Tervoort, and L. J. Gauckler. "Processing routes to macroporous ceramics: a review". *Journal of the American Ceramic Society* 89.6 (2006), pp. 1771–1789 (cit. on p. 10).

[6] A. Nguyen and H. J. Schulze. *Colloidal science of flotation*. Vol. 118. CRC Press, 2003 (cit. on p. 10).

[7] R. K. Dhir, M. D. Newlands, and A. McCarthy. *Use of foamed concrete in construction*. Thomas Telford Limited, 2009 (cit. on p. 10).

[8] A Britan, M Liverts, G Ben-Dor, S. Koehler, and N Bennani. "The effect of fine particles on the drainage and coarsening of foam". *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 344.1 (2009), pp. 15–23 (cit. on pp. 10, 36, 37).

[9] I Lesov, S Tcholakova, and N Denkov. "Factors controlling the formation and stability of foams used as precursors of porous materials". *Journal of colloid and interface science* 426 (2014), pp. 9–21 (cit. on pp. 10, 36).

[10] N. Louvet, R Höhler, and O. Pitois. "Capture of particles in soft porous media". *Physical Review E* 82.4 (2010), p. 041405 (cit. on pp. 10, 39).

[11] N. Louvet. "Etude multi-echelles du transport de particules dans les mousses liquides". *Mémoire de thèse. Université Paris-Est* (2009) (cit. on pp. 10, 127, 129, 143).

[12] A. J. Liu and S. R. Nagel. "Nonlinear dynamics: Jamming is not just cool any more". *Nature* (1998). ISSN: 396 6706 21-22 (cit. on pp. 10, 41).

[13] R. A. Leonard and R. Lemlich. "A study of interstitial liquid flow in foam. Part I. Theoretical model and application to foam fractionation". *AIChE journal* 11.1 (1965), pp. 18–25 (cit. on pp. 14, 29, 145).

[14] F. J. Almgren and J. E. Taylor. “The geometry of soap films and soap bubbles”. *Scientific American* 235 (1976), pp. 82–93 (cit. on p. 16).

[15] J. E. Taylor. “Soap bubbles and crystals”. *Resonance* 11.6 (2006), pp. 26–30 (cit. on p. 16).

[16] R. Höhler, Y. Yip Cheung Sang, E. Lorenceau, and S. Cohen-Addad. “Osmotic pressure and structures of monodisperse ordered foam”. *Langmuir* 24.2 (2008), pp. 418–425 (cit. on pp. 16, 17, 22, 131).

[17] W. S. Thomson. “On the division of space with minimum partitional area”. *Acta Mathematica* 11.1-4 (1887), pp. 121–134 (cit. on p. 17).

[18] V. Bergeron. “Forces and structure in thin liquid soap films”. *Journal of Physics: Condensed Matter* 11.19 (1999), R215 (cit. on p. 19).

[19] S. Neethling, H. Lee, and J. Cilliers. “A foam drainage equation generalized for all liquid contents”. *Journal of Physics: Condensed Matter* 14.3 (2002), p. 331 (cit. on pp. 19, 119).

[20] R Phelan, D Weaire, E. Peters, and G Verbist. “The conductivity of a foam”. *Journal of Physics: Condensed Matter* 8.34 (1996), p. L475 (cit. on p. 19).

[21] V Carrier, S Destouesse, and A Colin. “Foam drainage: A film contribution?” *Physical Review E* 65.6 (2002), p. 061404 (cit. on pp. 19, 30, 119).

[22] I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Höhler, and O. Pitois. *Foams: structure and dynamics*. Oxford University Press, 2013 (cit. on pp. 19, 20).

[23] S. A. Koehler, S. Hilgenfeldt, and H. A. Stone. “A generalized view of foam drainage: experiment and theory”. *Langmuir* 16.15 (2000), pp. 6327–6341 (cit. on pp. 20, 25, 119).

[24] B. Haffner, Y. Khidas, and O. Pitois. “Flow and jamming of granular suspensions in foams”. *Soft matter* 10.18 (2014), pp. 3277–3283 (cit. on pp. 20, 111).

[25] H. Princen and A. Kiss. “Osmotic pressure of foams and highly concentrated emulsions. 2. Determination from the variation in volume fraction with height in an equilibrated column”. *Langmuir* 3.1 (1987), pp. 36–41 (cit. on p. 21).

[26] A. Saint-Jalmes and D. Langevin. “Time evolution of aqueous foams: drainage and coarsening”. *Journal of Physics: Condensed Matter* 14.40 (2002), p. 9397 (cit. on pp. 25, 33).

[27] S. Cohen-Addad, R. Höhler, and O. Pitois. “Flow in foams and flowing foams”. *Annual Review of Fluid Mechanics* 45.1 (2013), p. 241 (cit. on p. 25).

[28] D Weaire, N Pittet, S Hutzler, and D Pardal. “Steady-state drainage of an aqueous foam”. *Physical review letters* 71.16 (1993), p. 2670 (cit. on p. 25).

[29] M Durand, G Martinoty, and D Langevin. “Liquid flow through aqueous foams: from the plateau border-dominated regime to the node-dominated regime”. *Physical Review E* 60.6 (1999), R6307 (cit. on p. 25).

[30] O. Pitois, N Louvet, E. Lorenceau, and F. Rouyer. “Node contribution to the permeability of liquid foams”. *Journal of colloid and interface science* 322.2 (2008), pp. 675–677 (cit. on pp. 25, 119).

[31] E. Lorenceau, N Louvet, F. Rouyer, and O. Pitois. "Permeability of aqueous foams". *The European Physical Journal E: Soft Matter and Biological Physics* 28.3 (2009), pp. 293–304 (cit. on p. 26).

[32] F. Rouyer, O. Pitois, E. Lorenceau, and N. Louvet. "Permeability of a bubble assembly: From the very dry to the wet limit". *Physics of Fluids (1994-present)* 22.4 (2010), p. 043302 (cit. on p. 26).

[33] H. Darcy. *Les fontaines publiques de la ville de Dijon: exposition et application...* Ed. Victor Dalmont, 1856 (cit. on p. 27).

[34] K Golemanov, N. Denkov, S Tcholakova, M Vethamuthu, and A Lips. "Surfactant mixtures for control of bubble surface mobility in foam studies". *Langmuir* 24.18 (2008), pp. 9956–9961 (cit. on p. 28).

[35] A. Saint-Jalmes. "Physical chemistry in foam drainage and coarsening". *Soft Matter* 2.10 (2006), pp. 836–849 (cit. on p. 29).

[36] S. Cox, G Bradley, S Hutzler, and D Weaire. "Vertex corrections in the theory of foam drainage". *Journal of Physics: Condensed Matter* 13.21 (2001), p. 4863 (cit. on pp. 30, 119).

[37] J. von Neumann. "Metal interfaces". *American Society for Metals, Cleveland* 108 (1952) (cit. on p. 33).

[38] S. Hilgenfeldt, S. A. Koehler, and H. A. Stone. "Dynamics of coarsening foams: accelerated and self-limiting drainage". *Physical review letters* 86.20 (2001), p. 4704 (cit. on pp. 33, 131).

[39] N Louvet, F. Rouyer, and O. Pitois. "Ripening of a draining foam bubble". *Journal of colloid and interface science* 334.1 (2009), pp. 82–86 (cit. on p. 33).

[40] A.-L. Biance, A. Delbos, and O. Pitois. "How topological rearrangements and liquid fraction control liquid foam stability". *Physical review letters* 106.6 (2011), p. 068301 (cit. on p. 33).

[41] V Carrier and A Colin. "Coalescence in draining foams". *Langmuir* 19.11 (2003), pp. 4535–4538 (cit. on p. 35).

[42] S. Cohen-Addad, M. Krzan, R. Höhler, and B. Herzhaft. "Rigidity percolation in particle-laden foams". *Physical review letters* 99.16 (2007), p. 168001 (cit. on p. 36).

[43] S. Guignot, S. Faure, M. Vignes-Adler, and O. Pitois. "Liquid and particles retention in foamed suspensions". *Chemical Engineering Science* 65.8 (2010), pp. 2579–2585 (cit. on p. 36).

[44] R.-M. Guillermic, A. Salonen, J. Emile, and A. Saint-Jalmes. "Surfactant foams doped with laponite: unusual behaviors induced by aging and confinement". *Soft Matter* 5.24 (2009), pp. 4975–4982 (cit. on p. 36).

[45] I Lesov, S Tcholakova, and N Denkov. "Drying of particle-loaded foams for production of porous materials: mechanism and theoretical modeling". *RSC Advances* 4.2 (2014), pp. 811–823 (cit. on p. 36).

[46] F. Rouyer, N. Louvet, C. Fritz, and O. Pitois. "Transport of coarse particles in liquid foams: coupling of confinement and buoyancy effects". *Soft matter* 7.10 (2011), pp. 4812–4820 (cit. on p. 36).

[47] P. J. Hailing and P. Walstra. "Protein-stabilized foams and emulsions". *Critical Reviews in Food Science & Nutrition* 15.2 (1981), pp. 155–203 (cit. on p. 38).

[48] K Koczo, L. Lobo, and D. Wasan. "Effect of oil on foam stability: aqueous foams stabilized by emulsions". *Journal of colloid and interface science* 150.2 (1992), pp. 492–506 (cit. on p. 38).

[49] T. S. Horozov. "Foams and foam films stabilised by solid particles". *Current Opinion in Colloid & Interface Science* 13.3 (2008), pp. 134–140 (cit. on pp. 38, 39).

[50] K. Dong, R. Yang, R. Zou, and A. Yu. "Role of interparticle forces in the formation of random loose packing". *Physical review letters* 96.14 (2006), p. 145505 (cit. on p. 41).

[51] E. Brown and H. M. Jaeger. "Dynamic jamming point for shear thickening suspensions". *Physical review letters* 103.8 (2009), p. 086001 (cit. on p. 41).

[52] F. Mahaut, X. Chateau, P. Coussot, and G. Ovarlez. "Yield stress and elastic modulus of suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids". *Journal of Rheology* 52.1 (2008), pp. 287–313 (cit. on p. 41).

[53] N. Battaglia. *National Geographic Magazine* (2012) (cit. on p. 42).

[54] J. F. Brady. "The rheological behavior of concentrated colloidal dispersions". *The Journal of chemical physics* 99.1 (1993), pp. 567–581 (cit. on p. 42).

[55] G. Batchelor and J. Green. "The determination of the bulk stress in a suspension of spherical particles to order c2". *Journal of Fluid Mechanics* 56.03 (1972), pp. 401–427 (cit. on p. 43).

[56] M. Mooney. "The viscosity of a concentrated suspension of spherical particles". *Journal of colloid science* 6.2 (1951), pp. 162–170 (cit. on p. 43).

[57] I. M. Krieger and T. J. Dougherty. "A mechanism for non-Newtonian flow in suspensions of rigid spheres". *Transactions of The Society of Rheology (1957-1977)* 3.1 (1959), pp. 137–152 (cit. on pp. 43, 44).

[58] P. Peyla and C. Verdier. "New confinement effects on the viscosity of suspensions". *EPL (Europhysics Letters)* 94.4 (2011), p. 44001 (cit. on p. 45).

[59] A. Fall, N Huang, F. Bertrand, G Ovarlez, and D. Bonn. "Shear thickening of cornstarch suspensions as a reentrant jamming transition". *Physical Review Letters* 100.1 (2008), p. 018301 (cit. on p. 45).

[60] A. Mughal, H. K. Chan, and D. Weaire. "Phyllotactic description of hard sphere packing in cylindrical channels". *Physical review letters* 106.11 (2011), p. 115704 (cit. on p. 45).

[61] T. Thorsen, R. W. Roberts, F. H. Arnold, and S. R. Quake. "Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device". *Physical review letters* 86.18 (2001), p. 4163 (cit. on p. 49).

[62] C. N. Baroud, F. Gallaire, and R. Dangla. “Dynamics of microfluidic droplets”. *Lab on a Chip* 10.16 (2010), pp. 2032–2045 (cit. on pp. 49, 50).

[63] E. Lorenceau, Y. Y. C. Sang, R. Höhler, and S. Cohen-Addad. “A high rate flow-focusing foam generator”. *Physics of Fluids (1994-present)* 18.9 (2006), p. 097103 (cit. on pp. 49, 50).

[64] T Tate. “XXX. On the magnitude of a drop of liquid formed under different circumstances”. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 27.181 (1864), pp. 176–180 (cit. on p. 49).

[65] M. D. Abràmoff, P. J. Magalhães, and S. J. Ram. “Image processing with ImageJ”. *Biophotonics international* 11.7 (2004), pp. 36–43 (cit. on pp. 51, 58).

[66] H. C. Cheng and R. Lemlich. “Errors in the measurement of bubble size distribution in foam”. *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals* 22.1 (1983), pp. 105–109 (cit. on p. 52).

[67] B Bournonville, P Coussot, and X Chateau. “Modification du modèle de Farris pour la prise en compte des interactions géométriques d’un mélange polydisperse de particules”. *Rhéologie* 7 (2005), pp. 1–8 (cit. on pp. 76, 77).

[68] D. Cumberland and R. J. Crawford. *The packing of particles*. Elsevier Science Pub. Co. Inc., New York, NY, 1987 (cit. on p. 76).

[69] R. McGeary. “Mechanical packing of spherical particles”. *Journal of the American ceramic Society* 44.10 (1961), pp. 513–522 (cit. on p. 76).

[70] T.-S. Vu, G. Ovarlez, and X. Chateau. “Macroscopic behavior of bidisperse suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids”. *Journal of Rheology* 54.4 (2010), pp. 815–833 (cit. on p. 76).

[71] F. De Larrard. *Concrete mixture proportioning: a scientific approach*. CRC Press, 1999 (cit. on pp. 76, 77).

[72] A Saint-Jalmes, Y Zhang, and D Langevin. “Quantitative description of foam drainage: Transitions with surface mobility”. *The European Physical Journal E* 15.1 (2004), pp. 53–60 (cit. on p. 119).

[73] Y. Khidas, B. Haffner, and O. Pitois. “Capture-induced transition in foamy suspensions”. *Soft matter* 10.23 (2014), pp. 4137–4141 (cit. on p. 120).

[74] O. Pitois, E. Lorenceau, N Louvet, and F. Rouyer. “Specific surface area model for foam permeability”. *Langmuir* 25.1 (2008), pp. 97–100 (cit. on p. 130).

[75] M.-D. Lacasse, G. S. Grest, and D. Levine. “Deformation of small compressed droplets”. *Physical Review E* 54.5 (1996), p. 5436 (cit. on p. 131).

[76] K. A. Brakke. “The surface evolver”. *Experimental mathematics* 1.2 (1992), pp. 141–165 (cit. on pp. 131, 145).

Soft Matter

PAPER

Capture-induced transition in foamy suspensions

Y. Khidas,[a] B. Haffner[b] and O. Pitois*[b]

Cite this: *Soft Matter*, 2014, **10**, 4137

Received 31st January 2014
Accepted 12th March 2014

DOI: 10.1039/c4sm00246f

www.rsc.org/softmatter

We investigate the drainage behaviour of foamy granular suspensions. Results reveal large fluctuations in the drainage velocity as bubble size, particle size and gas volume fraction are varied for a given particle volume fraction. Particle capture is proved to control the overall drainage behaviour through the parameter λ, which compares the particle size to the size of passage through constrictions within the foam pore space. λ highlights a sharp transition: for $\lambda < 1$ particles are free to drain with the liquid, which involves the shear of the suspension in foam interstices, for $\lambda > 1$ particles are trapped and the resulting drainage velocity is strongly reduced. A phenomenological model is proposed to describe this behaviour.

1. Introduction

Aqueous foams are dispersions of densely packed gas bubbles in liquid. Their structures are organized over a large range of length scales, which is the cause of a large variety of reported mechanical and dynamical behaviours.[1] Foamy materials are obtained by incorporating gas in large amounts to other components. For instance, this method can be used to produce new materials with improved functional properties.[2] In this context, the optimization of such foamy materials requires a sound understanding of the general laws which control their behaviour. In spite of the significant progress realized in the field of foams, the results concern almost entirely aqueous foams,[1] whereas in industrial applications, complex fluids – such as suspensions – are mostly used as the continuous phase. Moreover, some very recent studies have highlighted the non-trivial behaviour of foams made with complex fluids. For example, the shear elasticity of foamy suspensions involves specific interactions between particles.[3] The drainage of foamy emulsions is activated by an applied macroscopic shear, according to a kinetic controlled by the magnitude of the shear rate.[4] From a more general point of view, the mechanics, the stability and the ageing of such systems are expected to be impacted by the presence of particles. Unfortunately, the overall behaviour of this interesting class of materials is still unexplained[5] and dedicated experiments are therefore required.

The key point in this issue is related to particle trapping phenomena, which can be classified into two distinct mechanisms: (i) the collective trapping – jamming – of the suspension, and (ii) the individual capture of particles by the foam constrictions.

In a previous paper,[6] drainage experiments performed with small particles have highlighted a jamming transition occurring at rather high particle volume fraction *i.e.* mechanism (i). In this paper, we investigate the second mechanism. In order to fully uncouple the effects of individual and collective trapping, we study the drainage of foamy suspensions in the regime of moderate particle volume fractions and we concentrate on the effect of particle size.

2. Experimental procedure

We describe the procedure we have developed in order to produce controlled systems made up of monodisperse particles, liquid and monodisperse bubbles (see ref. 6 for more details). Using appropriate bubbling methods in a foaming solution (TTAB 10g L^{-1}, glycerol, water), a foam with bubble diameter D_b is made in a vertical column. Liquid imbibition from the top of the column allows maintaining the liquid fraction at a constant value throughout the foam sample during the foam production. The foam is then pushed toward a T-junction where a suspension of polystyrene beads (diameter $d = 6$–80 μm) is injected. The liquid phase is the same for the foam and for the suspension; its density was matched with that of polystyrene (1.05) by adjusting the proportion of glycerol (20% w/w) and its bulk viscosity is $\mu_0 \simeq 1.7$ mPa s. The resulting gas and particle fractions, respectively ϕ and ϕ_p, are set by the liquid fractions and the flow rates of injected foam and suspension. In the following, we will refer to the particle volume fraction in the interstitial suspension, *i.e.* $\varphi_p = \phi_p/(1-\phi)$. A systematic study of all parameters is performed for a given moderate concentration $\varphi_p = 0.16$. Besides, for a limited set of parameters we study the effect of φ_p within the range 0–0.3. Our method has been found to produce homogeneous samples, characterized by well-distributed particles and bubbles, the size of the latter being preserved during the mixing step (Fig. 1). The loaded foam is then continuously introduced in a rotating horizontal column used to compensate the effects of drainage during the

[a]*Université Paris Est, Laboratoire Navier, UMR 8205 CNRS – École des Ponts ParisTech – IFSTTAR 5bd Descartes, 77454 Marne-la-Vallée Cedex 2, France*

[b]*Université Paris Est, Laboratoire Navier, UMR 8205 CNRS – École des Ponts ParisTech – IFSTTARcité Descartes, 2 allée Kepler, 77420 Champs-sur-Marne, France. E-mail: olivier.pitois@ifsttar.fr*

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

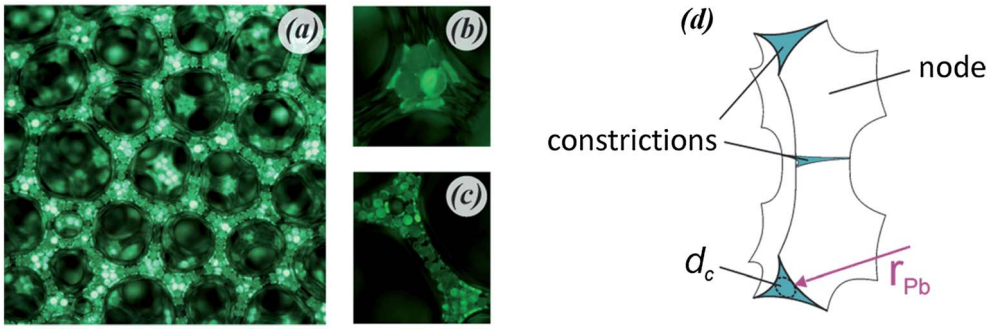


Fig. 1 Pictures showing foamy suspensions, (a) first layer of bubbles at the container wall. Fluorescent particles have been used in order to reveal the homogeneity of the sample over several bubble layers into the bulk. Bubble and particle sizes are respectively 660 μm and 80 μm ($\lambda = 1.7$). (b) Detail from the left picture (in the bulk, not at the wall). (c) Same situation except for the particle size (40 μm, $\lambda = 0.85$). (d) Sketch of the foam network showing the nodes and the constrictions; r_{Pb} is the characteristic radius of curvature of the foam network and d_c is the diameter of passage through constrictions.

preparation of the sample. Once the column is filled with the foamy suspension, it is turned to the vertical direction and the measurement of the free-drainage velocity starts. Note that with the present procedure, the starting point is a foam column with a uniform vertical gas fraction profile. Drainage is followed through the height $h(t)$ corresponding to the volume of the suspension drained off at the bottom of the column. Such a measurement is plotted in Fig. 2(a) for an unloaded foam, showing a first stage characterized by a rapid linear increase of $h(t)$ for times $t < \tau$, followed by a slower evolution towards the equilibrium value h_∞. Note that half of the liquid volume has drained off the foam as $t = \tau$.[1] During this regime, the volume of liquid/suspension draining out of the foam flows through foam areas that are not yet reached by the drainage front, *i.e.* areas where the gas fraction remains equal to the initial value, ϕ. We measure the velocity $V(\phi_s, \varphi_p, d, D_b)$ from the slope of this linear regime which accounts for drainage properties of the foam characterized by a constant gas fraction ϕ, or equivalently by a constant volume fraction of suspension $\phi_s = 1 - \phi$. Note that although τ and h_∞ vary significantly for particulate foams, it is shown in Fig. 2a that their drainage exhibits the same linear regime as the one described above for unloaded foams.

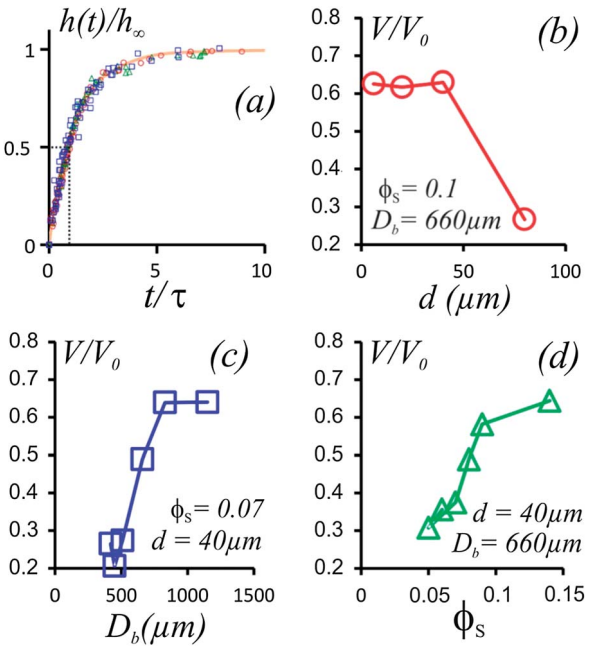


Fig. 2 Drainage velocity. (a) Temporal evolution of the reduced height of liquid/suspension drained out of the foam: unloaded foam (line), loaded foams same symbols than in (b–d). Reduced drainage velocity as a function of particle size (b), bubble size (c) and volume fraction of suspension (d). For each sample $\varphi_p = 16\%$.

3. Results and discussion

In order to characterize the effect of particles on drainage, we normalize the measured velocity by the one measured without particle, *i.e.* $V_0 \equiv V(\phi_s, \varphi_p = 0, d, D_b)$. Fig. 2(b–d) show the reduced drainage velocity measured for several sets of parameters (ϕ_s, $\varphi_p = 0.16$, d, D_b), for which one parameter is changed as three others are fixed.

First of all, particles contained within the interstitial phase of the foam reduce systematically the drainage velocity with respect to unloaded foams. Whereas the velocity decreases significantly as a function of particle size, the opposite effect is measured for the bubble size. We also measure a strong influence of the volume fraction of suspension, which shows that the reduced particle size, *i.e.* d/D_b, is not an appropriate parameter to describe the drainage behaviour of foamy suspensions. Thus we turn to another parameter, the so-called confinement parameter:[7]

$$\lambda = \frac{d}{d_c} = \frac{1 + 0.57\phi_s^{0.27}}{0.27\sqrt{\phi_s} + 3.17\phi_s^{2.75}} \frac{d}{D_b} \quad (1)$$

This geometrical parameter, which compares the particle size d to the size d_c of passage through constrictions within the foam pore space (see Fig. 1d), has been determined from both experiments involving the trapping/release of a single particle in foams and numerical simulations of foam structures.[7] All the

 This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

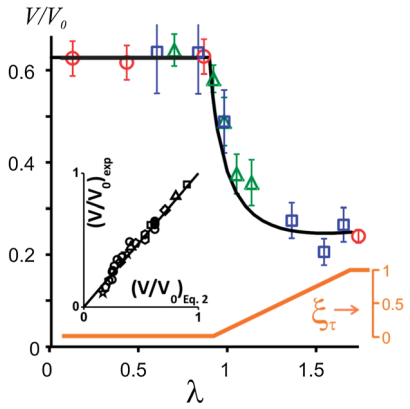


Fig. 3 Reduced drainage velocity (the drainage velocity of particle-laden foams normalized by the corresponding particle-free foam) as a function of the confinement parameter λ. The symbols refer to bubble sizes, particle sizes and volume fraction of suspensions presented in Fig. 2. The black line corresponds to eqn (2). Bottom: particle retention. Inset: experiment *vs.* eqn (2) for $\varphi_p = 0.04$ (□), 0.08 (△), 0.12 (◇), 0.16 (○), 0.2 (⬡), 0.25 (⬠) and 0.29 (☆).

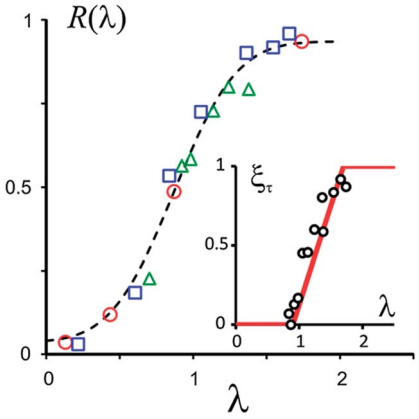


Fig. 4 Proportion of particles caught by foams after drainage as a function of the confinement parameter, for all investigated systems. Inset: function ξ_τ defined as the proportion of trapped particles during the first drainage regime, *i.e.* for times $t < \tau$ (see Fig. 2).

data presented in Fig. 2 are now plotted as functions of λ in Fig. 3. The relative error is 14% for $\phi_s < 0.08$, and 6% for the other data. The data collapse satisfactorily on a single curve meaning that λ is the control parameter of the sharp transition from a regime $\lambda < 1$ where the reduced drainage velocity does not depend on the confinement to a regime $\lambda > 1$ where confinement leads to a severe drop of the velocity. In the following, we present the experimental and the theoretical arguments to understand this behaviour.

As λ has been identified as the control parameter, particle capture is expected to play a crucial role in the drainage behaviour. Indeed, some samples release particles during drainage whereas others do not. In order to quantify this effect, we measure the particle retention of each sample, *i.e.* the mass of particles caught by the foam after drainage divided by the mass of particles introduced into the sample. This procedure allows for the relative error to be 5–10% depending on the studied parameters. The results for the retention are presented in Fig. 4 as a function of the confinement parameter. The retention curve $R(\lambda)$ increases abruptly from 10% to 90% when λ increases from 0.5 to 1.5. Note that during the free drainage, the gas fraction above the drainage front increases with time, resulting in the increase of the local confinement parameter in this upper part according to eqn (1). This means that particles initially allowed to flow with the liquid can be trapped when the drainage front reaches them. This explains why $R(\lambda)$ can be non-null for $\lambda < 1$. As already explained, the volume of drained suspension (v_τ) at $t = \tau$ equals the half of the final drained volume ($t \to \infty$), and the drainage conditions for v_τ are those set by the initial gas fraction. In other words, when $\lambda(\phi_s) \approx 1$, the 50% of particles released by the foam represent 100% of the particles contained in v_τ and the latter are released during the first regime of drainage. Since the measured drainage velocity corresponds to v_τ, we define the proportion of trapped particles in v_τ, *i.e.* $\xi_\tau(\lambda) = 2[R(\lambda) - 0.5]$ for $R(\lambda) > 0.5$ and $\xi_\tau(\lambda) = 0$ for $R(\lambda) < 0.5$ (inset Fig. 4). Our measurements reveal a progressive capture within the λ range 0.9–1.7, whereas an ideal system would exhibit a step behaviour at $\lambda = 1$. This spread accounts for (i) the dispersion in the sizes of both channels and particles and (ii) the wall/bottom effects. Indeed, the wall Plateau borders are characterized by a λ value 1.6 times larger than that corresponding to the bulk Plateau borders and their proportion is close to 10–15%.[1]

In the understanding of the reported transition, the key point is that the two drainage regimes correspond exactly to the λ ranges where either $\xi_\tau \approx 0$ or $\xi_\tau \approx 1$.

Let us first consider the case $\xi_\tau \approx 0$ which means that the particles are free to drain with the suspending liquid. In this regime, the reduced velocity appears to be constant. In the limit of vanishing λ, *i.e.* $\lambda \ll 1$, we expect the suspension to behave as a simple liquid with an effective reduced viscosity $\tilde{\mu}_{eff} = \mu_{eff}(\varphi_p)/\mu_0$. Here we refer to the semi-empirical relationship proposed by Krieger and Dougherty for the reduced effective viscosity of suspensions.[8] As the drainage velocity is inversely proportional to the liquid viscosity,[1] for $\lambda \ll 1$ the reduced velocity is written as $V/V_0 = 1/\tilde{\mu}_{eff}(\varphi_p) = (1 - \varphi_p/{\varphi_p}^*)^{2.5{\varphi_p}^*}$, where ${\varphi_p}^* \approx 0.6$ is the packing volume fraction of spherical particles. For $\varphi_p = 0.16$, one gets $V/V_0 \approx 0.63$, which is in very good agreement with all velocity values reported for $\lambda < 1$, even when λ is close to unity. It should be noted that, for $\lambda \approx 1$, the volume of a foam node v_n is large enough to be a representative volume of the suspension. For the rather wet foams considered here, most of the liquid/suspension is contained within the foam nodes[9] and v_n can be estimated as follows: foam counts approximately 6 nodes per bubble[1] so that the node volume reads $(1 - \phi)/\phi \cdot \pi D_b^3/36 \approx 10^{-2} D_b^3$ for $\phi = 0.9$. Using eqn (1), one gets $v_n \approx 30d^3$, which corresponds approximately to 60 sphere volumes. This means that although the geometrical confinement is extreme in the constrictions of the foam network, the concept of effective viscosity makes sense in foam nodes where the suspension is effectively sheared. Moreover, this effect is specific to foams due to the interfacial mobility which allows the particles to flow easily in constrictions.[10]

Now we consider the regime $\xi_\tau \approx 1$, where the low value of the drainage velocity is caused by particle capture similar to those found for particle deep-bed filtration in solid porous media.[11,12] At the microscopic level we consider an effective foam node where the trapped particles are packed at the volume fraction φ_p^*. As already mentioned, the volume of the foam constrictions is neglected relative to the foam node volume. During the drainage stage, the volume fraction of nodes filled with packed particles is $\Phi_n = \varphi_p/\varphi_p^*$. The pressure gradient over a loaded node is estimated by summing the pressure gradient over the portion of unloaded node[9] and the pressure gradient resulting from the permeation of the liquid flow through the porosity of the particle packing:[13] $\nabla P(\Phi_n) \approx (1-\Phi_n)\mu_0 V_\ell/\tilde{k}_n r_{Pb}^2 + \Phi_n\mu_0 V_\ell/\tilde{C}_{CK} d^2$, where V_ℓ is the liquid velocity through the node, $\tilde{k}_n$ is the permeability coefficient of the node without particles, $\tilde{C}_{CK} \approx 10^{-3}$ (ref. 14) is the permeability coefficient for packed beads, and r_{Pb} is the typical size of foam channels and it will be used here as the typical size of nodes. Note that r_{Pb} is related to the constriction size: $d_c = \alpha r_{Pb}$, where $\alpha = 2(2/\sqrt{3}-1)$.[7] By averaging over all orientations for the nodes, the foam permeability K can be expressed as a function of the parameters defined at the local scale.[9] As the drainage velocity is proportional to the foam permeability, we obtain the expression for the reduced drainage velocity: $V/V_0 = [(1-\Phi_n) + \Phi_n\tilde{k}_n/\tilde{C}_{CK}\alpha^2\lambda^2]^{-1}$. The fitting parameter $\tilde{k}_n$ is found to be 1/300, which is fully consistent with values reported in the literature.[15]

Thus, both retention regimes $\xi_\tau \approx 0$ and $\xi_\tau \approx 1$ are well understood in terms of drainage velocity. Now we concentrate on the transition between these two regimes, where the nodes are expected to be progressively filled with packed particles as λ increases. A pragmatic approach consists of using the experimental retention curve for evaluating the volume fraction of nodes filled with packed particles within the range $0.9 < \lambda < 1.7$, *i.e.* $\Phi_n(\lambda) = \xi_\tau(\lambda)\varphi_p/\varphi_p^*$. We approximate $\xi_\tau(\lambda)$ by the simple form: $\xi_\tau(\lambda) = 5\lambda/4 - 9/8$, as presented in the inset of Fig. 4. Therefore, within this λ range, the system consists of a volume fraction $\xi_\tau\varphi_p$ of trapped particles and a volume fraction $(1-\xi_\tau)\varphi_p$ of free particles. In the absence of the detailed description of the flow at the microscopic level, we assume that the transition can be described at the macroscopic scale by adding the contribution of each set of particles. Therefore, the effective viscosity of the flowing suspension becomes $\tilde{\mu}_{eff} = (1-(1-\xi_\tau(\lambda))\varphi_p/\varphi_p^*)^{-2.5\varphi_p^*}$. Using the same approach as presented above we obtain:

$$V/V_0 = \left[(1-\Phi_n(\lambda))\tilde{\mu}_{eff}(\lambda) + \Phi_n(\lambda)\frac{\tilde{k}_n}{\tilde{C}_{CK}\alpha^2\lambda^2}\right]^{-1} \quad (2)$$

Eqn (2) is plotted in Fig. 3, where it is found to describe reasonably the transition observed in the experimental data. In order to check the robustness of the model we present in the inset the comparison of eqn (2) with the whole set of experimental data. The best fitting value for $1/\tilde{k}_n$ is 300, but a reasonable agreement is observed as this parameter varies within the range 250–350. In contrast, the function $\xi_\tau(\lambda)$ has a more sensitive effect on the computed values. This shows that the retention function is crucial in the understanding of the drainage behaviour.

4. Conclusion

We have highlighted a sharp transition in the drainage kinetics of foamy suspensions. This behaviour has been proved to be controlled by the confinement parameter λ. The significance of λ has been emphasized by the measurement of particle retention during the drainage process, providing the basis for modelling. Extension of this work should consider more complex situations such as polydisperse systems (bubbles and/or particles). As the drainage velocity accounts for the mobility of the interstitial suspension, the reported results go well beyond the scope of drainage. Indeed, this mobility is involved in bubble rearrangements, the so-called T1 events, undergone by foams during flows,[16] ripening[17] or coalescence events.[18] Therefore, the reported transition is expected to be a major element in the understanding of the global behaviour of particles and bubbles mixed suspensions.

Acknowledgements

We thank A. Lemaître for stimulating discussions, D. Hautemayou and C. Mézière for technical support. We gratefully acknowledge financial support from Agence Nationale de la Recherche (Grant no. ANR-13-RMNP-0003-01) and French Space Agency (convention CNES/70980).

References

1 D. Weaire and S. Hutzler, *The physics of foams*, Oxford University Press, United Kingdom, 2000; I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Höhler, O. Pitois, F. Rouyer and A. Saint-Jalmes, *Foams – Structure and Dynamics*, ed. S. Cox, Oxford University Press, United Kingdom, 2013.
2 A. R. Studart, U. T. Gonzenbach, E. Tervoort and L. J. Gauckler, *J. Am. Ceram. Soc.*, 2006, **89**, 1771–1789.
3 S. Cohen-Addad, M. Krzan, R. Höhler and B. Herzhaft, *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **99**, 168001S.
4 J. Goyon, F. Bertrand, O. Pitois and G. Ovarlez, *Phys. Rev. Lett.*, 2010, **104**, 128301.
5 K. Koczo, L. A. Lobo and D. T. Wasan, *J. Colloid Interface Sci.*, 1992, **150**, 492; R.-M. Guillermic, A. Salonen, J. Emile and A. Saint-Jalmes, *Soft Matter*, 2009, **5**, 4975; A. Britan, M. Liverts, G. Ben-Dor, S. A. Koehler and N. Bennani, *Colloid Surf. A*, 2009, **15**, 344; F. Carn, A. Colin, O. Pitois, M. Vignes-Adler and R. Backov, *Langmuir*, 2009, **25**, 7847.
6 B. Haffner, Y. Khidas and O. Pitois, *Soft Matter*, 2014, **10**(18), 3277–3283.
7 N. Louvet, R. Höhler and O. Pitois, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2010, **82**, 041405.
8 I. M. Krieger and T. J. Dougherty, *Trans. Soc. Rheol*, 1959, **3**, 137.
9 S. A. Koehler, S. Hilgenfeldt and H. A. Stone, *Phys. Rev. Lett.*, 1999, **82**, 4232.

 This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

10 F. Rouyer, N. Louvet, C. Fritz and O. Pitois, *Soft Matter*, 2011, **7**, 4812.
11 H. Soo and C. J. Radke, *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 1984, **23**, 342–347.
12 M. Sahimi, G. R. Gavalas and T. T. Tsotsis, *Chem. Eng. Sci.*, 1990, **45**, 1443–1502.
13 H. Darcy, *Les fontaines publiques de la ville de Dijon*, ed. V. Dalmont, Paris, 1856.
14 J. Kozeny, *Ber. Wien Akad.*, 1927, **136**, 271; P. C. Carman, *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 1937, **15**, 150.
15 O. Pitois, N. Louvet, E. Lorenceau and F. Rouyer, *J. Colloid Interface Sci.*, 2008, **322**, 675.
16 S. Cohen-Addad, R. Höhler and O. Pitois, *Annu. Rev. Fluid Mech*, 2013, **45**, 241.
17 S. Cohen-Addad, R. Höhler and Y. Khidas, *Phys. Rev. Lett.*, 2004, **93**, 028302.
18 A.-L. Biance, A. Delbos and O. Pitois, *Phys. Rev. Lett.*, 2011, **106**, 068301.

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

Soft Matter

PAPER

Flow and jamming of granular suspensions in foams

B. Haffner,[a] Y. Khidas[b] and O. Pitois*[a]

Cite this: *Soft Matter*, 2014, **10**, 3277

Received 9th January 2014
Accepted 4th February 2014

DOI: 10.1039/c4sm00049h

www.rsc.org/softmatter

The drainage of particulate foams is studied under conditions where the particles are not trapped individually by constrictions of the interstitial pore space. The drainage velocity decreases continuously as the particle volume fraction φ_p increases. The suspensions jam – and therefore drainage stops – for values φ_p^* which reveal a strong effect of the particle size. In accounting for the particular geometry of the foam, we show that φ_p^* accounts for unusual confinement effects when the particles pack into the foam network. We model quantitatively the overall behavior of the suspension – from flow to jamming – by taking into account explicitly the divergence of its effective viscosity at φ_p^*. Beyond the scope of drainage, the reported jamming transition is expected to have a deep significance for all aspects related to particulate foams, from aging to mechanical properties.

1. Introduction

Foams are used in a lot of industrial processes: gas is mixed in many materials to improve their thermal performance or to make them lighter, which is favourable to sustainable development. The matrix of those aerated materials is often composed of a complex fluid, such as a suspension. Typical examples for such mixtures can be found in food and cosmetic industries,[1] in the production of construction materials[2] and of ceramic foams[3] that are used in numerous fields of technological processes such as filtering, membranes, catalysis, … Note also that the mining industry extensively resorts to mixtures of foam and particles through the flotation process that is used to separate ores.[4]

The homogeneity of a foam sample can be drastically affected by the drainage of the liquid and the simultaneous rise of the bubbles, resulting in degradation of the quality and the properties of the final material. During the last two decades, most of the progress realized in the field of foam drainage has concerned aqueous foams, *i.e.* dispersions of densely packed gas bubbles in a liquid.[5] Some very recent studies have focussed on the drainage behaviour of foamy complex fluids, such as clays,[6] coal fly ashes,[7] colloidal suspensions,[8] granular suspensions,[9] and emulsions.[10] Despite the results provided by these studies, a sound understanding of drainage laws in the presence of suspended particulate matter is still lacking. In order to explain the reported drainage velocities the authors have resorted to particle trapping phenomena, which can be classified into two distinct mechanisms: (i) the individual capture of particles by the foam constrictions, and (ii) the collective trapping – jamming – of the suspension.

With regard to the first mechanism (i), Louvet *et al.*[11] studied the capture/release transition of a single spherical particle confined within the interstitial network of foam. The authors introduced a confinement parameter λ which compares the size of the suspended particles to that of the foam constrictions. Afterwards, λ has been proved to control the drainage behaviour of aqueous foams containing a moderate volume fraction of density-matched spherical particles.[9] A sharp transition has been highlighted: for $\lambda < 1$ particles are free to drain with the liquid, which involves the shear of the suspension in foam interstices, for $\lambda > 1$ particles are trapped and the mobility of the interstitial phase is strongly reduced. Moreover, simple modelling has been found to describe the reported drainage behaviour as a function of λ. This study, that involved a dedicated model experimental system, has shown a promising way to progress further in the understanding of particulate foams. In this paper we follow this approach and we investigate the second trapping mechanism (ii), *i.e.* the jamming of the suspension within the interstitial foam network. This phenomenon is expected to be observed at a sufficiently high particle volume fraction.[12] The foam network induces confinement constraints that could influence this jamming transition. Indeed this confinement effect has been reported in studies involving small gap sizes in conventional rheometers[13–16] as well as a dedicated set-up.[17] Therefore we will pay particular attention to this issue. In order to fully uncouple the two trapping mechanisms, we consider the situation $\lambda < 1$, for which particles are not subjected to the individual capture process (i),[9] and we measure the drainage velocity as a function of both particle volume fraction and λ.

2. Experimental set-up

Particulate foam samples are prepared from a precursor liquid foam which is subsequently mixed with a granular suspension (Fig. 1). The foaming solution contains 10 g L^{-1} of

[a]Université Paris Est, Laboratoire Navier, UMR 8205 CNRS – École des Ponts ParisTech – IFSTTAR cité Descartes, 2 allée Kepler, 77420 Champs-sur-Marne, France. E-mail: olivier.pitois@ifsttar.fr

[b]Université Paris Est, Laboratoire Navier, UMR 8205 CNRS – École des Ponts ParisTech – IFSTTAR 5 bd Descartes, 77454 Marne-la-Vallée Cedex 2, France

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

TetradecylTrimethyl-Ammonium Bromide (TTAB) in distilled water with 20% w/w glycerol. With such a proportion of glycerol the density of the solution is 1050 kg m^{-3} and matches with that of polystyrene particles used in the study. The surface tension of the liquid/gas interface is 38 mN m^{-1} and shear viscosity of the bulk is $\mu_0 \simeq 1.7$ mPa s. As we can see from Fig. 1a, bubbles are generated in a T-junction with two entries (nitrogen and foaming solution) and one exit (bubbly solution). Thanks to the flow focusing mechanism,[18] small volumes of gas and liquid pass alternatively through the junction, resulting in the production of bubbles, whose size is controlled by tuning the flow rates of the gas and liquid. For this study the bubble diameter has been set to $D_b = 660 \pm 30$ μm. The bubbles are continuously produced and released at the bottom of a column which is partially filled with the foaming solution (Fig. 1b). This results in the formation of foam in the column. During the production, the foam is imbibed with the same foaming solution in order to achieve stationary drainage conditions with a constant value of the gas fraction (ϕ_1) throughout the foam column.[19] Once the column is filled, the foam is flushed towards a mixing device (which is also based on a T-junction) where the granular suspension is introduced (Fig. 1c). The suspension is prepared at a given particle volume fraction (φ_2) by mixing the foaming solution and polystyrene spherical beads (Microbeads®). The beads are quite monodisperse: $\Delta d_p/d_p \approx 5\%$ and we have used the following four diameters: $d_p = 6$, 20, 30 and 40 μm. In the foaming solution, those particles behave as fully hydrophilic particles and they do not adsorb at bubble interfaces. We have checked that the mixing device does not break bubbles and therefore, the bubble size in the final sample is also $D_b = 660$ μm. The outlet of the mixing device is connected to a cylindrical tube (26 mm in diameter) in which the produced particulate foam is continuously introduced (Fig. 1d). It is equipped with a piston whose rate of withdrawing motion compensates exactly the volume flow rate of the injected particulate foam. Moreover, the tube is rotated (0.3 Hz) along the horizontal axis in order to compensate the effects of gravity during the filling step. We stop this step once the volume of the produced particulate foam equals 60 mL, which corresponds to a foam length approximately equal to 11.5 cm. Then the foam tube is turned to the vertical position and we start to measure the drainage properties of the samples. We follow the evolution of the height $h(t)$ locating the transition between the foam and the drained suspension at the bottom of the column (see Fig. 1(II)). Note that the main contribution to the global error on $h(t)$ is related to the apparent thickness of the transition due to the bubble size. This error is close to $\Delta h/h \approx 15\%$ except for the very low values of $h(t)$.

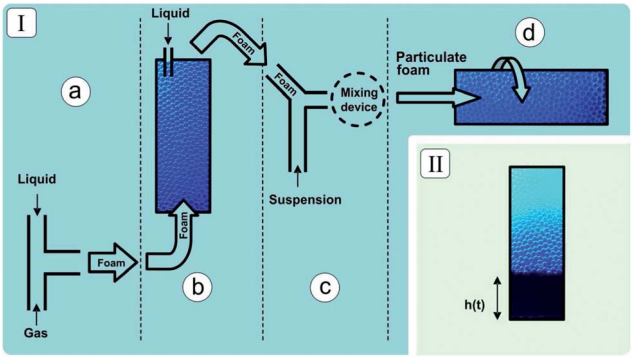


Fig. 1 Experimental setup. (I) Production of particulate foams: monodisperse bubbles are generated from the simultaneous injection of gas and foaming solution through a T-junction (a). The bubbles are released at the bottom of a column partially filled with the foaming solution and foam is produced. Imbibition with the same foaming solution allows setting the gas fraction over the whole foam sample (b). Once the foam has filled the column, it is injected along with a granular suspension in a small device in order to obtain the final mixture (c), the proportion of each phase being accurately controlled during this stage. The mixture is continuously introduced in a horizontal column where rotation allows for gravity effects to be compensated (d). (II) Study of drainage: after the generation step, the rotating motion is stopped and the column is turned to the vertical position. A camera is then used to follow the evolution of the position of the foam/liquid transition, from which the drainage velocity is determined.

The other parameters are controlled by the relative flow rates of the precursor foam (q_1) and the suspension (q_2). The resulting gas fraction is $\phi = q_1\phi_1/(q_1 + q_2)$. For the particle fraction, rather than considering the entire particulate foam volume, we will see that it is more appropriate to define the volume fraction of particles in the interstitial phase: $\varphi_p = q_2\varphi_2/[q_1(1-\phi_1) + q_2]$. For all the samples presented in the following we have controlled the production stage in such a way that $\phi = 0.9$. As we are interested in confinement effects on the drainage of particulate foams, we refer to the confinement parameter λ[11,9] that compares the particle size to the size d_C of the passage through constrictions in the interstitial network of the foam. In ref. 11,

$$\lambda = \frac{d_p}{d_C} = \frac{1 + 0.57(1-\phi)^{0.27}}{0.27\sqrt{1-\phi} + 3.17(1-\phi)^{2.75}} \frac{d_p}{D_b} \quad (1)$$

has been determined from both experiments involving the trapping/release of a single particle in foams and numerical simulations of foam structures. Using the values of d_p, D_b and ϕ, we obtain the following λ values probed in this study: $\lambda = 0.13$, 0.43, 0.65 and 0.87.

3. Kinetics of drainage

For the particle-free samples, Fig. 2a shows the measured curve $h(t)/h_0^\infty$, where $h_0^\infty \equiv h(t \to \infty, \varphi_p = 0)$: a first stage is characterized by a rapid linear increase for times $t < \tau$ (inset Fig. 2a), followed by a slower evolution towards the equilibrium value h_0^∞. The time $t = \tau$ is identified as the characteristic time for which half of the liquid volume has drained off the foam.[5] During this regime, the volume of liquid/suspension drained out of the foam has flowed through foam areas that have not yet been reached by the drainage front, *i.e.* areas where the gas fraction has remained equal to the initial value ϕ. Because the linear regime accounts for drainage properties of foam characterized by a constant gas fraction ϕ, we measure the drainage velocity V from the slope of this linear evolution, $V = \mathrm{d}h/\mathrm{d}t$. In order to characterize the effect of particles on drainage, we

 This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

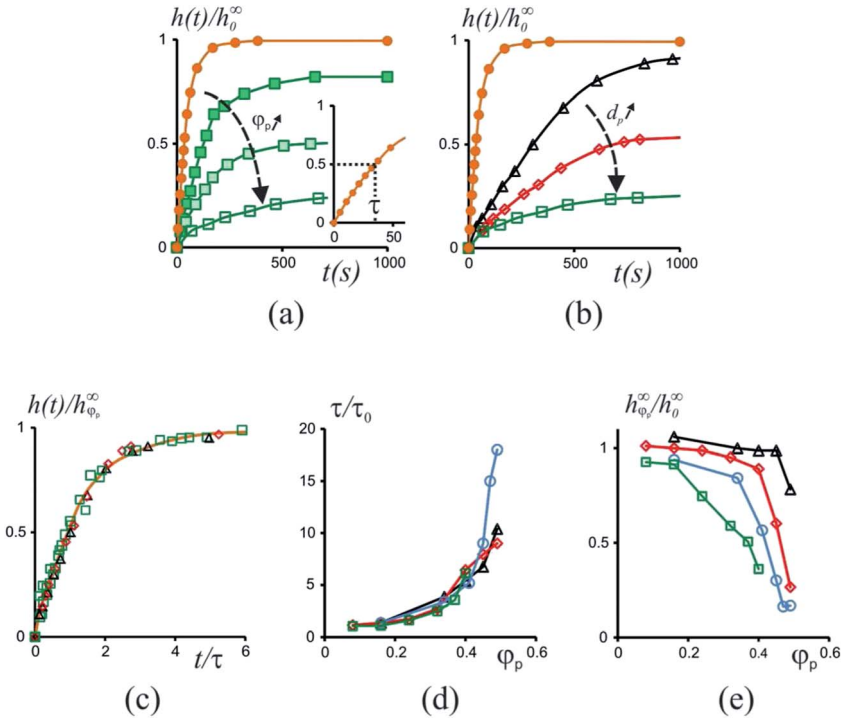


Fig. 2 Temporal evolution of the reduced height of liquid/suspension drained out of the foam. (a) Effect of the particle volume fraction at a fixed particle size $d_p = 40$ μm: $\varphi_p = 0$ (●), 0.16 (■), 0.37 (□) and 0.45 (□); inset: zoom on the linear regime of the particle-free foam. (b) Effect of the particle size at a fixed particle volume fraction $\varphi_p = 0.45$: $d_p = 6$ μm (Δ), 20 μm (◇) and 40 μm (□). (c) Rescaled drainage curves from all the data of (a) and (b). (d) and (e) τ/τ_0 and $h^\infty_{\varphi_p}/h^\infty_0$ *versus* φ_p for several particle sizes: $d_p = 6$ μm (Δ), 20 μm (◇), 30 μm (○), and 40 μm (□).

normalize the measured drainage velocity by the one measured without particle, *i.e.* V/V_0. Note that because of uncertainties related to the measurement of $h(t)$ for $h \simeq 0$, linear fits are not applied to the early stage of the linear regime. Consequently, the relative error on the reduced drainage velocity is estimated to be close to 15%.

Fig. 2 illustrates the measured evolutions for $h(t)/h_0^\infty$ as φ_p (Fig. 2a) or d_p (Fig. 2b) varies. Both parameters modify significantly the drainage of particulate foams: (i) the initial slope decreases as both φ_p and d_p increase, (ii) the final value $h^\infty_{\varphi_p} \equiv h(t \to \infty, \varphi_p)$ decreases as well. The linear regime remains rather well defined for each sample, which suggests that the slope reasonably accounts for drainage corresponding to stationary conditions within the imposed initial conditions. $h^\infty_{\varphi_p}$ accounts for the final retention level for particles in the foam. Even if particles are not captured during the linear regime of drainage ($\lambda < 1$ within these drainage conditions), they get trapped as the drainage front reaches them and imposes the condition $\lambda > 1$. The larger the particles are, the earlier they get trapped when the drainage front goes down, and the higher the retention level is. Note that images from the bottom of the foam column confirmed that the released particles are effectively released during the first regime of drainage.[9] In Fig. 2c, reducing $h(t)$ by $h^\infty_{\varphi_p}$ and t by τ makes all the curves of Fig. 2a and b collapse into a single one. Note that although τ and $h^\infty_{\varphi_p}$ vary significantly from one sample to the other (see Fig. 2d and e), this confirms that free-particle and particulate foams exhibit the same drainage behavior.

All the drainage velocities are now plotted in Fig. 3. For the different values of λ, it shows a regular decrease of V/V_0 as the particle volume fraction φ_p increases. The effect of particle size is not significant as $\varphi_p \lesssim 0.2$, but discrepancies appear for larger values. Drainage velocities seem to vanish, *i.e.* $V/V_0 \approx 0$, as φ_p reaches approximately 0.5. The inset in Fig. 3 reveals that the particular value of φ_p for which the drainage velocity vanishes increases with the particle size.

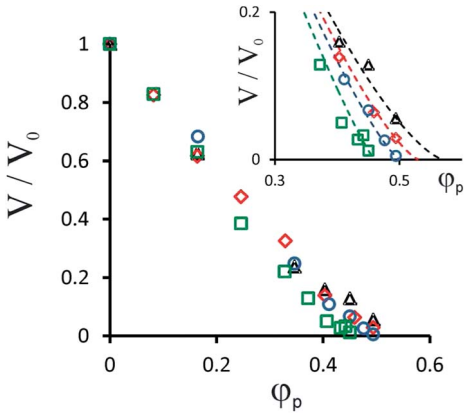


Fig. 3 Reduced drainage velocity (deduced from the slope of the linear regime in $h(t)/h_0^\infty$ *vs.* t plots) as a function of the particle volume fraction for several particle sizes: $d_p = 6$ μm (Δ), 20 μm (◇), 30 μm (○), and 40 μm (□). Inset: zoom on vanishing drainage velocities.

4. Discussion

Drainage experiments have provided results for the flow of granular suspensions through the interstices of foams. As a starting point, we analyze these results in terms of the reduced effective viscosity of the suspension, *i.e.* $\tilde{\mu}_{\mathrm{eff}}(\varphi_{\mathrm{p}}) = \mu_{\mathrm{eff}}(\varphi_{\mathrm{p}})/\mu_0$, which is deduced from the drainage velocities through the relationship: $\tilde{\mu}_{\mathrm{eff}}(\varphi_{\mathrm{p}}) = V_0/V(\varphi_{\mathrm{p}})$.[5] Fig. 4 shows this quantity as a function of φ_{p} for the four studied values of λ. For $\varphi_{\mathrm{p}} \lesssim 0.2$ the viscosity of the suspension is consistent with the theoretical values for the bulk viscosity of diluted non-Brownian solid spheres estimated from the expression $\tilde{\mu}_{\mathrm{eff}}(\varphi_{\mathrm{p}}) = 1 + 2.5\varphi_{\mathrm{p}} + 6.95{\varphi_{\mathrm{p}}}^2$.[20] Whereas this agreement is expected for $\lambda \ll 1$, one can question the agreement observed for $\lambda \approx 1$. It should be realized that for the rather wet foams considered here, the suspension is mostly contained within the foam nodes and the volume of a foam node, ν_{n}, is large enough to be a representative volume of suspension. ν_{n} can be estimated in assuming 6 nodes per bubble:[5] $\nu_{\mathrm{n}} \approx \pi(1-\phi){D_{\mathrm{b}}}^3/36\phi$. In relating the bubble size to the radius of Plateau borders r_{Pb} through $r_{\mathrm{Pb}}/D_{\mathrm{b}} \approx 0.62(1-\phi)^{0.45}$,[5] the node volume reads $\nu_{\mathrm{n}} \approx 0.9{r_{\mathrm{Pb}}}^3$, or equivalently $\nu_{\mathrm{n}} \approx 30{d_{\mathrm{p}}}^3$, which corresponds approximately to 60 sphere volumes. This means that although the geometrical confinement is extreme in the constrictions of the foam network for $\lambda \approx 1$, the concept of effective viscosity makes sense in foam nodes where the suspension is effectively sheared. Moreover, this effect is specific to foams due to the interfacial mobility which allows the particles to flow easily in constrictions.[21] For $\varphi_{\mathrm{p}} \gtrsim 0.2$ Fig. 4 shows deviations in the viscosity corresponding to different values of λ. Moreover these deviations increase as a function of the particle volume fraction. In fact, the data corresponding to each value of λ define a distinct curve and can be fitted with the Krieger–Dougherty relationship: $\tilde{\mu}_{\mathrm{eff}}(\varphi_{\mathrm{p}}) = (1-\varphi_{\mathrm{p}}/\varphi_{\mathrm{p}}^{\mathrm{crit}})^{-2.5\varphi_{\mathrm{p}}^{\mathrm{crit}}}$, where $\varphi_{\mathrm{p}}^{\mathrm{crit}}$ is the critical particle volume fraction for which the viscosity diverges.[22] As shown in Fig. 4, the critical particle volume fraction obtained by fitting the data depends on λ: $\varphi_{\mathrm{p}}^{\mathrm{crit}} = 0.57$, 0.53, 0.50 and 0.46 for $\lambda = 0.13$, 0.43, 0.65 and 0.87 respectively. The physical meaning of $\varphi_{\mathrm{p}}^{\mathrm{crit}}$ is usually interpreted as a consequence of the particle packing at φ_{p}^*,[14,23,24] *i.e.* $\varphi_{\mathrm{p}}^{\mathrm{crit}} \cong \varphi_{\mathrm{p}}^*$. Therefore, in the following we seek a physical interpretation of the reported evolution of φ_{p}^* as a function of λ. In doing so we determine the packing fraction of particles in the structural elements of the foam network, namely the nodes and the Plateau borders, *i.e.* $\varphi_{\mathrm{p,node}}^*$ and $\varphi_{\mathrm{p,Pb}}^*$ respectively. First, $\varphi_{\mathrm{p,node}}^*$ can be estimated from existing results for bidisperse packing of spheres.[25,26] Whereas monodisperse assemblies of fine or coarse particles have the same bulk packing fraction ($\varphi_{\mathrm{bulk}}^*$), the overall packing fraction of bidisperse assemblies ($\varphi_{\mathrm{bidisperse}}^*$) depends on both x_{F}, the volume fraction of fine particles in the mixture and Λ, the coarse to fine particle size ratio. We are interested in situations characterized by $\Lambda \gg 1$, where the fine particles are sufficiently small to fill the spaces in the packing of coarse particles. In such a case, the maximum overall packing fraction is $\varphi_{\mathrm{bidisperse}}^{\mathrm{max}} = \varphi_{\mathrm{bulk}}^* + (1-\varphi_{\mathrm{bulk}}^*)\varphi_{\mathrm{p}}^*(\Lambda)$, where $\varphi_{\mathrm{bulk}}^*$ refers to the packing of coarse particles and $\varphi_{\mathrm{p}}^*(\Lambda)$ is the packing fraction for the fine particles confined in the spaces formed by the packed coarse particles. For $\Lambda \to +\infty$, $\varphi_{\mathrm{p}}^*(\Lambda) = \varphi_{\mathrm{bulk}}^*$, but due to wall effects $\varphi_{\mathrm{p}}^*(\Lambda) < \varphi_{\mathrm{bulk}}^*$ for any finite value of Λ. Models accounting for the wall effect in mixtures of spheres have been proposed and here we refer to the model of de Larrard *et al.*[26,27] For large Λ values $\varphi_{\mathrm{bidisperse}}^*$ is given by the following set of equations:

$$\begin{cases} \varphi_{\mathrm{bidisperse}}^* = \min(\varphi_{\mathrm{C}},\ \varphi_{\mathrm{F}}) \\ \varphi_{\mathrm{C}} = \dfrac{\varphi_{\mathrm{bulk}}^*}{1-x_{\mathrm{F}}} \\ \varphi_F = \dfrac{\varphi_{\mathrm{bulk}}^*}{1-(1-x_{\mathrm{F}})\left[1-\varphi_{\mathrm{bulk}}^* + b_{\mathrm{CF}}\left(\varphi_{\mathrm{bulk}}^* - 1\right)\right]} \end{cases} \quad (2)$$

where $b_{\mathrm{CF}} = [1-(1-1/\Lambda)^{1.79}]^{0.82}$ (ref. 27) is the function accounting for the geometrical wall effect. $\varphi_{\mathrm{bidisperse}}^*$ is plotted in the inset of Fig. 5 and it shows how $\varphi_{\mathrm{bidisperse}}^{\mathrm{max}}$ decreases due to wall effects as Λ decreases ($\Lambda \propto \lambda^{-1}$). As the geometry of a foam

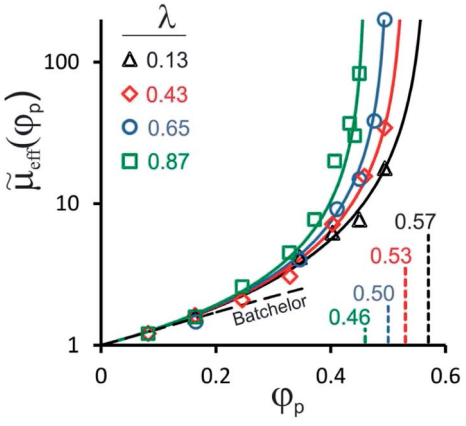


Fig. 4 Reduced effective viscosity of the suspension as a function of the particle volume fraction for several λ values. The solid lines correspond to Krieger–Dougherty curves using the critical particle volume fractions reported on the abscissa for each λ value. The dashed line corresponds to $\tilde{\mu}_{\mathrm{eff}}(\varphi_{\mathrm{p}}) = 1 + 2.5\varphi_{\mathrm{p}} + 6.95{\varphi_{\mathrm{p}}}^2$.

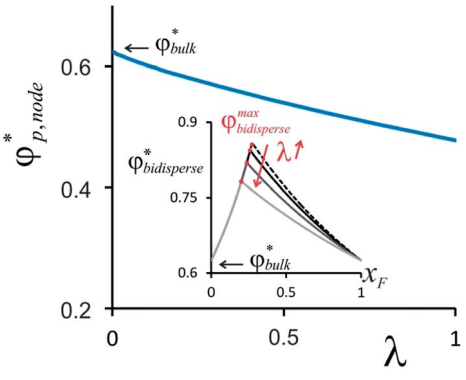


Fig. 5 Packing fraction of spheres confined in a foam node ($\varphi_{\mathrm{bulk}}^*$ is the packing fraction within unconfined conditions). Inset: packing fraction of bidisperse assemblies of coarse and fine particles as a function of the proportion of fine particles – computed from eqn (2). The maximum value is shown to decrease as the coarse to fine size ratio decreases from ∞ to 6.5, or equivalently as λ increases from 0 to 1.

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

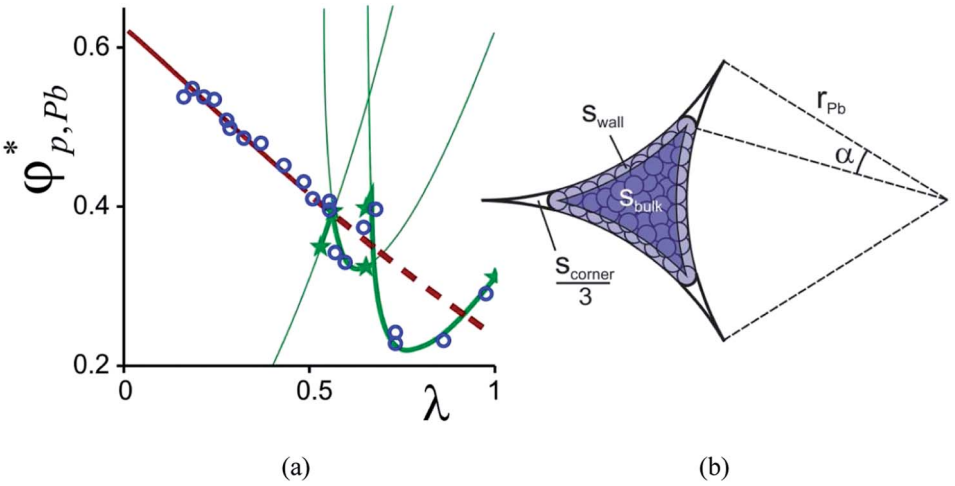


Fig. 6 Packing of spheres in an ideal Plateau border. (a) (o) Experimental data for glass beads poured in the space between 3 cylinders in contact, thick brown line: eqn (3), thin green lines: eqn (5)–(7) (appendix) and (★) ordered sphere packings (appendix); (b) sketch of the Plateau border cross-section filled with particles.

node differs from that resulting from the contacting coarse spheres discussed above, one has to define an equivalent coarse sphere radius for foam. The shape of foam nodes is imposed by capillary forces and the Young–Laplace law implies that the mean curvature is approximately constant for the node surface, *i.e.* $H = 1/r_{n,1} + 1/r_{n,2} \approx cte$, where $r_{n,1}$ and $r_{n,2}$ are the two principal radii of curvature. At the node ends, where it connects to Plateau borders, these radii can be approximated by $r_{n,1} \gg r_{n,2} \approx r_{Pb}$, so that $H \approx 1/r_{Pb}$. At the centre of the node surface, the two radii take the same value, *i.e.* $r_{n,1} = r_{n,2} = r_n$, and the resulting mean curvature is written as $H = 2/r_n$. Therefore, the central area of the node surface can be described by a spherical cap of radius $r_n \approx 2r_{Pb}$, showing how the two principal radii evolve from the node ends to the central area. In order to average this evolution, one can determine the radius of spheres forming a tetrahedral pore whose volume is equal to that of a foam node, $v_n \approx 0.9{r_{Pb}}^3$ as calculated above. The volume of a tetrahedral pore formed by 4 contacting spheres of radius R_{coarse} is given by $v_{tetra} \simeq 0.21{R_{coarse}}^3$,[5] which provides an equivalent coarse sphere radius for foam nodes: $R_{coarse} \approx 1.5r_{Pb}$. Thus, the relationship between Λ and λ reads $\Lambda = 2R_{coarse}/d_p = 1.5/(2/\sqrt{3} - 1)\lambda$ and we plot $\varphi^*_{p,node} \equiv \varphi^*_p(\lambda) = (\varphi^{max}_{bidisperse} - \varphi^*_{bulk})/(1 - \varphi^*_{bulk})$ in Fig. 5. Note that (i) the particular choice of φ^*_{bulk} has no influence on $\varphi^*_{p,node}(\lambda)/\varphi^*_{bulk}$ and (ii) the choice made for the ratio R_{coarse}/r_{Pb} has a very limited influence on $\varphi^*_{p,node}(\lambda)$ within the investigated λ range. Fig. 5 shows that the decrease of the packing fraction of particles confined in a foam node reaches 25% as λ rises up to unity. For practical purposes, the curve $\varphi^*_{p,node}(\lambda)$ can be approximated by the polynomial curve: $\varphi^*_{p,node}(\lambda)/\varphi^*_{bulk} \simeq 1 - \lambda/3 + 0.1\lambda^2$.

Now we turn to the determination of $\varphi^*_{p,Pb}$ for particles confined in Plateau borders. As far as we know, this problem has never been considered in the literature, which justifies the experimental and theoretical elements we develop in the following. We perform a simple packing experiment in a straight solid Plateau border: monodisperse glass beads of diameter $d_p = 1.5$–10 mm are poured in the space between 3 vertical PMMA cylinders in contact of radii $r_{Pb} = 11.5$–40 mm. Bead density is measured and then, from the height and the mass of the beads deposited in this Plateau border geometry, we deduce the particle packing fraction as a function of the confinement parameter λ. In Fig. 6a, the measurements reveal an overall decrease of $\varphi^*_{p,Pb}$ with λ, illustrating the increasing importance of both wall effect – the local density is lower at the wall than in the bulk – and corner effect – the 3 corners of the Plateau border are not accessible to particles. An analytical expression for this decrease can be derived by taking into account these two effects:

$$\varphi^*_{p,Pb} = \frac{\varphi^*_{wall} S_{wall} + \varphi^*_{bulk} S_{bulk}}{S_{Pb}} \quad (3)$$

where $S_{Pb} = \left(\sqrt{3} - \frac{\pi}{2}\right){r_{Pb}}^2$ is the cross-section of the Plateau border and S_{wall} (resp. S_{bulk}) is the area covered by beads packed at φ^*_{wall} (resp. φ^*_{bulk}) as shown in Fig. 6b. The wall effect is approached by considering the ordered configuration, *i.e.* $\frac{\varphi^*_{wall}}{\varphi^*_{bulk}} = \frac{\varphi^*_{plane}}{\varphi^*_{FCC}}$, where $\varphi^*_{plane} = \frac{\pi}{3\sqrt{3}}$ is the maximum volume fraction of a bead monolayer in a triangular lattice between two planes and $\varphi^*_{FCC} = \frac{\pi}{3\sqrt{2}}$ is the volume fraction of a face centered cubic packing. S_{wall}, S_{bulk} and S_{corner} (the corner area that is not accessible to the particles) are derived from simple geometric considerations:

$$\begin{cases} S_{wall} = \left(\frac{\pi}{2} - 3\alpha\right){r_{pb}}^2 \tan^2\alpha + 3\left(\frac{\pi}{2} - \alpha\right){r_p}^2 \\ S_{corner} = 3(\tan\alpha - \alpha){r_{pb}}^2 - 3\left(\frac{\pi}{2} - \alpha\right){r_p}^2 \\ S_{bulk} = S_{Pb} - S_{wall} - S_{corner} \end{cases} \quad (4)$$

where the angle α is shown in Fig. 6b. From these expressions, eqn (3) is plotted in Fig. 6a and it is found to describe well the overall decrease measured for $\varphi^*_{p,Pb}$. Eqn (3) can be approximated by $\varphi^*_{p,Pb}(\lambda)/\varphi^*_{bulk} = 1 - 0.7\lambda + 0.08\lambda^2$.

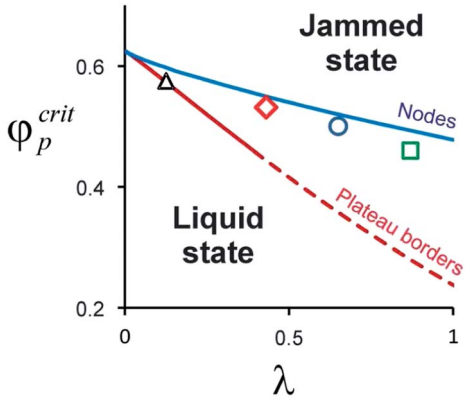


Fig. 7 Critical volume fractions measured for particle suspensions confined in foams (the symbols are the same as those presented in Fig. 4). The lines correspond to packing fractions calculated for nodes and Plateau borders (respectively $\varphi^*_{p,node}(\lambda)$ and $\varphi^*_{p,Pb}(\lambda)$ defined in the text).

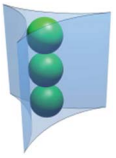
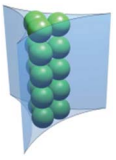
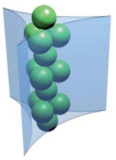
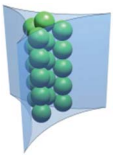
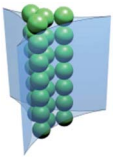
As $\lambda > 0.55$, the experimental data show large fluctuations, due to ordering induced by increasing confinement effects. Several ordered packings – from 1 sphere ($\lambda = 1$) to 4 spheres ($\lambda = 0.530$) in the Plateau border cross-section – have been calculated. They are reported in Fig. 6a and are illustrated in the appendix. One can derive analytically (see the appendix) the transition between two close configurations as illustrated by the lines in Fig. 6a. These results increase our knowledge on sphere packings with geometric constraints such as those obtained for the cylindrical channel geometry.[28]

$\varphi^*_{p,node}$ and $\varphi^*_{p,Pb}$ are plotted in Fig. 7 against the critical particle volume fractions reported from Fig. 4. The experimental data are found to be in good agreement with $\varphi^*_{p,node}$ within the whole range of λ-values. This good agreement is due to the fact that the studied foams are rather wet, *i.e.* most of the suspension is confined in the nodes. This suggests that the geometrical approximation based on bidisperse mixtures of spheres is sufficient to describe this confinement in wet foams. Unfortunately our experimental setup does not allow us to explore the behavior of dry particulate foams at high φ_p, but the relevance of the lower bound, *i.e.* $\varphi^*_{p,Pb}$, certainly deserves a dedicated study.

5. Conclusion

We performed drainage experiments of particulate foams, where a granular suspension is confined within the interstitial pore space of the foam. Under our experimental conditions, the particles are not trapped individually by the constrictions of the network. We observed the jamming transition when the particle volume fraction reaches a critical value φ^*_p that is found to be very sensitive to the particle size. φ^*_p is unexpectedly low due to confinement effects when the particles pack into the geometrical elements of the foam network. We model quantitatively the overall behavior of the suspension – from flow to jamming – by taking into account explicitly the divergence of its effective viscosity at φ^*_p. Our complete study of the geometrical confinement suggests that even lower φ^*_p values could be reached by using dryer foams, for which the proportion of liquid contained in the Plateau borders is significantly raised. Beyond the scope of drainage, the reported jamming transition is expected to have a deep significance for all aspects related to particulate foams: rheology and ripening of liquid foams, and mechanics of cellular solids.

Table 1 Ordered sphere packings in a Plateau border for different confinement ratios illustrated by the star-symbol in Fig. 6a

	λ	$\varphi^*_{p,Pb}$
	$\lambda_1 = 1$	$\varphi^*_1 = \frac{2\pi(2-\sqrt{3})^2}{9\left(\sqrt{3}-\frac{\pi}{2}\right)} \approx 0.311$
	$\lambda_3 = \frac{5\sqrt{3}-6\sqrt{2}}{2-\sqrt{3}} \approx 0.653$	$\varphi^*_3 = \frac{2\pi(5-2\sqrt{6})^2}{\sqrt{3}-\frac{\pi}{2}} \approx 0.398$
	$\lambda_{3'} = \frac{5\sqrt{3}-6\sqrt{2}}{2-\sqrt{3}} \approx 0.653$	$\varphi^*_{3'} = \frac{2\pi\sqrt{6}(5-2\sqrt{6})^2}{3\left(\sqrt{3}-\frac{\pi}{2}\right)} \approx 0.325$
	$\lambda_{3.5} = \frac{\sqrt{3}-\sqrt{2.5}}{2-\sqrt{3}} \approx 0.563$	$\varphi^*_{3.5} = \frac{4\pi(\sqrt{6}-\sqrt{5})^2}{9\left(\sqrt{3}-\frac{\pi}{2}\right)} \approx 0.394$
	$\lambda_4 = \frac{2+\sqrt{3}-2\sqrt{1+\sqrt{3}}}{3(2-\sqrt{3})} \approx 0.530$	$\varphi^*_4 = \frac{8\pi(2-\sqrt{3})^2}{9\left(\sqrt{3}-\frac{\pi}{2}\right)}\lambda_4^2 \approx 0.350$

Appendix

Sphere packings in a Plateau border

Analytical expressions for $\varphi^*_{p,Pb}$ are derived from simple geometrical considerations and they are reported in Table 1. These configurations are represented by the star-symbol in Fig. 6a.

From these particular patterns, we derive the transitions $\varphi^*_{1\to3}$, from 1 particle to 3 particles in a Plateau border cross-section, $\varphi^*_{3'\to3.5}$, from 3 particles to 3.5 particles and $\varphi^*_{3.5\to4}$, from 3.5 to 4 particles ($d_p = 2r_p$):

$$\frac{l}{r_p} = \left(2+\sqrt{3}\right)\lambda^{-1} - \sqrt{1+\left(4\sqrt{3}+6\right)\lambda^{-1}}$$

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

$$\begin{cases} \dfrac{z_1}{r_p} = \sqrt{4 - 3\left(\dfrac{l}{r_p}\right)^2} \\ \varphi^*_{1\to 3} = \dfrac{4\pi(7-4\sqrt{3})}{9\left(\sqrt{3}-\dfrac{\pi}{2}\right)} \dfrac{\lambda^2}{\max\left(\dfrac{z_1}{r_p};\dfrac{2}{3}\right)} \end{cases}$$

$$\begin{cases} \dfrac{z_3}{r_p} = \sqrt{4 - \left(\dfrac{l}{r_p}\right)^2} \\ \varphi^*_{3'\to 3.5} = \dfrac{8\pi(7-4\sqrt{3})}{9\left(\sqrt{3}-\dfrac{\pi}{2}\right)} \dfrac{\lambda^2}{\dfrac{z_3}{r_p}} \end{cases}$$

$$\varphi^*_{3.5\to 4} = \frac{8\pi(7-4\sqrt{3})}{9\left(\sqrt{3}-\dfrac{\pi}{2}\right)}\lambda^2$$

These expressions are illustrated by the fine lines in Fig. 6a.

Acknowledgements

We thank G. Ovarlez and X. Chateau for stimulating discussions, and D. Hautemayou and C. Mézière for technical support. We gratefully acknowledge financial support from Agence Nationale de la Recherche (Grant no. ANR-13-RMNP-0003-01) and French Space Agency (convention CNES/70980).

References

1 A. J. Wilson, in *Springer Series in Applied Biology*, ed. A. W. Robards, Springer, Berlin, 1989, p. 233.
2 R. K. Dhir, M. D. Newlands and A. McCarthy, *Use of Foamed Concretes in Construction*, Thomas Telford, London, 2005.
3 A. R. Studart, U. T. Gonzenbach, E. Tervoort and L. J. Gauckler, *J. Am. Ceram. Soc.*, 2006, **89**, 1771–1789.
4 A. V. Nguyen and H. J. Schulze, *Colloidal Science of Flotation*, Marcel Dekker, New York, 2004.
5 D. Weaire and S. Hutzler, *The Physics of Foams*, Oxford University Press, United Kingdom, 2000; I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Höhler, O. Pitois, F. Rouyer, and A. Saint-Jalmes, *Foams – Structure and Dynamics*, ed. S. Cox, Oxford University Press, United Kingdom, 2013.
6 A. M. Sani and K. K. Mohanty, *Colloids Surf., A*, 2009, **340**, 174–181; R.-M. Guillermic, A. Salonen, J. Emile and A. Saint-Jalmes, *Soft Matter*, 2009, **5**, 4975.
7 A. Britan, M. Liverts, G. Ben-Dor, S. A. Koehler and N. Bennani, *Colloids Surf., A*, 2009, **344**, 15.
8 F. Carn, A. Colin, O. Pitois, M. Vignes-Adler and R. Backov, *Langmuir*, 2009, **25**, 7847; S. Guignot, S. Faure, M. Vignes-Adler and O. Pitois, *Chem. Eng. Sci.*, 2010, **65**, 2579–2585.
9 Y. Khidas, B. Haffner and O. Pitois, to be published (http://arxiv.org/abs/1312.6511).
10 K. Koczo, L. A. Lobo and D. T. Wasan, *J. Colloid Interface Sci.*, 1992, **150**, 492; J. Goyon, F. Bertrand, O. Pitois and G. Ovarlez, *Phys. Rev. Lett.*, 2010, **104**, 128301; A. Salonen, R. Lhermerout, E. Rio, D. Langevin and A. Saint-Jalmes, *Soft Matter*, 2012, **8**, 699–706.
11 N. Louvet, R. Höhler and O. Pitois, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2010, **82**, 041405.
12 A. Liu and S. R. Nagel, *Nature*, 1998, **396**, 21.
13 A. Fall, N. Huang, F. Bertrand, G. Ovarlez and D. Bonn, *Phys. Rev. Lett.*, 2008, **100**, 018301.
14 E. Brown and H. M. Jaeger, *Phys. Rev. Lett.*, 2009, **103**, 086001.
15 K. Yeo and M. R. Maxey, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2010, **81**, 051502.
16 P. Peyla and C. Verdier, *Europhys. Lett.*, 2011, **94**, 44001.
17 S. D. Kulkarni, B. Metzger and J. F. Morris, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2010, **82**, 010402(R).
18 A. M. Gañán-Calvo and J. Gordillo, *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **87**, 274501.
19 D. Weaire, N. Pittet, S. Hutzler and D. Pardal, *Phys. Rev. Lett.*, 1993, **71**, 2670–2673.
20 S. Kim and S. Karrila, *Microhydrodynamics: Principles and Selected Applications*, Butterworth-heinemann, 1989, reprinted, Dover Publications, New York, 2005.
21 F. Rouyer, N. Louvet, C. Fritz and O. Pitois, *SoftMatter*, 2011, **7**, 4812.
22 I. M. Krieger and T. J. Dougherty, *Trans. Soc. Rheol.*, 1959, **3**, 137.
23 F. Mahaut, X. Chateau, P. Coussot and G. Ovarlez, *J. Rheol.*, 2008, **52**, 287–313.
24 T.-S. Vu, G. Ovarlez and X. Chateau, *J. Rheol.*, 2010, **54**, 815–833.
25 R. K. McGeary, *J. Am. Ceram. Soc.*, 1961, **44**, 513–522; D. J. Cumberland and R. J. Crawford, *The Packing of Particles*, Elsevier, 1987.
26 F. de Larrard, *Concrete Mixture Proportioning: A Scientific Approach*, E&FN Spon, London, 1999.
27 B. Bournonville, P. Coussot and X. Chateau, *Rheologie*, 2004, **7**, 1–8.
28 G. T. Pickett, M. Gross and H. Okuyama, *Phys. Rev. Lett.*, 2000, **85**, 3652–3655; A. Mughal, H. K. Chan and D. Weaire, *Phys. Rev. Lett.*, 2011, **106**, 115704.

Soft Matter

PAPER

View Article Online
View Journal | View Issue

CrossMark click for updates

Cite this: *Soft Matter*, 2014, **10**, 6990

Foam clogging

F. Rouyer,[a] B. Haffner,[b] N. Louvet,[c] Y. Khidas[a] and O. Pitois*[b]

Received 4th March 2014
Accepted 25th April 2014

DOI: 10.1039/c4sm00496e

www.rsc.org/softmatter

To what extent are aqueous foams prone to clogging? Foam permeability is measured as a function of particulate loading (trapped hydrophilic particles) under conditions where the particle to bubble size ratio is allowed to increase when the number of particles per bubble is fixed. In addition to experiments performed on the foam scale, we investigated experimentally and numerically the hydrodynamic resistance of a single foam node loaded with one particle. It is shown that, with respect to solid porous media, aqueous foams clog more efficiently due to two reasons: (i) the deformation of interfaces allows for larger particles to be incorporated within the interstitial network and (ii) the interfacial mobility contributes to lowering of the reduced permeability.

Published on 25 April 2014. Downloaded by SCD Université Paris 7 on 11/03/2015 09:10:46.

1. Introduction

Permeability reduction caused by particle deposition in porous media, or clogging, is widely encountered in technological processes of solid extraction from suspensions (deep-bed filtration),[1] as well as in natural aquifers.[2] Clogging, which is intimately related to particle capture, is a complex phenomenon involving a large number of parameters that have been partially decoupled in experiments conducted on model systems, such as beds of solid spheres,[3] sieves[4] or solid channels.[5]

To a certain extent, aqueous foams can be considered as porous media, exhibiting fine liquid channels between gas bubbles. As a strong feature, aqueous foams have the capacity to adjust dynamically their channel size over several orders of magnitude, in response to changes in interstitial liquid flow conditions.[6] Moreover, thanks to the well-known excluded volume mechanism,[1] foam channels can capture particles suspended in the liquid flowing through the gas bubbles without resorting to particle adsorption phenomena. The capture mechanism has been shown to be controlled by the confinement parameter λ that compares the particle size to the size d_C of passage through constrictions in the interstitial network of the foam,[7,8] the latter size being set by bubble size and gas fraction. In the absence of collective trapping, *i.e.*, jamming of the confined concentrated particle suspension,[9] the capture of particles is triggered as soon as $\lambda \gtrsim 1$. In contrast to their solid counterpart, aqueous foams can be loaded with large particles that deform the interstitial network, which suggests strong clogging effects. On the other hand, the high mobility of the bubble surface is known to increase the liquid permeability of aqueous foams significantly.[10] This specific interfacial behaviour is expected to maintain a significant level of liquid permeability through foam channels obstructed with solid particles. Therefore, a simple question arises: to what extent are aqueous foams prone to clogging? Beyond the fundamental aspect of this issue, liquid drainage reduction due to clogging has a beneficial effect on foam stability, which can be of particular interest in the numerous applications of foams.

In the present work, we determine the foam permeability reduction caused by particle loading, under conditions where the particle to bubble size ratio is allowed to increase when one particle is contained in each foam node. The particles are fully wetted by the foaming solution and do not adsorb at the bubble interfaces. In addition to experiments performed on the foam scale, we investigated experimentally and numerically the hydrodynamic resistance of a single foam node loaded with one particle. We will pay particular attention to the effect of the ability of aqueous foams to incorporate particles larger than interstices between bubbles, and to the effect of the significant mobility that characterizes the bubble surface.

2. Single node experiment

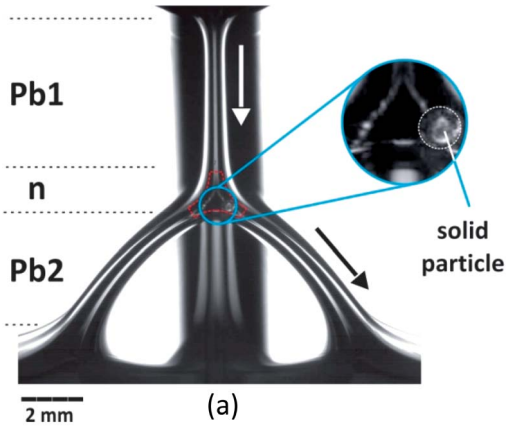
In this experiment, a Plateau border and the three adjoining films are formed on withdrawing a tripod from a reservoir containing the foaming solution. The latter contains 10 g L^{-1} of TetradecylTrimethyl-Ammonium Bromide (TTAB) in distilled water. The density, the surface tension of the liquid–gas interface and the shear viscosity of the bulk are respectively $\rho \simeq 1000$ kg m^{-3}, $\sigma \simeq 38$ mN m^{-1} and $\mu \simeq 1$ mPa s. The height of the resulting Plateau border is approximately 5 mm. The solution can be further delivered through the channel at a controlled flow rate Q when a pressure drop is imposed. A single foam node can be generated by releasing a small gas bubble from the reservoir. Note that more technical details can be found elsewhere.[11,12]

[a]Université Paris Est, Laboratoire Navier, UMR 8205 CNRS – École des Ponts ParisTech – IFSTTAR 5 bd Descartes, 77454 Marne-la-Vallée Cedex 2, France
[b]Université Paris Est, Laboratoire Navier, UMR 8205 CNRS – École des Ponts ParisTech – IFSTTAR cité Descartes, 2 allée Kepler, 77420 Champs-sur-Marne, France. E-mail: olivier.pitois@ifsttar.fr
[c]Université de Lorraine, LEMTA, UMR 7563, Vandoeuvre-lès-Nancy, F-54500, France

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

Published on 25 April 2014. Downloaded by SCD Université Paris 7 on 11/03/2015 09:10:46.

Such a foam node was studied and the corresponding hydrodynamic resistance was measured.[12] Here, we follow the same measurement procedure except that a small glass particle is introduced in the node (see Fig. 1a) before measuring the pressure ΔP required for imposing the liquid flow rate through the system. ΔP results from the association in series of the upper Plateau border (Pb1), the node (n), and the three lower Plateau borders (Pb2), themselves in parallel association: $\Delta P = \Delta P_1 + \Delta P_n + \Delta P_2$. ΔP_1 and ΔP_2 are determined from the geometry of the corresponding Plateau borders, as detailed in ref. 12 and ΔP_n is deduced. We define the dimensionless resistance: $\tilde{R}_n = (r_{Pb}{}^3/\mu)(\Delta P_n/Q)$, where r_{Pb} is the radius of curvature that characterizes the Plateau borders connected to the node (see also Fig. 3). Here, $r_{Pb} \approx 1.2$ mm. The main experimental error on $\tilde{R}_n$ is due to the strong contribution of ΔP_1 to ΔP, whose absolute error impacts directly ΔP_n. In order to minimize this effect, we restrain our study to situations where the upper Plateau border (Pb1) is not deformed by the particle, *i.e.*, $\lambda \leq 2$ (two particle diameters were considered: 480 and 650 μm). In the following, we will refer to the reduced resistance parameter, obtained by dividing the dimensionless resistance of a loaded node $\tilde{R}_n(\lambda)$ by the one corresponding to the empty node $\tilde{R}_{n0}$.



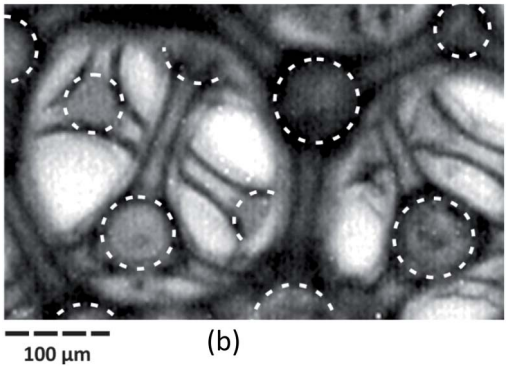


Fig. 1 (a) Image of the node (the interior is delimited by the red dashed line) and the four Plateau borders studied in the so-called "single node experiment". The node contains one solid spherical bead of diameter 480 μm located against one of the three outlets. Arrows show the direction of the liquid flow. The measurement of the pressure required to impose a given liquid flow rate allows for the node hydrodynamic resistance to be determined (see ref. 12 for more details about the experimental procedure). (b) Illustration of particle-laden foams (D_b = 560 μm, d_p = 80 μm). Note that in order to view inside the sample, the foam has partially drained.

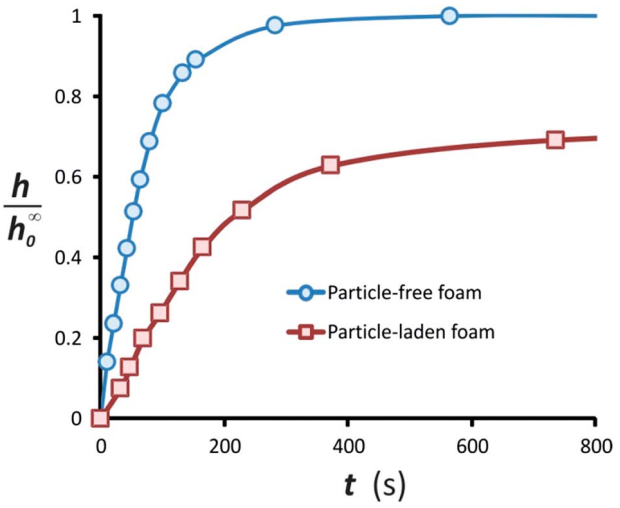


Fig. 2 Temporal evolution of the reduced height of liquid drained out of the foam for particle-free (D_b = 510 μm, ϕ = 0.9), and particle-laden foams (D_b = 510 μm, ϕ = 0.9, d_p = 80 μm, φ_p = 0.2). $h_0{}^\infty$ is the equilibrium value of $h(t)$ for the particle-free curve.

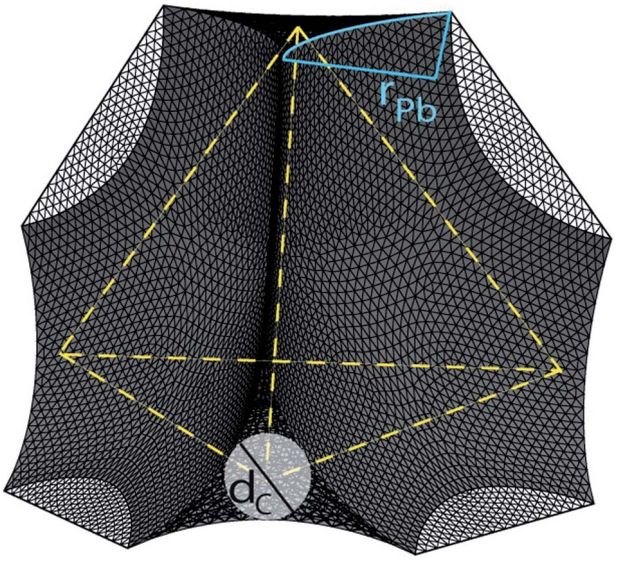


Fig. 3 Geometry of a foam node simulated by Surface Evolver.

3. Experiments at the foam scale

3.1. Preparation of particle-laden foams

Samples are prepared from precursor liquid foam, which is subsequently mixed with a granular suspension as previously presented in ref. 9. In a T-junction, nitrogen and foaming solution (TTAB 10 g L^{-1}, glycerol, water) are mixed and thanks to the flow focusing mechanism, a foam with bubble diameter D_b is made in a vertical column. In the present study, the bubble size has been varied within the range 450–800 μm. For each sample, the relative deviation in bubble size is lower than 10%.

Published on 25 April 2014. Downloaded by SCD Université Paris 7 on 11/03/2015 09:10:46.

Liquid imbibition from the top of the column allows maintenance of the liquid fraction at a constant value throughout the foam sample during the foam production. The foam is then pushed toward a T-junction where a suspension of monodisperse polystyrene beads (diameter $d_p = 80$ μm or $d_p = 140$ μm) is injected. The liquid phase is the same for the foam and for the suspension; its density matches with that of polystyrene ($\rho = 1050$ kg m^{-3}) by adjusting the proportion of glycerol (20% w/w) and its bulk viscosity is $\mu \simeq 1.7$ mPa s. In the foaming solution, those particles behave as fully hydrophilic particles and they do not adsorb at bubble interfaces. The resulting gas and particle fractions, respectively ϕ and ϕ_p, are set by the liquid fractions and the flow rates of injected foam and suspension. In the following, the gas fraction is set to $\phi = 0.9$. This corresponds to wet foams in which the interstitial volume is mainly occupied by the nodes. The particle volume fraction in the interstitial suspension is $\varphi_p = \phi_p/(1-\phi)$. Our method has been found to produce homogeneous samples, characterized by well-distributed particles and bubbles, the size of the latter being preserved during the mixing step (an illustration of samples' quality is presented in Fig. 1b). The laden foam is then continuously introduced in a rotating horizontal column used to compensate the effects of drainage during the preparation of the sample.

In this paper, we focus on situations where the number of particles is equal to the number of foam nodes, *i.e.*, one particle per node. This condition is fulfilled if $\varphi_p \equiv \varphi_{p,1} = 6\phi {d_p}^3/(1-\phi) {D_b}^3$ (6 nodes per bubble were considered). As it is more appropriate to compare the size of the particles to the one that characterizes the foam channel network, we introduce the confinement parameter $\lambda = d_p/d_c = C(\phi) d_p/D_b$ where d_c is the size of passage through the network constrictions and $C(\phi) = (1 + 0.57(1-\phi)^{0.27})/(0.27\sqrt{(1-\phi)} + 3.17(1-\phi)^{2.75})$.[7] Thus:

$$\varphi_{p,1} = \frac{6\phi}{(1-\phi)} \left(\frac{C(\phi)}{\lambda} \right)^{-3} \quad (1)$$

For $\phi = 0.9$, eqn (1) reduces to $\varphi_{p,1} \simeq 0.018\lambda^3$. We investigate the effects of particle loading in foams within the λ-range 1.6–2.5 by changing the bubble size, keeping the particle size as well as the gas fraction constant (except for one sample for which $d_p = 140$ μm was used). The lower value is set by the particle retention properties of the foam. Indeed, it has been shown that for $\lambda \gtrsim 1.6$, particles are definitely trapped by the foam column, whereas particle retention is not complete for smaller values.[8] For $\lambda = 2.5$, the required particle volume fraction, as set by eqn (1), rises up to almost 0.3. Going above this value would raise two issues: (i) the jamming of the particles could superimpose on the clogging issue we are looking for and (ii) difficulties are encountered with the present experimental setup to achieve high φ_p values at relatively high λ values.

3.2. Permeability measurements

Once the column is filled with the foamy suspension, it is turned to the vertical direction and the measurement of the free-drainage velocity starts. Note that with the present procedure, the starting point is a foam column with a uniform gas fraction. Drainage is followed through the height $h(t)$ corresponding to the volume of liquid drained off at the bottom of the column (note that during the measurements we have checked that the particles were actually trapped inside the foam column and that only the suspending liquid was released at the bottom). Such a measurement is plotted in Fig. 2 for particle-free and particle-laden foams, showing a first stage characterized by a rapid linear increase of $h(t)$ followed by a slower evolution towards the equilibrium value. During the first regime, the volume of liquid draining out of the foam flows through foam areas that are not yet reached by the drainage front, *i.e.*, areas where the gas fraction remains constant and equal to the initial value, $\phi = 0.9$. This is also true for the particle volume fraction $\varphi_{p,1}$ and for λ. In this regime, the drainage velocity $V = \mathrm{d}h/\mathrm{d}t$ identifies to the Darcy velocity, *i.e.*, $V = k\rho g/\mu$, where k is the foam permeability.[6,10,13] In the following, we refer to the reduced foam permeability, *i.e.*, $\tilde{k} = k(\varphi_{p,1})/k_0$, where k_0 is the permeability of the particle-free foam having the same parameters (ϕ, D_b) as the particle-laden foam.

4. Numerical simulations

4.1. Geometry of loaded and particle-free nodes

The interstitial volume of foams is composed of liquid channels, the so-called Plateau borders, and their junctions (nodes). The Plateau borders are formed by the merging of foam films when they intersect symmetrically three by three, and their cross-section is bound by three tangentially connected circular arcs of radius r_{Pb} and angle $\pi/3$. Nodes are formed when four Plateau borders join symmetrically at the centre of a tetrahedron, as depicted in Fig. 3. The complex geometry of nodes results from capillary law: the curvature of interfaces is imposed by the liquid–gas pressures according to the Young–Laplace equation. The precise shape of the node can be conveniently simulated using the Surface Evolver software,[14] which is based on the principle that the equilibrium foam structure is such that its interfacial energy density is minimal. For the present study, we simulate a network element, *i.e.*, a node connected to its four Plateau borders, representative of wet foams (see Fig. 3). As already said, in such conditions, the volume fraction of the Plateau borders is small compared to the volume fraction of nodes. Described in terms of length, the Plateau borders represent approximately 10% of the node-to-node distance in the foam network.[13]

The solid particle is modelled by inserting within the node a body with a surface tension equal to 30 times the surface tension of the liquid–air interface (see Fig. 4). Its volume is fixed to $v_p = \pi {d_p}^3/6$. In order to simulate the foam experiment performed at fixed gas fraction, the complete volume of the loaded element, v_i, is kept constant. Thus, the particle volume fraction $\varphi_p = v_p/v_i$ increases as the particle size increases.

The confinement parameter defined above writes $\lambda = d_p/[(2/\sqrt{3} - 1) r_{Pb}]$. Note that, in the following, r_{Pb} refers to the geometry of the particle-free element. We simulate geometries for λ within the range 1.2–2.7. For small λ values, the node geometry is not deformed by the particle, and the latter can be

 This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

Published on 25 April 2014. Downloaded by SCD Université Paris 7 on 11/03/2015 09:10:46.

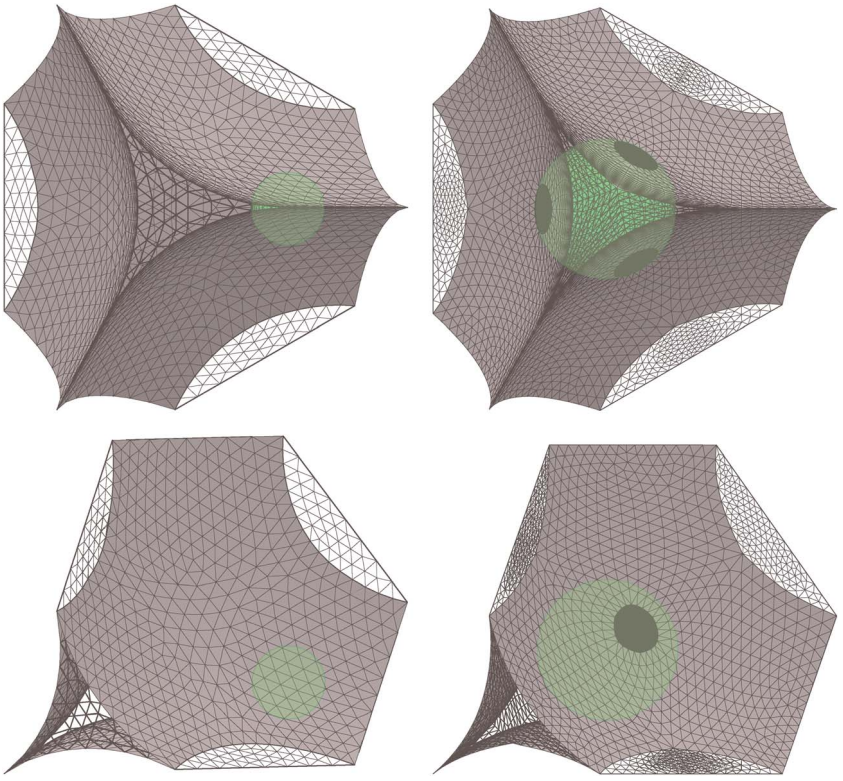


Fig. 4 Top and front views of particle-loaded nodes simulated by Surface Evolver: (left) $\lambda = 1.20$ and (right) $\lambda = 2.30$.

positioned at several places within the interstitial volume (see Fig. 4, left). In contrast, for larger λ values, the particle position becomes imposed at the center of the geometry thanks to the capillary forces induced by interface deformations (see Fig. 4, right). This transition between non-deformed and deformed geometries has been found to occur at $\lambda \simeq 2$.

4.2. Simulation of the liquid flow in nodes

The geometries obtained by using the Surface Evolver software are imported in Comsol Multiphysics. Further meshing procedures were applied ('auto' extra-fine mesh was used and the growth rate was imposed to be equal to 1.1 at the liquid interface and 1.02 at the edges) in order to obtain geometries suitable for the simulation of liquid flow. As the real size of the geometries is of the order of 10^{-4} m, the liquid velocity is of the order of 10^{-3} m s^{-1} and its density $\rho = 1000$ kg m^{-3}, the Reynolds number is of the order of 10^{-1}. Therefore, Stokes equations are solved for real dimensions of the geometries and for Newtonian fluid dynamical shear viscosity $\mu = 1$ mPa s (note that calculations have shown insignificant deviations for results obtained from Navier–Stokes and Stokes equations). The interface in foam is known to be characterized by a certain degree of mobility,[13] resulting in complex interfacial flows driven by the viscous drag from the bulk flow as well as stresses induced by surfactant exchanges with the bulk. In the absence of the complete description of these couplings for the foam channels, a pragmatic approach is to describe the behavior of this interface using an effective surface parameter. In a pioneering paper, Leonard and Lemlich[15] introduced the surface shear viscosity μ_s. Within the last decade, μ_s was found to be useful to describe the drainage behavior of foams, at least in a semi-quantitative way,[16] keeping in mind that this parameter should be considered as an effective surface parameter. Here, as we are interested to understand the global effect of interfacial mobility on clogging, we consider the most simple interfacial behavior, *i.e.*, a Newtonian incompressible interface with a surface stress tensor $\mathbf{T}^s = \sigma\mathbf{I}^s + 2\mu_s\mathbf{D}^s$, where $2\mathbf{D}^s$ is the surface rate of deformation tensor and $\mathbf{I}^s$ is the tensor that projects any vector onto the surface. According to this surface behavior, the bulk viscous shear stress is balanced by the surface shear viscous stress at the liquid interface. The boundary condition at the solid interface of the bead is zero velocity. Finally, it is assumed that liquid velocity vanishes at the junctions of liquid surfaces (edges). Note that the deformation of the geometry caused by the liquid flow is not considered in the present work, *i.e.*, the geometry is fixed. The viscous pressure and the restoring capillary pressure are respectively of the order of $\rho g r_{Pb}$ (the liquid flow is induced by the gravity) and σ/r_{Pb}. Using values corresponding to our experimental conditions, the ratio $\rho g {r_{Pb}}^2/\sigma$ is of the order of 0.01, which indicates that the effects of interface deformation caused by the liquid flow are not significant, which justifies the present numerical approach. The partial derivative equations of vector velocity $\vec{v}$ write:

$$\text{(in the liquid) } \Delta\vec{v} = \frac{1}{\mu}\vec{\nabla}p \tag{2a}$$

$$\text{(at the liquid interface) } \mu(\vec{n}\cdot\vec{\nabla})\vec{v} = \mu_S\Delta_S\vec{v} \tag{2b}$$

Published on 25 April 2014. Downloaded by SCD Université Paris 7 on 11/03/2015 09:10:46.

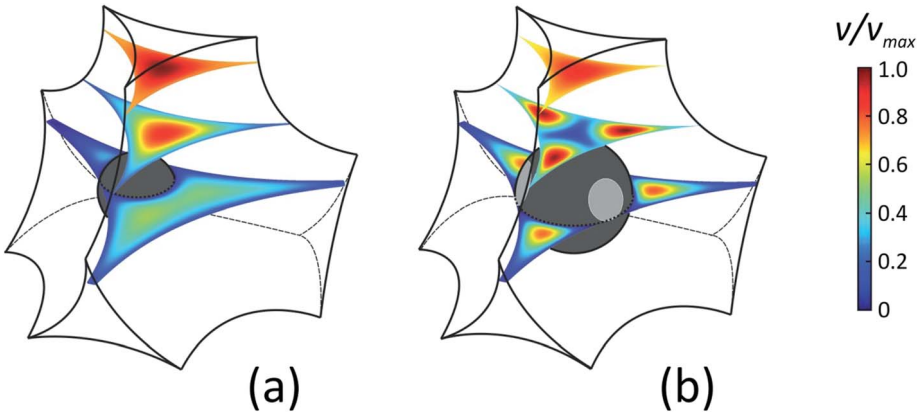


Fig. 5 Comsol Multiphysics calculations of flows through particle-loaded nodes with $\mu_s = 10^{-5}$ kg s^{-1} and Bq = 20: (a) $\lambda = 1.57$, $v_{max} = 0.875$ mm s^{-1}; (b) $\lambda = 2.30$, $v_{max} = 0.308$ mm s^{-1}.

$$\text{(at the solid interface and at liquid edges) } \vec{v} = \vec{0} \qquad (2c)$$

where p is the liquid pressure (for stationary drainage conditions, the pressure gradient corresponds to the gravitational force), Δ_s is the surface Laplacian and $\vec{n}$ is the unity vector normal to the surface pointing out of the geometry. The Boussinesq number compares the surface viscous stress to the bulk viscous stress: $\mathrm{Bq} = \mu_s/\mu r_{Pb}$. For simulations, μ_s is varied from 10^{-8} up to 10^{-2} kg s^{-1} and, as the size r_{Pb} has been set to 0.581 mm, Bq is varied within the range from 2×10^{-1} to 2×10^{4}. Typical flow simulations are illustrated in Fig. 5.

The hydrodynamic resistance of the node, $R_n = \Delta P/Q$, is determined when a pressure difference ΔP is imposed between the node ends. The liquid flow rate Q is calculated by integrating the flow through the cross-sectional area of the node ends. Several configurations are studied: (1-3) 1 inlet and 3 outlets, (2-2) 2 inlets and 2 outlets and (3-1) 3 inlets and 1 outlet. Moreover, in situations where the particle has several possible positions, *i.e.*, when $\lambda < 2$, we always consider configurations where the particle is against an outlet. The normalized resistance is $\tilde{R}_n = (r_{Pb}{}^3/\mu)\Delta P/Q$. In the following, we will also refer to the reduced resistance: $\tilde{R}_n/\tilde{R}_{n0}$, where $\tilde{R}_{n0}$ is the resistance of the particle-free geometry.

5. Results and discussion

We start with numerical results presented in Fig. 6. The effect of Bq on the node resistance is illustrated in Fig. 6a for the particle-free node ($\tilde{R}_{n0}$) in configuration 1-3, *i.e.*, one inlet and three outlets, as well as a loaded node ($\tilde{R}_n$) in configuration 1-3 with $\lambda = 2$. In both cases, the resistance is an increasing function of Bq, and as expected, the resistance of the loaded node is larger than the corresponding particle-free node. This behavior has been observed for all the studied geometries and configurations. Note that most of the resistance increase is observed within the Bq range 1–1000. In Fig 6b, the reduced resistance $\tilde{R}_n/\tilde{R}_{n0}$ is plotted as a function of Bq for several λ values in the range $2 < \lambda < 2.7$, *i.e.*, which corresponds to situations where the node surface is deformed by the particle, the latter being centered with respect to the node geometry. $\tilde{R}_n/\tilde{R}_{n0}$ curves are decreasing functions of Bq due to the fact that the relative increase of $\tilde{R}_{n0}$(Bq) is greater than the relative increase of $\tilde{R}_n$(Bq). The effect of Bq is all the more pronounces that λ is high. Calculations (not presented in Fig. 6b) for configurations 2-2 and 3-1 have shown that the flow configuration has a very weak influence on $\tilde{R}_n/\tilde{R}_{n0}$ when the particle is centered. Fig. 6c shows a similar plot for $\lambda < 2$. We have reported results for both 1-3 and 3-1 configurations (calculations for the 2-2 configuration – not reported in the figure – have provided values very close to the 1-3 configuration). Again, $\tilde{R}_n/\tilde{R}_{n0}$ curves are decreasing functions of Bq. As expected, within this λ range ($\lambda < 2$), the effect of the flow configuration is very pronounced: in the 1-3 configuration, the particle clogs only one of the three outlets, so that the fluid flows through the two other free-outlets, whereas in the 3-1 configuration the unique outlet is clogged. We now focus on the 1-3 configuration, which is also the one corresponding to the single node experiment. In Fig. 7, the reduced resistance is plotted against λ for $\lambda < 2$. Numerical results are presented for several Bq values. Experimental data obtained from the single node experiment are also reported for comparison. The latter are in reasonable agreement with numerical $\tilde{R}_n/\tilde{R}_{n0}$ values calculated for Bq = 10 and Bq = 100, whereas those calculated for Bq = 1 and Bq = 1000 deviate more from experimental data. In order to say more about the relevant range of Bq values for comparison with experiments, data corresponding to the measured dimensionless resistance of the particle-free node[12] are reported in Fig. 6a. This shows that experimental values are consistent with numerical resistances calculated with Bq values within the range 10–100. Therefore, for both particle-free and loaded nodes, the relevant Bq range has to be set between 10 and 100. The corresponding values for μ_s are respectively 6×10^{-6} and 60×10^{-6} kg s^{-1}. Note that r_{Pb} values are respectively 0.6 and 1.2 mm for the numerical and experimental nodes so that a variation of μ_s by a factor of 2 is expected between the two systems for a given Bq value. Obviously, this variation is contained within the bounds defined by Bq = 10 and Bq = 100. These values are at least two orders of

 This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

Published on 25 April 2014. Downloaded by SCD Université Paris 7 on 11/03/2015 09:10:46.

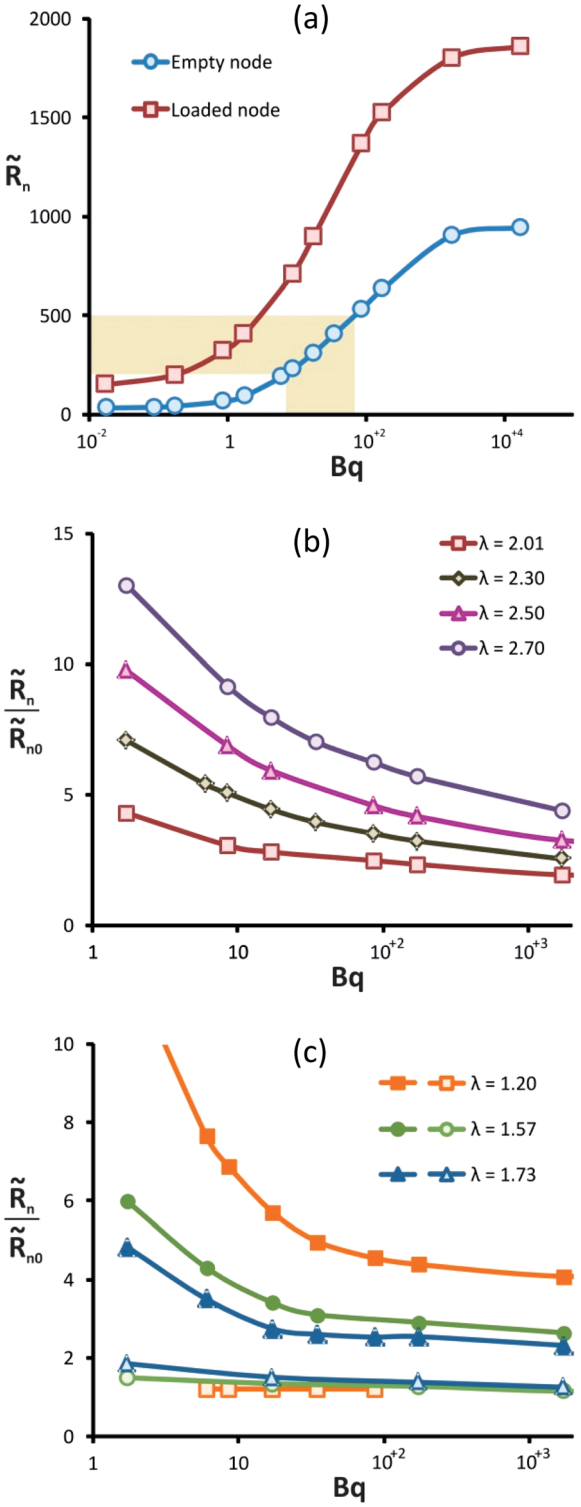


Fig. 6 Hydrodynamic resistances of particle-free and loaded geometries obtained numerically when fluid enters the node by one inlet and leaves by three outlets (1-3 configuration). (a) Dimensionless resistance as a function of the Boussinesq number. The loaded node corresponds to $\lambda = 2.01$. The shaded area highlights the resistances of particle-free nodes obtained from the "single node experiment"[12] as well as the corresponding range of Boussinesq numbers. (b) Reduced resistances of loaded nodes (the resistance is divided by the one corresponding to the particle-free node) as a function of the Boussinesq number for several values of λ in the range $\lambda > 2$, *i.e.* the particle is centered and deforms the node surface. (c) Reduced resistances of loaded nodes as a function of the Boussinesq number for several values of λ in the range $\lambda < 2$. As the particle is small enough to have several positions, we present results obtained for the two relevant positions: 3-1 configuration (filled symbols), *i.e.* the particle is against the outlet; 1-3 configuration (open symbols), *i.e.* the particle is against one of the three outlets.

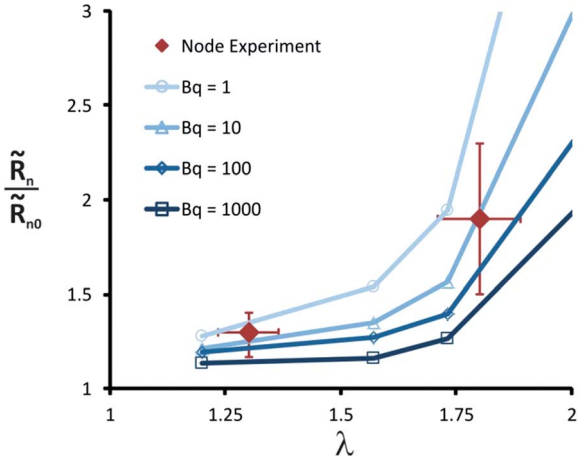


Fig. 7 Numerical hydrodynamic resistances of loaded geometries compared to data provided by the "single node experiment" as a function of λ. Within that range of λ values, the node surfaces are not deformed. The numerical calculations correspond to the experimental situation, *i.e.* 1-3 configuration, where fluid enters the node by one inlet and leaves by three outlets and the particle is against one of the three outlets. Several Boussinesq values are considered.

magnitude larger than those generally accepted for Plateau borders geometries.[16] As already pointed out,[17] μ_s should be thought in terms of an effective parameter for the surface mobility, accounting for the effects of all dissipation mechanisms. Therefore, this deviation between μ_s values obtained in the present work for nodes and those published for Plateau borders[11,18] should be attributed to the different flow conditions imposed at the surface of these two geometries. Indeed, the node surface is the place for significant adsorption–desorption phenomena regulating the flows of surfactants convected by the four connected Plateau borders,[19] and this is expected to reduce the global surface mobility through contributions associated with the surface dilatation viscosity and with the surface elasticity. Although considering μ_s as an adaptive parameter is not fully satisfactory from the fundamental point of view, this approach offers a convenient way to tune the global interfacial mobility using a single surface parameter. Having identified the appropriate range of μ_s values to be used in the numerical simulation, we now turn to the results provided by the foam experiment. The size r_{Pb} in the studied foam is 4 to 6 times smaller than r_{Pb} used in the simulation. Although this variation should be accounted for when comparing experimental data to calculations, as already mentioned, the expected effect is contained within the bounds defined by Bq = 10 and Bq = 100.

The results for the reduced permeability of particle-laden foams are presented in Fig. 8. $\tilde{k}$ decreases as a function of $\varphi_{p,1}$

Published on 25 April 2014. Downloaded by SCD Université Paris 7 on 11/03/2015 09:10:46.

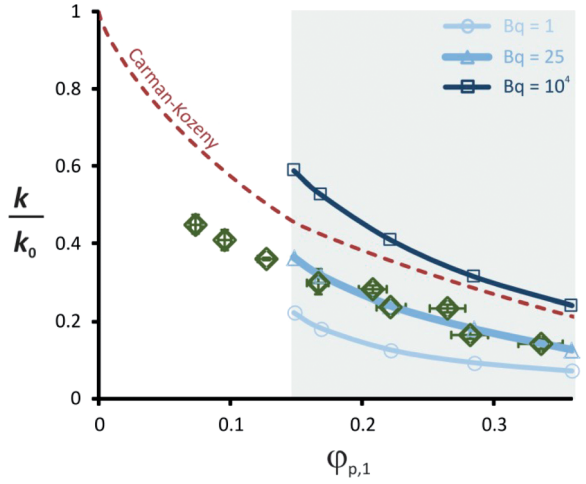


Fig. 8 Experimental results for the reduced permeability of particle-laden foams as a function of the particle volume fraction. In the present loading configuration, each foam node is filled with one particle. Eqn (3) is plotted for comparison as well as numerical results obtained for Bq = 10^4, Bq = 25 and Bq = 1000 for $\lambda > 2$ (shaded area). Interfacial mobility of foams intensifies the effect of particle loading on clogging.

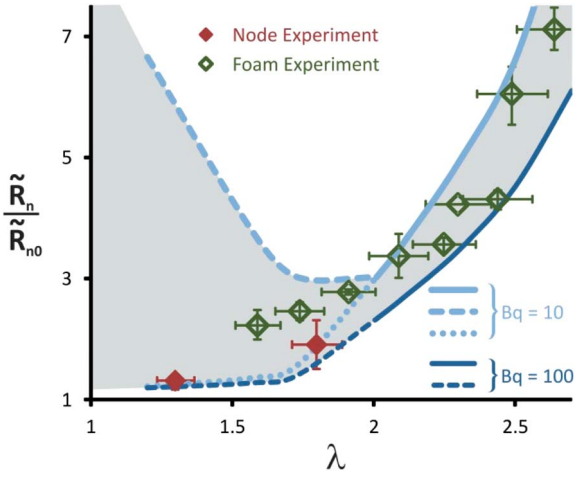


Fig. 9 Numerical hydrodynamic resistances of loaded geometries compared to experimental data (single node and foam experiments) as a function of λ. Numerical results are presented for two Boussinesq numbers and two flow configurations. Bq = 10: $\lambda < 2$ and 3-1 configuration (dashed line), $\lambda < 2$ and 1-3 configuration (dotted line), $\lambda > 2$ (continuous line). Bq = 100: $\lambda < 2$ and 1-3 configuration (dashed line), $\lambda > 2$ (continuous line).

(we recall that $\varphi_{p,1}$ is the particle volume fraction corresponding to one particle per foam node). This behavior due to particle loading is usually observed for solid porous media, such as filters for example. We will try to quantify the observed decrease for loaded foams with respect to their solid counterpart. First of all, we compare the experimental data to numerical results. As each foam node is loaded with one particle, the inverse of the reduced foam permeability, *i.e.*, $k_0/k(\varphi_{p,1})$, is equal to the reduced node resistance $\tilde{R}_n/\tilde{R}_{n0}$. The comparison is presented in Fig. 9 as a function of λ. The agreement is reasonable using, for $\lambda < 2$, the numerical values for the 3-1 configuration at Bq = 10 (upper bound) and the 1-3 configuration at Bq = 100 (lower bound). The whole set of data shows that the reduced node resistance increases up to 7 as λ is close to 2.7. Whereas $\tilde{R}_n/\tilde{R}_{n0}$ values corresponding to the node experiment are consistent with numerical values for the 1-3 configuration, values obtained from the foam experiment are between those for the 1-3 and the 3-1 configurations, which accounts for the averaging effect induced in the foam network (we recall that results for the 2-2 configuration are very close to those of the 1-3 configuration). At this stage, we have no rigorous way to calculate the average values from numerical data obtained with 1-3 and the 3-1 configurations, but in considering both upper and lower bounds of Fig. 9, experimental data could be described by a contribution of 50% for each value. In order to carry on the comparison with the results, we report in Fig. 8 numerical data obtained for $\lambda > 2$ (for which configurations 1-3, 2-2 and 3-1 are equivalent) for several values of Bq. Bq = 25 is used to fit experimental results, Bq = 1 is used to show the limit of very mobile interfaces, and Bq = 10^4 is used to show the limit of non-mobile interfaces. We also resort to the Carman–Kozeny model[20] to estimate the permeability decrease. It is based on the specific surface area A_s, *i.e.*, the surface area in contact with the fluid divided by the volume v_t of the porous medium. In foam, $v_t = v_{gas}/\phi$, and when considering one foam bubble of diameter D_b surrounded by the corresponding volume fraction of liquid: $v_t = s_0 D_b/6\phi$, where $s_0 = \pi {D_b}^2$. The specific surface area of the particle-free foam has been estimated to be $A_{s,foam} = 3.88/D_b$ for $\phi = 0.9$.[21] The additional specific surface area of the particles is $(6\phi/D_b)S_p/s_0$, where S_p is the surface area of the particles. As there are 6 nodes per foam bubble[13] and 1 particle per node for the present study, $S_p/s_0 = 6{d_p}^2/{D_b}^2$. When $\lambda > 2$, the node surface is deformed by the particle, as shown in Fig. 10b, and $A_{s,foam}$ is consequently modified. This evolution is determined from the Surface Evolver calculations and it is formulated in terms of a shape factor $\mathcal{F}_n(\lambda)$, which is the ratio between deformed and non-deformed node surface areas: $A_{s,foam}(\lambda) = 3.88\mathcal{F}_n(\lambda)/D_b$. Moreover, four contacts form between the particle and the node surface and the corresponding surface area from Surface Evolver can be written: $S_p\mathcal{F}_f(\lambda)$. Their negative contribution to the global specific surface area is $-2\mathcal{F}_f(\lambda)(6\phi/D_b)6{d_p}^2/{D_b}^2$. The evolution of the two shape factors ($\mathcal{F}_n$ and $\mathcal{F}_f$) is plotted in Fig. 10a as a function of λ. Then, according to the Carman–Kozeny model, the permeability of the loaded foam is $k = [(1-\phi)(1-\varphi_{p,1})]^3/C_{CK}{A_s}^2$, where the Carman–Kozeny constant C_{CK} has been shown to be equal to 5 for foams.[21] Finally, the dependence of the foam permeability on the particle volume fraction $\varphi_{p,1}$ reads:

$$\frac{k}{{D_b}^2} = \frac{(1-\phi)^3(1-\varphi_{p,1})^3}{C_{CK}\left[3.88\mathcal{F}_n + (1-2\mathcal{F}_f)\left(6^4\phi(1-\phi)^2{\varphi_{p,1}}^2\right)^{1/3}\right]^2} \quad (3)$$

Eqn (3) is plotted in Fig. 9. For $\lambda > 2$ (equivalently $\varphi_{p,1} \gtrsim 0.15$), the Carman–Kozeny model is close to the numerical values obtained for Bq = 10^4. Both curves describe the

 This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

Published on 25 April 2014. Downloaded by SCD Université Paris 7 on 11/03/2015 09:10:46.

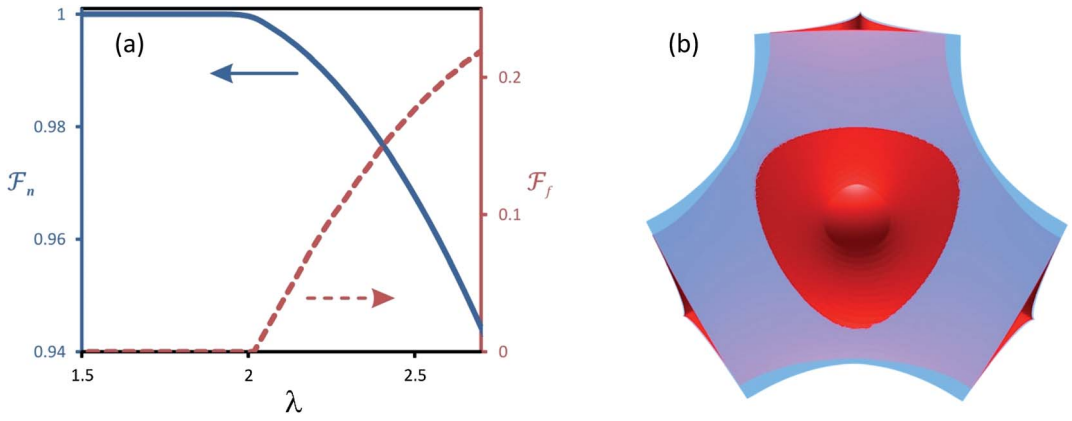


Fig. 10 Surface Evolver calculations for the deformed node geometries: (a) λ-dependence of both the reduced node surface area ($\mathcal{F}_n$) and the reduced contact area between the particle and the node surface ($\mathcal{F}_f$). (b) For $\lambda = 2.7$, superposition of the deformed (red) and non-deformed (blue) node surfaces.

permeability reduction for foams with non-mobile interfaces. Note that the Carman–Kozeny curve is above experimental data within the full range of investigated λ values. This clearly shows that the interfacial mobility in foams emphasizes the effect of particle loading.

6. Conclusion

The reduction of permeability as a function of the particle to bubble size ratio has been investigated for foams loaded at a rate of one hydrophilic particle per foam node. Both experimental and numerical results provide a good understanding of the mechanisms that set the permeability of such particle-laden foams. With respect to solid porous media, aqueous foams clog more efficiently due to two reasons: (i) the deformation of interfaces allows for larger particles to be incorporated within the interstitial network and (ii) the mobility contrast between bubble interfaces and particle surfaces contributes to lowering of the reduced permeability. As an extension to this first work, further experiments could be performed on foams with less mobile interfaces and/or other particulate loading configurations. Besides, the numerical study on the node geometry has highlighted a discrepancy with previous surface shear viscosity values obtained for Plateau border studies. Beyond the foam clogging issue, this point certainly deserves a dedicated study.

Acknowledgements

We thank D. Hautemayou and C. Mézière for technical support. We are sincerely grateful to Simon Cox for help in first steps with Surface Evolver. We gratefully acknowledge financial support from Agence Nationale de la Recherche (Grant no. ANR-13-RMNP-0003-01) and French Space Agency (convention CNES/70980).

References

1 C. Tien, *Granular Filtration of Aerosols and Hydrosols*, Butterworths, Boston, 1989; L. J. Zeman and A. L. Zydney, *Microfiltration and Ultrafiltration: Principles and Applications*, Marcel Dekker, New York, 1996.
2 L. M. McDowell-Boyer, J. R. Hunt and N. Sitar, *Water Resour. Res.*, 1986, **22**, 1901–1921.
3 C. Ghidaglia, L. de Arcangelis, J. Hinch and E. Guazzelli, *Phys. Rev. E: Stat. Phys., Plasmas, Fluids, Relat. Interdiscip. Top.*, 1996, **53**, R3028.
4 N. Roussel, T. Lien Huong Nguyen and P. Coussot, *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **98**, 114502.
5 H. M. Wyss, D. L. Blair, J. F. Morris, H. A. Stone and D. A. Weitz, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2006, **74**, 061402; K. V. Sharp and R. J. Adrian, *Microfluid. Nanofluid.*, 2005, **1**, 376.
6 S. A. Koehler, S. Hilgenfeldt and H. A. Stone, *Langmuir*, 2000, **16**, 6327.
7 N. Louvet, R. Höhler and O. Pitois, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2010, **82**, 041405.
8 Y. Khidas, B. Haffner and O. Pitois, *Soft Matter*, 2014, DOI: 10.1039/c4sm00246f.
9 B. Haffner, Y. Khidas and O. Pitois, *Soft Matter*, 2014, **10**, 3277.
10 E. Lorenceau, N. Louvet, F. Rouyer and O. Pitois, *Eur. Phys. J. E: Soft Matter Biol. Phys.*, 2009, **28**, 293–304.
11 O. Pitois, C. Fritz and M. Vignes-Adler, *J. Colloid Interface Sci.*, 2005, **282**, 458–465.
12 O. Pitois, N. Louvet, E. Lorenceau and F. Rouyer, *J. Colloid Interface Sci.*, 2008, **322**, 675–77.
13 D. Weaire and S. Hutzler, *The physics of foams*, Oxford University Press, United Kingdom, 2000; I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Höhler, O. Pitois, F. Rouyer and A. Saint-Jalmes, *Foams – Structure and Dynamics*, ed. S. Cox, Oxford University Press, United Kingdom, 2013.
14 K. Brakke, *Exp. Math*, 1992, **1**, 141.
15 R. A. Leonard and R. Lemlich, *AIChE J.*, 1965, **11**, 18–25; R. A. Leonard and R. Lemlich, *AIChE J.*, 1965, **11**, 25–29.
16 S. Cohen-Addad, R. Höhler and O. Pitois, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 2013, **45**, 241–267.

17 P. Stevenson, *J. Colloid Interface Sci.*, 2005, **290**, 603–610.
18 S. A. Koehler, S. Hilgenfeldt, E. R. Weeks and H. A. Stone, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2002, **66**, 040601; W. Drenckhan, H. Ritacco, A. Saint-Jalmes, A. Saugey, P. McGuinness, A. van der Net, D. Langevin and D. Weaire, *Phys. Fluids*, 2007, **19**, 102101.
19 O. Pitois, N. Louvet and F. Rouyer, *Eur. Phys. J. E: Soft Matter Biol. Phys.*, 2009, **30**, 27–35.
20 J. Kozeny, *Sitzungsber. Akad. Wiss. Wien, Math.-Naturwiss. Kl., Abt. 2A*, 1927, **136**, 271; P. C. Carman, *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 1937, **15**, 150.
21 O. Pitois, E. Lorenceau, N. Louvet and F. Rouyer, *Langmuir*, 2009, **25**, 97–100.

Published on 25 April 2014. Downloaded by SCD Université Paris 7 on 11/03/2015 09:10:46.

This journal is © The Royal Society of Chemistry 2014

Journal of Colloid and Interface Science 458 (2015) 200–208

Contents lists available at ScienceDirect

Journal of Colloid and Interface Science

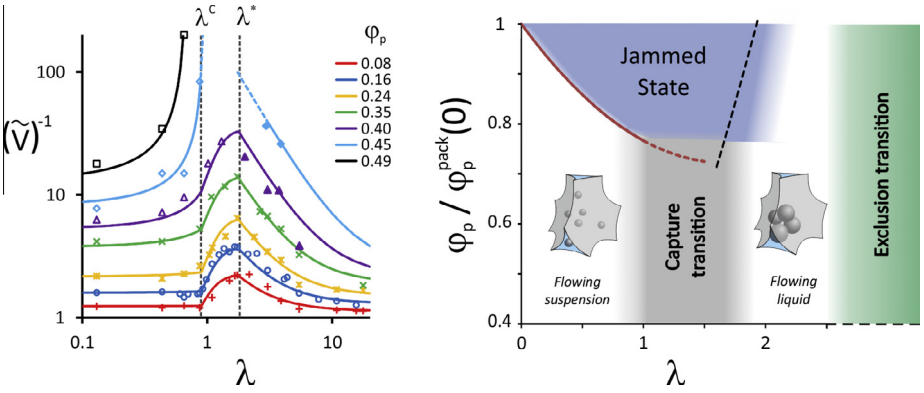
journal homepage: www.elsevier.com/locate/jcis

The drainage of foamy granular suspensions

Benjamin Haffner [a], Yacine Khidas [b], Olivier Pitois [a,*]

[a] Université Paris Est, Laboratoire Navier, UMR 8205 CNRS, École des Ponts ParisTech, IFSTTAR, cité Descartes, 2 allée Kepler, 77420 Champs-sur-Marne, France
[b] Université Paris Est, Laboratoire Navier, UMR 8205 CNRS, École des Ponts ParisTech, IFSTTAR, 5 bd Descartes, 77454 Marne-la-Vallée Cedex 2, France

GRAPHICAL ABSTRACT



ARTICLE INFO

Article history:
Received 21 May 2015
Revised 21 July 2015
Accepted 22 July 2015
Available online 23 July 2015

Keywords:
Foam
Suspension
Granular
Particle
Jamming
Aerated materials

ABSTRACT

Foam-based materials are promising micro-structured materials with interesting thermal and acoustical properties. The control of the material morphology requires counteracting all the destabilizing mechanisms during their production, starting with the drainage process, which remains to be understood in the case of the complex fluids that are commonly used to be foamed. Here we perform measurements for the drainage velocity of aqueous foams made with granular suspensions of hydrophilic monodisperse particles and we show that the effect of the particles can be accounted by two parameters: the volume fraction of particles in the suspension (φ_p) and the confinement parameter (λ), that compares the particle size to the size of passage through constrictions in the foam network. We report data over wide ranges for those two parameters and we identify all the regimes and transitions occurring in the $\varphi_p - \lambda$ diagram. In particular, we highlight a transition which refers to the included/excluded configuration of the particles with respect to the foam network, and makes the drainage velocity evolve from its minimal value (fully included particles) to its maximal one (fully excluded particles). We also determine the conditions (φ_p, λ) leading to the arrest of the drainage process.

© 2015 Elsevier Inc. All rights reserved.

1. Introduction

Foaming is widely encountered in industrial processes: gas is mixed to many materials in order to improve their thermal or acoustical performance or simply to make them lighter and to save raw materials. In the current climate of sustainable development, the production of foam-based materials is destined to expand. The matrix of those foamy materials is often composed of a complex fluid, such as a suspension for example. Typical examples for such mixtures can be found in the production of materials for the building industry [1], of ceramic foams [2], or in food [3] and cosmetic industries. Note also that the mining industry extensively

* Corresponding author.
E-mail addresses: benjamin.haffner@ifsttar.fr (B. Haffner), yacine.khidas@ifsttar.fr (Y. Khidas), olivier.pitois@ifsttar.fr (O. Pitois).

http://dx.doi.org/10.1016/j.jcis.2015.07.051
0021-9797/© 2015 Elsevier Inc. All rights reserved.

Nomenclature

φ_p	volume fraction of particles in the interstitial phase of the foam
φ_p^{pack}	volume fraction of packed spheres
D_b	bubble size
ϕ	gas volume fraction
d_p	particle diameter
d_c	diameter of passage through constrictions in the foam network
$\lambda = d_p/d_c$	confinement parameter
r	characteristic size of a foam node
V	drainage velocity
$\tilde{V} = V(\varphi_p)/V(0)$	reduced drainage velocity
N	number of particles per foam node
μ_0, μ	shear viscosity of the suspending liquid, of the interstitial suspension
K	foam permeability
$\tilde{k}_n = K/r^2$	permeability coefficient of a foam node

resorts to mixtures of foam and particles through the flotation process that is widely used to separate ores [4].

The homogeneity of foamy materials can be drastically affected by the drainage of the interstitial phase (the continuous phase between the gas bubbles) and the simultaneous rising of the bubbles, resulting in the degradation of their quality and their functional properties. Note also that the drainage of the liquid phase – and the resulting increase of the gas volume fraction – promotes other detrimental aging processes, such as ripening and coalescence [5,6]. In order to control foam-based materials it is crucial to understand and to counteract as much as possible the drainage process. During the last two decades, most of the work realized in the field of foam drainage has concerned aqueous foams, i.e. dispersions of densely packed gas bubbles in a Newtonian liquid [5–7]. In fact, only a few recent studies have tackled the issue of foam drainage with complex fluids, such as clays [8,9], coal fly ashes [10], colloidal suspensions [11–14], emulsions [15–17]. These studies have highlighted finite size effects and particle trapping phenomena (clogging) occurring at the scale of the foam network.

Very recently, some of these effects have been rationalized thanks to experiments with model systems, and the so-called confinement parameter λ has been identified as a control parameter. λ compares the size of particles contained in the interstitial phase to the size of passage through the constrictions in the interstitial network: $\lambda = d_p/d_c$ (see Fig. 1). Two mechanisms for trapping of particles in aqueous foams have been understood: (i) the collective trapping – jamming – of the suspension for $\lambda < 1$ and for particle volume fractions above of a critical value that depends on λ [18], and (ii) the individual capture of the particles by the foam constrictions for larger λ values [19–21].

These two mechanisms give some insight into the drainage of foams in the presence of suspended particulate matter. However, the complete understanding of drainage laws requires more experimental work with such model systems. In this paper, we perform new measurements for the drainage velocity of aqueous foams in the presence of spherical particles. Thanks to an improved sample's generation method we obtain a new set of data for large λ values – up to 20 – and we complete our previous data obtained for $\lambda < 2$. This allows for a global physical picture to be proposed for the drainage of foamy suspensions.

2. Materials and methods

Samples are prepared from precursor liquid foams which are subsequently mixed with granular suspensions, as described in a previous work [18,21].

2.1. Materials

The foaming solution contains 10 g/L of trimethyl(tetradecyl)azanium bromide (TTAB) in distilled water with 20% w/w glycerol. With such a proportion of glycerol the density of the solution is 1050 kg/m^3 and matches with that of polystyrene particles used in the study. The surface tension of the liquid/gas interface is 38 mN/m and shear viscosity of the bulk is $\mu_0 \backsimeq 1.7$ mPa s. The suspension is prepared at a given particle volume fraction (φ_2) by mixing the foaming solution and polystyrene spherical beads (Microbeads®). The beads are quite monodisperse: $\Delta d_p/d_p \approx 5\%$ and we have used the following diameters: $d_p = 6$, 20, 30, 40, 80, 140, 250 and 500 μm. In the foaming solution, those particles behave as fully hydrophilic particles and they do not adsorb at bubble interfaces.

2.2. Generation of the precursor foams (schema 1 in Fig. 2)

Bubbles are generated in a T-junction with two entries (nitrogen and foaming solution) and one exit (bubbly solution). The bubble diameter was varied in the range $D_b \backsimeq 150$—1000 μm by tuning the flow rates of gas and liquid. The bubbles are continuously produced and released at the bottom of a column which is partially filled with the foaming solution. This results in the formation of foam in the column. During the production, the foam is imbibed with the same foaming solution in order to obtain stationary drainage conditions with a constant value of the gas fraction (ϕ_1) throughout the foam column [5,6,22].

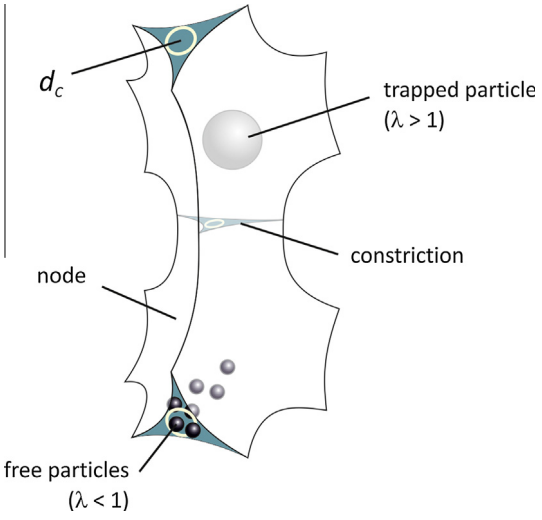


Fig. 1. The interstitial network of aqueous foams consists in nodes connected by constrictions. Particles suspended in the interstitial fluid can be either freely transported or trapped by constrictions. This behavior is described using the so-called confinement parameter, λ, that compares the particle size to the size of passage through those constrictions, d_c.

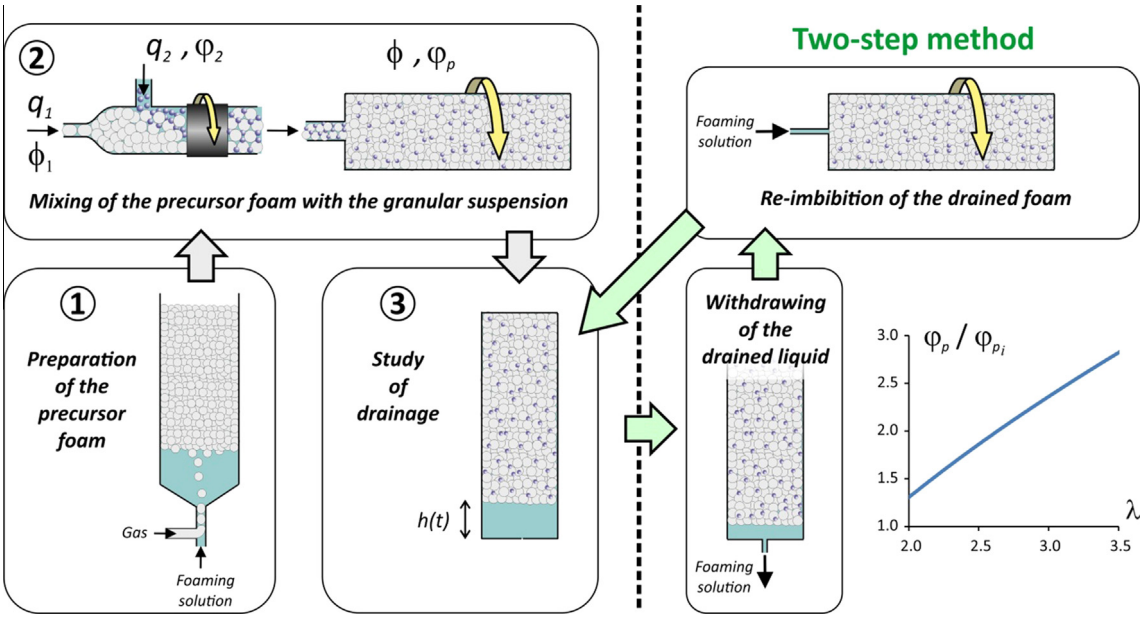


Fig. 2. Generation method for foamy suspensions. Precursor foam is produced in a column (1) before being co-injected with the particle suspension through the mixing device (2). The tuning of flow rates and volume fractions of both foam and suspension allows for the foamy suspension to be controlled during the mixing stage. The sample is continuously introduced and stored in a rotating horizontal column in order to avoid drainage during the preparation. Then the column is turned to the vertical and the study of drainage starts (3). The "two-step" method can be used for samples with high particle concentrations and large particles that are trapped in the foam network. In those cases, the liquid drained after (3) is first withdrawn from the column. Then the horizontal rotation motion is restored and a given volume of liquid is re-injected in the rotating column in order to adjust the final particle volume fraction. After that second step, the study of drainage starts (3). The graph shows the maximal increase of the particle volume fraction (with respect to the one-step method) resulting from the use of the two-step method as a function of the target lambda value.

2.3. Mixing of the precursor foams with the granular suspensions (schema 2 in Fig. 2)

Once the column is filled, the foam is flushed towards a mixing device where the granular suspension is introduced. We have checked that the mixing device does not break bubbles. The parameters of the resulting foamy suspension are controlled by the relative flow rates of the precursor foam (q_1) and the suspension (q_2). The typical value for q_1 is 10 mL/min. The final gas fraction $\phi = q_1\phi_1/(q_1+q_2)$ was varied in the range 0.85–0.95, but most data were obtained for $\phi = 0.90$. We consider the volume fraction of particles in the interstitial phase: $\varphi_p = q_2\varphi_2/[q_1(1-\phi_1)+q_2]$. The outlet of the mixing device is connected to a cylindrical tube (inner diameter 26 mm) in which the produced foamy suspension is continuously introduced. It is equipped with a piston which rate for withdrawing motion compensates exactly the volume flow rate of the injected foamy suspension. Moreover, the tube is rotated (0.3 Hz) along the horizontal axis in order to compensate the effects of gravity during the filling step. We stop this step once the volume of produced particulate foam equals $\Omega_{tot} \backsimeq 60$ mL, which corresponds to a foam length approximately equal to 11.5 cm.

2.4. Study of drainage (schema 3 in Fig. 2)

Then the foam tube is turned to the vertical and we start to measure the drainage kinetics of the sample. We follow the evolution of the height $h(t)$ locating the transition between the foam and the drained suspension at the bottom of the column (see Fig. 3). Note that the pictures such than those presented in Fig. 3 were used to check for the absence of coalescence during the measurements. As already pointed out [18,21] the drainage behavior of foamy suspensions exhibits a linear regime, characterized by a well-defined and constant drainage velocity, provided that $t \lesssim \tau$, where τ is the half drainage time. During this regime, the volume of liquid/suspension drained out of the foam has flowed through foam areas that have not yet been reached by the drainage front, i.e. areas where the gas fraction has remained equal to the initial value ϕ. Because the linear regime accounts for drainage properties of foam characterized by a constant gas fraction ϕ, we measure the drainage velocity V from the slope of this linear evolution, $V = dh/dt$. Note that of all drainage curves were found to exhibit the linear regime, as shown in Fig. 3. In order to characterize the effect of particles on drainage, we normalize the measured drainage velocity by the one measured without particle, i.e. $\widetilde{V} \equiv V(\varphi_p)/V(0)$. Note that because of uncertainties related to the measurement of $h(t)$ for $h \simeq 0$, linear fits are not applied to the early stage of the linear regime. The maximum relative error on the reduced drainage velocity is estimated to be close to 15%.

2.5. Two-step method (Fig. 2)

The mixing method reaches practical limits for high concentrations of large particles, i.e. $\varphi_p \gtrsim 0.35$ and $\lambda \gtrsim 2$, so that we have developed an alternative method, the so-called *two-step method*, for preparing samples with such parameters. The first step is identical to the one described above (schemas 1–2–3 in Fig. 2) except that gas and particle fractions, ϕ_i and φ_{p_i}, are lower than their final target values ϕ and φ_p. As this method applies to rather high λ, the particles remain trapped in the foam during the drainage of the suspending liquid. After the drainage step, the most part of the drained liquid is withdrawn from the bottom of the foam sample and, in order to homogenize the sample, the column is returned to the horizontal and the rotation motion is restored. Then, a given volume of that withdrawn liquid is re-injected at a small flow rate into the rotating foam column. The difference between withdrawn and re-injected liquid volumes is $\Delta\Omega_l$. Note that if the drained liquid was not almost totally removed from the column and then partially re-injected, the particles would be displaced by the strong imbibition front occurring when the column was returned to the

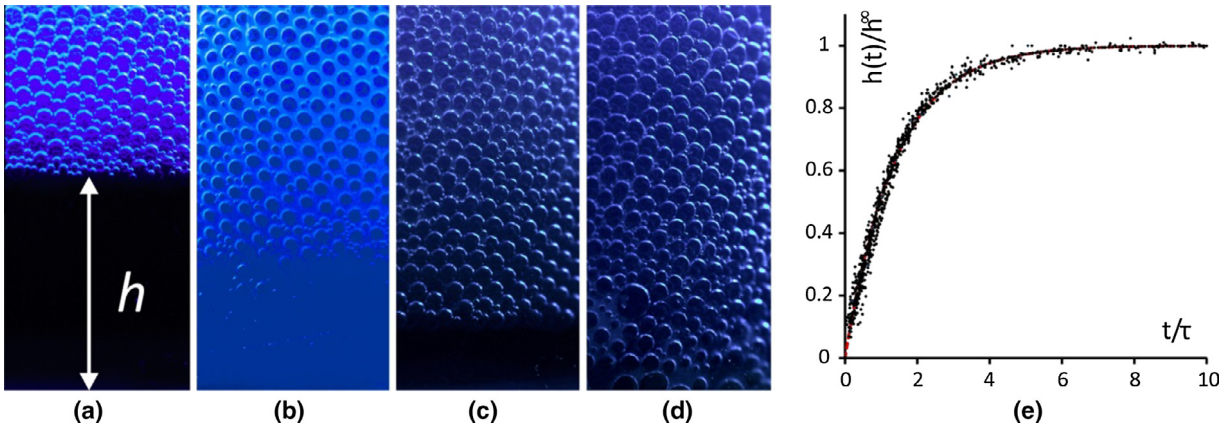


Fig. 3. Study of foam drainage. (a–d) Close-up at the bottom of foam samples with bubble size $D_b \simeq 660$ μm and $\phi = 0.9$, after a drainage time equal to 500 s: (a) No particle, $\varphi_p = 0$; (b) Particles flow out of the foam, $\varphi_p \simeq 0.40$ and $d_p \simeq 20$ μm; (c) Particles are trapped in the foam, $\varphi_p \simeq 0.35$ and $d_p \simeq 80$ μm; (d) Jammed foam, $\varphi_p \simeq 0.49$ and $d_p \simeq 40$ μm. (e) Reduced height of liquid/suspension drained at the bottom of the foam column as a function of the reduced time, for more than 60 foam samples. h^∞ is the drained height measured at long time and τ the time corresponding to $h(\tau)/h^\infty = 1/2$.

horizontal position. Our procedure allows for the amount of suspending liquid to be reduced whereas the particle volume is kept constant in the foam. The final gas and particle volume fractions are given respectively by: $\phi = \phi_i(1 - \Delta\Omega_l/\Omega_{tot})^{-1}$ and $\varphi_p = \varphi_{p_i}(1 - \Delta\Omega_l/(1-\phi_i)\Omega_{tot})^{-1}$. As shown in Fig. 2, the target particle volume fraction can be significantly increased by using this two-step method. With those new parameters, the study of the foam sample can start, as described above ("Study of drainage"). Note that the two-step method induces additional experimental errors in the control of ϕ and φ_p.

2.6. Parameters

In addition to the parameters D_b, d_p, ϕ and, φ_p, we will use the so-called confinement parameter, λ, and the number of particles per foam node, N. λ compares the particle size to the size of passage through constrictions of the foam network, d_c (see Fig. 1), determined in [19] by trapping/release experiments with a single particle in monodisperse foams and by numerical simulations of foam structures,

$$\lambda = \frac{d_p}{d_c} = C(\phi)\frac{d_p}{D_b} \tag{1}$$

with $C(\phi) = (1 + 0.57(1-\phi)^{0.27})/(0.27\sqrt{(1-\phi)} + 3.17(1-\phi)^{2.75})$. N is obtained by dividing the total number of particles by the total number of foam nodes: $N = \varphi_p(1-\phi)D_b^3/6\phi d_p^3$. By using Eq. (1), N is obtained as a function of λ:

$$N = \frac{\varphi_p(1-\phi)}{6\phi}\left(\frac{C(\phi)}{\lambda}\right)^3 \tag{2}$$

3. Results and discussion

Results for the reduced drainage velocity are presented as a function of λ in Fig. 4. The whole set of data confirms that λ is the control parameter for the drainage issue. As λ increases, several regimes and transitions are successively observed.

For low and moderate particle volume fractions, i.e. $\varphi_p \lesssim 0.40$, one can distinguish five ranges of lambda values: (i) $\lambda \lesssim \lambda^c$, where the velocity is almost constant ($\varphi_p \lesssim 0.16$) or decreases slightly as a function of lambda. (ii) $\lambda^c \lesssim \lambda \lesssim \lambda^*$, where a significant decrease of the velocity is observed; the decrease is all the more pronounced that the particle volume fraction is low, and for $\varphi_p \approx 0.40$ the magnitude of the decrease becomes comparable to that of the preceding regime. (iii) $\lambda \approx \lambda^*$, the velocity is minimal. (iv) $\lambda^* \lesssim \lambda \lesssim 10$, the drainage velocity increases significantly and reaches values that are close to the velocities in the first regime ($\lambda \lesssim \lambda^c$). (v) $\lambda \gtrsim 10$, the increase of the velocity is much less pronounced than for the preceding regime.

For the highest investigated particle volume fractions, i.e. $\varphi_p > 0.40$, the behavior is similar except that the drainage velocity vanishes for moderate lambda values, but takes again a finite value for higher lambda values.

The reported drainage behavior can be interpreted in terms of foam permeability. We introduce the general equation of drainage for aqueous foams:

$$-\frac{\partial\phi}{\partial t} + \vec{\nabla}\cdot\left(\frac{K_0}{\mu_0}(\rho\vec{g} - \vec{\nabla}P)\right) = 0 \tag{3}$$

where $-\vec{\nabla}P$ is the driving pressure gradient and K_0 is the foam permeability, which has been shown to depend on the bubble size, gas volume fraction and interfacial mobility [6,7,23,24]. For the foams considered in this study the most part of the liquid in contained in the foam nodes, whose characteristic size is $r \approx d_c/\alpha$, with $\alpha = 2(2/\sqrt{3} - 1)$. It is convenient to introduce the foam-averaged permeability coefficient of a node, $\tilde{k}_{n0} = K_0/r^2$. Within the first regime of the free gravity drainage process and assuming an initially uniform gas fraction profile, Eq. (3) gives the corresponding constant drainage velocity in the direction of gravity – Darcy velocity [6,7,23,24]:

$$V_0 = \frac{K_0}{\mu_0}\rho g \tag{4}$$

Note that this velocity depends on the gas fraction initially set to the foam sample although $\phi(z)$ varies during the linear regime. As already explained, this is due to the fact that the volume of liquid drained out of the foam has flowed through foam areas that have not yet been reached by the drainage front, i.e. areas where the gas fraction has remained equal to the initial value ϕ. For the particle-loaded foams considered in this study, the permeability is expected to depend also on the control parameters λ and φ_p through the partial obstruction of the foam network by trapped particles, i.e. $K \equiv K(\phi, D_b, \lambda, \varphi_p)$. Besides, the viscosity of the flowing suspension is expected to depend on μ_0, λ and φ_p, i.e. $\mu \equiv \mu(\mu_0, \lambda, \varphi_p)$. Finally, the reduced drainage velocity can be expressed as:

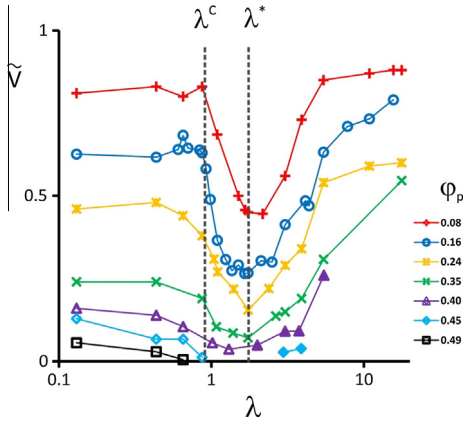


Fig. 4. Reduced drainage velocity of foamy suspensions as a function of the confinement parameter, for several particle volume fractions. Full symbols indicate measurements for which the "two-step" method has been used. The two particular values λ^c and λ^* refer respectively to the end of the flowing suspension regime and to the minimal drainage velocity.

$$\widetilde{V} = \frac{V}{V_0} = \frac{K}{K_0}\left(\frac{\mu}{\mu_0}\right)^{-1} \tag{5}$$

In the following, we estimate K, μ and $\widetilde{V}$, and we discuss all the regimes and transitions described above.

3.1. Flowing suspension: $\lambda \lesssim \lambda^c$

This regime corresponds to particles suspended in the flowing interstitial liquid. It is expected that the foam permeability is equal to that of the particle-free foam with the same gas fraction, i.e. $K = K_0$. Besides, results presented in [18] show that in such conditions the Krieger–Dougherty relationship [25] can be used to estimate the viscosity of the flowing suspension. Consequently, from Eq. (5), the drainage velocity is:

$$\widetilde{V}_{\lambda\leqslant\lambda^c} = \frac{\mu_0}{\mu} \simeq \left(1 - \frac{\varphi_p}{\varphi_p^{pack}(\lambda)}\right)^{2.5\varphi_p^{pack}(\lambda)} \tag{6}$$

As already mentioned in [18], in the foam network, confinement effects can be accounted for through a single parameter, $\varphi_p^{pack}(\lambda)$, which represents the particle volume fraction for which the suspension viscosity diverges. This behavior seems to result from the significant interfacial mobility of the confining network, as already observed for the motion of individual particles [26,27]. $\varphi_p^{pack}(\lambda)$ can be significantly reduced with respect to the value for infinite volume (unconfined) conditions, $\varphi_p^{pack}(0)$, and this effect can be estimated by the relation [18]:

$$\frac{\varphi_p^{pack}(\lambda)}{\varphi_p^{pack}(0)} \simeq 1 - \lambda/3 + 0.1\lambda^2 \tag{7}$$

Eq. (6) is plotted in Fig. 9a. Besides, our experimental results indicate that $\lambda^c \simeq 0.9$. As it will be explained in the following, for $\lambda > \lambda^c$, the evolution of the drainage velocity becomes controlled by the individual capture of particle in the foam network.

3.2. Maximal frictional drag configuration: $\lambda = \lambda^*$

Now we focus on the minimum value of the drainage velocity, which is observed for $\lambda^* \approx 1.75$ and corresponds to the maximal drag force experienced by the draining liquid. It has been already shown that within our experimental conditions, particles capture is complete in the foam samples characterized by $\lambda \gtrsim 1.75$ [21]. This situation has been modeled in considering the flow of the suspending liquid, i.e. with a viscosity $\mu = \mu_0$, in the foam network, which is assumed to be not deformed with respect to the particle-free foam, but whose permeability is reduced due to the presence of trapped particle packings that form in the nodes. We introduce the Carman–Kozeny permeability coefficient for packed spheres [28,29], $\tilde{C}_{CK} \approx 10^{-3}$, and we consider the ratio $\varphi_p/\varphi_p^{pack}$ as the volume fraction of foam nodes filled with packed particles. In associating the hydraulic contributions of particle-filled and empty volume fractions, we obtain the permeability $K/r^2 \approx \left[\left(1-\varphi_p/\varphi_p^{pack}\right)/\tilde{k}_{n0} + \left(\varphi_p/\varphi_p^{pack}\right)/\left(\tilde{C}_{CK}d_p^2/r^2\right)\right]^{-1}$. Therefore, the drainage velocity writes [21]:

$$\widetilde{V}^*_{N\gg1} = \frac{K}{K_0} \simeq \left[1 - \frac{\varphi_p}{\varphi_p^{pack}} + \frac{\varphi_p}{\varphi_p^{pack}}\frac{\tilde{k}_{n0}}{\tilde{C}_{CK}\alpha^2(\lambda^*)^2}\right]^{-1} \tag{8}$$

Note that for $\lambda = 1.75$, the number of particles per node (Eq. (2)) varies from 1 to 4 as φ_p varies from 0.1 to 0.4 respectively, so that the packings exist only for intermediate or high particle fractions. In Fig. 5 we report the set of experimental data obtained for $\lambda = \lambda^* \approx 1.75$ and we compare it with Eq. (8). For the reasons explained above, we restrict this comparison to the highest particle concentrations investigated in this study. Note also that no attempt was done to refine the present model by taking into account the expected effect of λ on φ_p^{pack}, i.e. we consider that $\varphi_p^{pack} \cong \varphi_p^{pack}(0)$. Although the number of particles per node is rather small, the predicted slope $d\widetilde{V}^*_{N\gg1}/d\varphi_p$ is in reasonable agreement with experimental data, as shown in Fig. 5.

Obviously, for small particle concentrations, the assumption of particle packings does not hold anymore and another approach should be taken on. For $\varphi_p \lesssim 0.1$, there is less than one particle per node and we define the fraction of loaded nodes, f, as the number of loaded nodes divided by the total number of foam nodes. As $N < 1$ and with the assumption that loaded nodes are filled with only one particle, $f = N$ and the apparent foam permeability can be estimated in considering that, on average, the liquid flows through a fraction $(1-f)$ of unloaded nodes and a fraction f of loaded nodes. This suggests that the liquid does not have preferential paths through unloaded nodes over large distances, and this is conceivable insofar as loaded foam nodes have a moderate drag effect on the liquid, as shown in [30]. By combining in series the contributions of loaded (with a permeability coefficient $\tilde{k}_n$) and

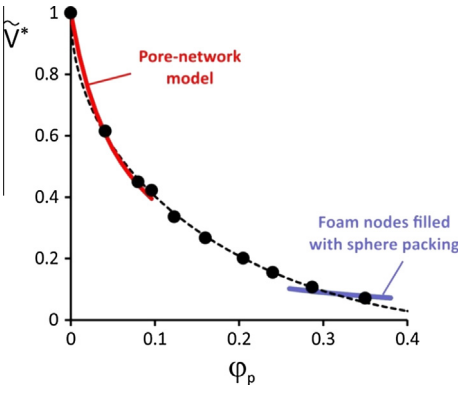


Fig. 5. Minimum drainage velocity ($\lambda \approx \lambda^*$ in Fig. 4) as a function of particle volume fraction. The blue line corresponds to Eq. (8) plotted with $\varphi_p^{pack} = 0.6$, $\tilde{C}_{CK} = 0.001$, $\alpha = 0.31$, $\lambda^* = 1.75$, $\tilde{k}_{n0} = 1/200$. The red line corresponds to Eq. (9) plotted with $g(\lambda^*) \simeq 2.5$. The dotted line corresponds to Eq. (10). (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

unloaded nodes for the drag experienced by the liquid, we obtain the foam permeability $K/r^2 \approx ((1-N)/\tilde{k}_{n0} + N/\tilde{k}_n)^{-1}$. In introducing the function $g = \tilde{k}_{n0}/\tilde{k}_n$, the reduced drainage velocity writes:

$$\widetilde{V}^*_{N\leqslant 1} = \frac{K}{K_0} \simeq [(1-N) + N \cdot g(\lambda^*)]^{-1} \quad (9)$$

In [30] both experiments and numerical simulations have provided a consistent set of data for $g(\lambda)$, and a value equal to 2.5 was reported for $g(\lambda = 1.75)$. Eq. (9) is plotted in Fig. 5 and shows very good agreement with experimental data for the drainage velocity at small particle concentrations. The evolution for $\widetilde{V}^*$ in the intermediate concentration range, i.e. $0.1 \lesssim \varphi_p \lesssim 0.3$, is more difficult to describe precisely because it involves several configurations with a very small number of particles in foam nodes. In order to describe the experimental data over the full concentration range, we use the following fitting function:

$$\widetilde{V}^* = \frac{K}{K_0} \simeq 1 + (7/6)\varphi_p^{3/2} - 2\varphi_p^{1/2} \quad (10)$$

3.3. Capture transition in the foam network: $\lambda^c \lesssim \lambda \lesssim \lambda^*$

Whereas particle capture in the present system is expected to be ideally described by a step function at $\lambda = \lambda^c$, the capture and the associated drainage velocity decrease are progressive, from $\lambda = \lambda^c$ to $\lambda = \lambda^*$ within our experimental conditions, i.e. over a lambda range $\Delta\lambda^c = \lambda^* - \lambda^c$. This behavior is partly due to the intrinsic small polydispersity of characteristic sizes in a sample, and partly due to the nature of constrictions that coexist in the foam column, i.e. the constrictions of the bulk foam (d_c) and the constrictions of the foam at wall: $d_c^w \approx 1.6 d_c$. The precise shape of the velocity curve between λ^c and λ^* is thus also expected to depend on the proportions of bulk and wall constrictions, i.e. on the column to bubble size ratio. An attempt to take explicitly into account the particle retention curve $R_p(\lambda)$ in the modeling of both K and μ has been made in [21] for $\varphi_p = 0.16$. Here, new results for the particle retention are provided for $\varphi_p = 0.40$. As shown in Fig. 6a, the particle retention curve for $\varphi_p = 0.40$ is similar to the one obtained previously for $\varphi_p = 0.16$. Therefore, the effect of particle capture on the drainage velocity is expected to be similar for the particle fractions in the range 0–0.40. Note that the width of the capture transition $\Delta\lambda^c$ has a significant effect on the minimum drainage velocity $\widetilde{V}^*$, as it results from two opposing effects: $\widetilde{V}(R_p < 1)$ decreases with the proportion R_p of captured particles, but in the same time $\widetilde{V}(R_p = 1)$ increases as λ increases (see Eq. (8)). An example of the global behavior is shown in Fig. 6c.

Insofar as the mechanisms leading to the observed velocity decrease have been already identified in [21], here we adopt of more descriptive approach and we look for a phenomenological fitting function for the velocity decrease between $\lambda = \lambda^c$ to $\lambda = \lambda^*$. We introduce the normalized parameters: $\hat{\lambda}^c = (\lambda - \lambda^c)/\Delta\lambda^c$ and $\widehat{V}_{\lambda^c \to \lambda^*} = (\widetilde{V}(\lambda) - \widetilde{V}^*)/(\widetilde{V}^c - \widetilde{V}^*)$, where $\widetilde{V}^c \equiv \widetilde{V}(\lambda^c)$ and $\widetilde{V}^*$ are given by Eqs. (6) and (10) respectively. We plot in Fig. 6b the corresponding experimental values for all the investigated particle volume fractions in the range 0–0.40, and we see that the set of data can be reasonably described by the simple function:

$$\widehat{V}_{\lambda^c \to \lambda^*} \simeq exp(-4\hat{\lambda}^c) \quad (11)$$

3.4. Minimal frictional drag configuration: $\lambda \gtrsim 10$

As small particles, i.e. $\lambda < 1$, are incorporated into the foam network, the volume fraction of the interstitial phase is $\phi_s = \phi_\ell + \phi_p$, with ϕ_ℓ (resp. ϕ_p) the liquid (resp. particle) volume fraction in foam. As the particle size increases significantly, i.e. $\lambda > 2$, the foam network is deformed and particle-induced Plateau borders are created as well as thin films between particle surface and gas [30]. In a certain sense, this geometrical evolution can be considered as the progressive exclusion of the particles from the draining network: the fraction of particle surface area in contact with this network decreases and consequently the drag experienced by the draining liquid reduces significantly. This effect is reinforced by the fact that the number of particles is a strong decreasing function of λ (see Eq. (2)). Thus, within the range of particle concentrations investigated in this study, the systems characterized by $\lambda \gg 1$ consist in a small number of excluded particles embedded in a particle-free foam with an effective interstitial volume fraction $\phi_s^{eff} \simeq \phi_\ell = \phi_s - \phi_p$. Therefore, in assuming that the particle-free foam permeability varies as $K_0 \propto \phi_\ell^{3/2}$ [31], the velocity in this drainage regime is expected to be:

$$\widetilde{V}_{\lambda \gg 1} \simeq \frac{K_0\left(\phi_s^{eff}\right)}{K_0(\phi_s)} \simeq (1-\varphi_p)^{3/2} \quad (12)$$

This drainage velocity corresponds to the minimal effect (drag) experienced by the draining liquid when particles are trapped in aqueous foams. Eq. (12) is plotted in Fig. 7 against experimental

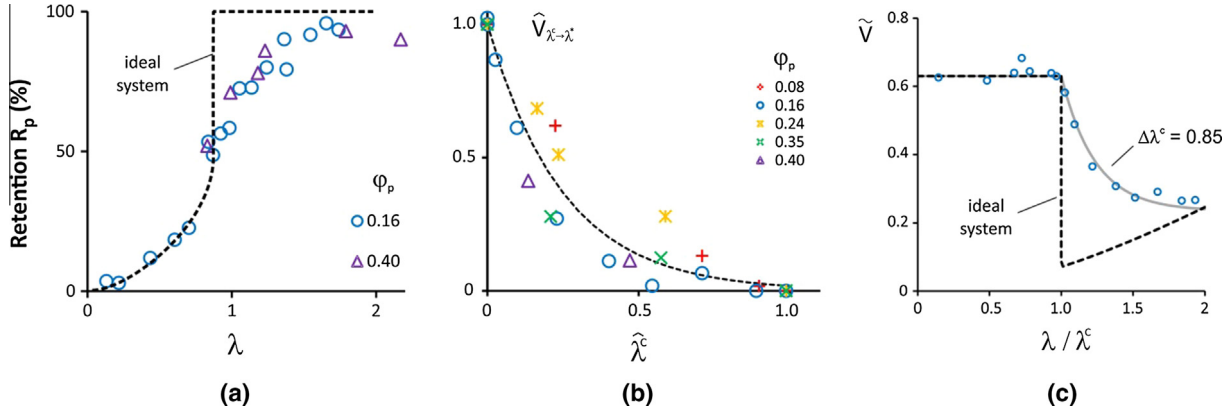


Fig. 6. (a) Proportion of particles retained in the foam after drainage as a function of the confinement parameter, for two particle volume fractions (0.16 and 0.40). The dotted line correspond to the retention curve expected for an ideal system, i.e. $\Delta\lambda^c = 0$. (b) Normalized velocities as a function of the normalized confinement parameter for the transition induced by particle capture in foam samples. The dotted line corresponds to Eq. (11). (c) Example of the effect of the capture transition on the minimal drainage velocity ($\varphi_p = 0.16$). $\widetilde{V}_{\lambda \leqslant \lambda^c}$ is given by Eq. (6) (with $\varphi_p^{pack} \cong 0.6$), values for $V(\lambda \geqslant \lambda^*)$ are given by Eq. (8) with $\tilde{k}_{n0} = 1/300$. Transition curves are plotted using Eq. (11) in considering two values for $\Delta\lambda^c$: 0 (ideal system) and 0.85.

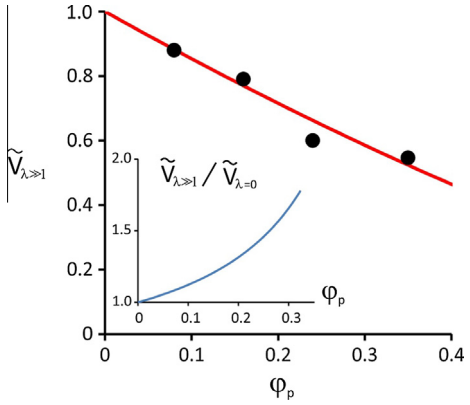


Fig. 7. Reduced drainage velocity as a function of particle volume fraction for samples characterized by a large value of the confinement parameter ($\lambda > 15$). The red line corresponds to Eq. (12). Inset: the ratio of drainage velocities given by Eqs. (12) and (6) (assuming no confinement effect, i.e. $\varphi_p^{pack} \cong 0.6$) as a function of the particle volume fraction. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

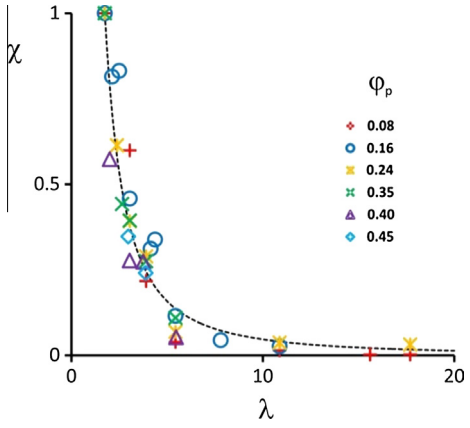


Fig. 8. Normalized transition function between the maximal drag configuration ($\lambda = \lambda^*$ and particles are fully included in the foam network), and the minimal drag configuration ($\lambda \gg 1$ and the particles are excluded from the network). The symbols correspond to values obtained from experimental data and Eq. (13). The dotted line corresponds to Eq. (14).

data obtained for $\lambda > 15$, showing very good agreement. In the inset of Fig. 7 is also plotted the ratio $\tilde{V}_{\lambda\gg1}/\tilde{V}_{\lambda\simeq0}$ as a function of φ_p ($\tilde{V}_{\lambda\simeq0}$ is given by Eq. (6) in assuming no confinement effect). It appears that $\tilde{V}_{\lambda\gg1}$ is the maximum velocity, whatever the particles are flowing or not.

3.5. Particle exclusion transition: $\lambda^* < \lambda \lesssim 10$

Now we consider the transitional regime between the maximal drag configuration ($\lambda = \lambda^*$) and the minimal drag configuration ($\lambda \gg 1$). As already explained, the $\lambda = \lambda^*$ configuration corresponds to particles that are fully included into the foam network, whereas the $\lambda \gg 1$ configuration consists in particles excluded from the foam network and rather embedded in the bulk foam. Thus, from a geometrical point of view, the transition between those two configurations can be considered as the inclusion/exclusion of the particles with respect to the foam network. Note that within the range $2 \lesssim \lambda \lesssim 10$, the number of particles is divided by more than 100, and the number of particles per node evolves from $N \approx 1$ to $N \approx 0.01$. Thus, for a given particle concentration, the transitional regime accounts for both the change in particle number and the change in the geometrical configuration of the particles. We define the function χ that measures the level of viscous drag, i.e. K^{-1} or equivalently $(\tilde{V})^{-1}$, between the two reference configurations:

$$\chi = \frac{(\tilde{V})^{-1} - (\tilde{V}_{\lambda\gg1})^{-1}}{(\tilde{V}^*)^{-1} - (\tilde{V}_{\lambda\gg1})^{-1}} \tag{13}$$

Note that $\chi = 0$ as $\tilde{V} = \tilde{V}_{\lambda\gg1}$ (particles excluded from the network) and $\chi = 1$ as $\tilde{V} = \tilde{V}^*$ (fully included particles). In Eq. (13), values for $\tilde{V}_{\lambda\gg1}$ and $\tilde{V}^*$ are obtained from Eqs. (12) and (10) respectively. Calculated values for χ are plotted in Fig. 8 as a function of λ, showing a well-defined transition between $\chi = 1$ and $\chi = 0$ as λ increases. As expected, the transitional regime is found to be similar for all the particle volume fractions and it can be described with the same function. Therefore we propose the following phenomenological form to fit the data:

$$\chi = 2.65\lambda^{-7/4} \tag{14}$$

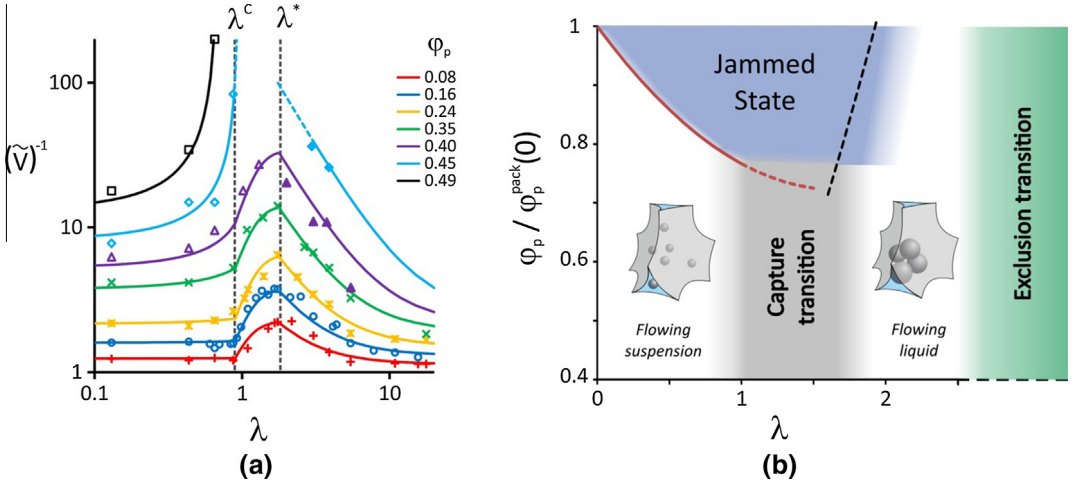


Fig. 9. (a) Reduced viscous drag (inverse of the reduced drainage velocity) of foamy suspensions as a function of the confinement parameter, for several particle volume fractions. The two particular values λ^c and λ^* refer respectively to the end of the flowing suspension regime and to the minimal drainage velocity (maximal drag). The lines correspond to Eq. (6) for $\lambda \leqslant \lambda^c$, to Eq. (11) for $\lambda^c \leqslant \lambda \leqslant \lambda^*$ and to Eq. (12) for $\lambda \geqslant \lambda^*$. (b) Diagram of the reduced particle volume fraction ($\varphi_p^{pack}(0)$ is the packing volume fraction without confinement effect) as a function of the confinement parameter in the foam network. It shows the jammed state domain deduced from experiments. The red line corresponds to Eq. (7) and the black dotted line corresponds to Eq. (15). (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

In combination with Eq. (13), Eq. (14) allows for the drainage velocity to be estimated for any particle volume fraction and any λ value in the transitional regime. The corresponding values are plotted in Fig. 9a. Further dedicated work would allow understanding the reported transitional regime.

3.6. Jammed state: $\varphi_p > \varphi_p^{jam}$

Finally, we address the issue of the vanishing drainage velocity observed for sufficiently high particle concentrations, more precisely when $\varphi_p > \varphi_p^{jam}$. For such concentrations, the drainage velocity was not measurable within our experimental conditions, and therefore the foamy suspension appeared to be jammed. In Fig. 9b we report the approximate outline of the jammed state, as deduced from our measurements. Note that due to difficulties related to the generation method at high particle concentrations and moderate λ values, we were not able to determine precisely all the boundaries. In the following we discuss those boundaries from the theoretical point of view.

For small λ values, i.e. $\lambda < 1$, φ_p^{jam} identifies to $\varphi_p^{pack}(\lambda)$ given by Eq. (7), which means that the particles collectively jam in the network, i.e. $\mu\left(\varphi_p^{pack}(\lambda)\right) \to \infty$, and retain the suspending liquid into the porosity of the packing they form. For $\lambda \gtrsim \lambda^*$ the situation can be significantly different: the individually trapped particles can induce interface deformations around them, as well as capillary liquid retention even if $\varphi_p < \varphi_p^{pack}$. The study of such complex configurations is clearly beyond the scope of this paper. For the present work, we focus on the particle volume fraction for packing into the foam network in the range of $\lambda \gtrsim \lambda^*$. The ideal configuration corresponds to particles that enlarge locally the foam network and fill the network by forming particle chains. Let's call $L_{nn} \approx 0.36 D_b$, the distance between two neighboring node centers [5,6]. The maximum number of particles per node that can be put in chains in order to cover the corresponding distance is: $N^{pack} \simeq 2(L_{nn}/d_p - 1/2)$. Therefore, using Eqs. (1) and (2), the particle volume fraction for packing in chains writes:

$$\varphi_p^{pack} \simeq 6\frac{\phi}{1-\phi}\left(\frac{\lambda}{C(\phi)}\right)^3\left(0.72\frac{C(\phi)}{\lambda} - 1\right) \tag{15}$$

As explained above, we stress that Eq. (15) should be considered as an upper bound and that the jamming of the system could occur for $\varphi_p < \varphi_p^{pack}$. Eq. (15) is plotted in Fig. 9b and shows consistency with experimental data. In combination with Eqs. (7) and (15) allows understanding the boundaries of the jammed state domain.

4. Conclusion

We have tackled the issue of foam drainage in the presence of hydrophilic spherical particles. Through a systematic study of the relevant parameters, i.e. the bubble diameter, the particle diameter, the gas volume fraction and the particle volume fraction, we extent the work performed in previous studies [18,21,30] and we provide a global understanding for the drainage behavior in those complex systems. This will help to interpret drainage data obtained with more specific systems and that cannot be understood from classical drainage laws [23]. In particular, we highlight the effect of both the particle volume fraction and the parameter λ, that compares the particle size to the size of passage through constrictions in the foam network. For small λ values, the suspension drains with an effective viscosity that depends on both φ_p and λ (regime of flowing suspensions). For $\lambda \gtrsim 1$, the particles are captured by constrictions, resulting in a sharp decrease of the velocity (capture transition). Although the particles remain trapped in the foam network as λ increases further, the drainage velocity increases for $\lambda \gtrsim 2$, so that a well-defined minimal velocity value is observed for $1 < \lambda < 2$. This optimal configuration for drainage reduction corresponds to particles that are trapped and fully included in the foam network. As λ increases further, the particles become too large to be completely included in the foam network: they become progressively excluded from the network where drainage takes place, so that the drainage velocity increases up to a well-defined asymptotic value which appears to be the maximal drainage velocity. Therefore, the *particle exclusion transition*, which refers to the included/excluded configuration of the particles with respect to the foam network, makes the drainage velocity evolve from its minimal value (fully included particles) to its maximal one (fully excluded particles). This morphological transition remains to be understood in details, but we think that it plays a crucial role in the properties of particulate foamed materials, such as rheology and stability with respect to ripening and coalescence.

We would like to stress that this work could help researchers dealing with foam stabilization via hydrophobic particles to consider properly the effect of the unattached hydrophobic particles in the foam network. Besides, as the paper also reports the conditions for the foam drainage to be blocked, we anticipate that such a result could be applied to formulate rationally new foamed materials. Further work should aim in investigating the drainage of polydisperse granular suspensions that are more likely to be used in practical situations.

Acknowledgments

We thank D. Hautemayou and C. Mézière for technical support. We gratefully acknowledge financial support from Agence Nationale de la Recherche (Grant no. ANR-13-RMNP-0003-01) and French Space Agency (convention CNES/70980).

References

[1] R.K. Dhir, M.D. Newlands, A. McCarthy (Eds.), Use of Foamed Concrete in Construction, Thomas Telford Ltd., London, 2005.
[2] A.R. Studart, U.T. Gonzenbach, E. Tervoort, L.J. Gauckler, J. Am. Ceram. Soc. 89 (2006) 1771–1789.
[3] A. Wilson (Ed.), Foams: Physics, Chemistry and Structure, Springer, London, 1989.
[4] A. Nguyen, H.J. Schulze (Eds.), Colloidal Science of Flotation, Marcel Dekker, New York, 2003.
[5] D.L. Weaire, S. Hutzler, The Physics of Foams, Oxford University Press, Oxford, 2001.
[6] I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Höhler, O. Pitois, F. Rouyer, Foams: Structure and Dynamics, OUP Oxford, 2013.
[7] S. Cohen-Addad, R. Höhler, O. Pitois, Annu. Rev. Fluid Mech. 45 (2013) 241–267.
[8] A.M. Sani, K.K. Mohanty, Colloids Surf. A Physicochem. Eng. Asp. 340 (2009) 174–181.
[9] R. Guillermic, A. Salonen, J. Emile, A. Saint-Jalmes, Soft Matter 5 (2009) 4975–4982.
[10] A. Britan, M. Liverts, G. Ben-Dor, S.A. Koehler, N. Bennani, Colloids Surf. A Physicochem. Eng. Asp. 344 (2009) 15–23.
[11] F. Carn, A. Colin, O. Pitois, M. Vignes-Adler, R. Backov, Langmuir 25 (2009) 7847–7856.
[12] F. Carn, A. Colin, O. Pitois, R. Backov, Soft Matter 8 (2012) 61–65.
[13] I. Lesov, S. Tcholakova, N. Denkov, J. Colloid Interface Sci. 426 (2014) 9–21.
[14] I. Lesov, S. Tcholakova, N. Denkov, RSC Adv. 4 (2014) 811–823.
[15] K. Koczo, L.A. Lobo, D.T. Wasan, J. Colloid Interface Sci. 150 (1992) 492–506.
[16] J. Goyon, F. Bertrand, O. Pitois, G. Ovarlez, Phys. Rev. Lett. 104 (2010) 128301.
[17] A. Salonen, R. Lhermerout, E. Rio, D. Langevin, A. Saint-Jalmes, Soft Matter 8 (2012) 699–706.
[18] B. Haffner, Y. Khidas, O. Pitois, Soft Matter 10 (2014) 3277–3283.
[19] N. Louvet, R. Höhler, O. Pitois, Phys. Rev. E 82 (2010) 041405.
[20] S. Guignot, S. Faure, M. Vignes-Adler, O. Pitois, Chem. Eng. Sci. 65 (2010) 2579–2585.
[21] Y. Khidas, B. Haffner, O. Pitois, Soft Matter 10 (2014) 4137–4141.
[22] D. Weaire, N. Pittet, S. Hutzler, D. Pardal, Phys. Rev. Lett. 71 (1993) 2670–2673.
[23] S.A. Koehler, S. Hilgenfeldt, H.A. Stone, Langmuir 16 (2000) 6327–6341.
[24] E. Lorenceau, N. Louvet, F. Rouyer, O. Pitois, Eur. Phys. J. E 28 (2009) 293–304.
[25] I.M. Krieger, T.J. Dougherty, J. Rheol. 3 (1959) 137–154.
[26] O. Pitois, C. Fritz, L. Pasol, M. Vignes-Adler, Phys. Fluids 21 (2009) 103304.

[27] F. Rouyer, C. Fritz, O. Pitois, Soft Matter 6 (2010) 3863–3869.
[28] J. Kozeny, Sitzungsber Akad. Wiss. 136 (1927) 271–306.
[29] P.C. Carman, Trans. Inst. Chem. Eng. 15 (1937) 150–166.
[30] F. Rouyer, B. Haffner, N. Louvet, Y. Khidas, O. Pitois, Soft Matter 10 (2014) 6990–6998.
[31] S.A. Koehler, S. Hilgenfeldt, H.A. Stone, Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 4232–4235.

Résumé

Nous étudions le **drainage** des **mousses** de **suspension** granulaire. Nos paramètres de contrôle sont : la fraction en gaz, la taille des bulles, celle des **particules** et la fraction volumique de celles-ci dans la phase interstitielle. En premier lieu, nous mesurons la proportion de liquide et de particules retenus dans le réseau de la mousse en fonction des paramètres cités précédemment. Ces mesures réalisées une fois le drainage terminé apportent des éléments de compréhension indispensables à la description des vitesses de drainage. Nous montrons également que certaines combinaisons de nos paramètres d'étude conduisent au blocage du système gaz, liquide, solide. Dans un second temps, nous avons identifié différents régimes de cinétique de drainage, nous montrons qu'ils sont contrôlés par deux paramètres : (i) le rapport λ de la taille des particules et de la taille des constrictions du réseau, (ii) la fraction en particules dans la phase interstitielle φ_p. Le point clé pour comprendre ces régimes est le piégeage des particules dans la mousse qui peut avoir deux origines : (i) par piégeage collectif (**jamming**) qui peut survenir pour des fractions étonnamment basses à cause de la géométrie du réseau interstitiel, (ii) la **capture** individuelle des particules par la mousse lorsque leur taille devient supérieure à celle des constrictions du réseau interstitiel. Des particules encore plus grosses sont exclues du réseau et participent à une remontée de la vitesse de drainage, faisant apparaître un minimum pour le régime correspondant à la capture individuelle. La fraction granulaire de la phase interstitielle est aussi essentielle, le drainage pouvant être stoppé pour des fractions suffisamment élevées lorsque λ est judicieusement choisi. Ce travail propose des pistes prometteuses pour la stabilité des **matériaux** triphasiques.

Abstract

We study the **drainage** of granular **suspensions foams**. Our control parameters are the gas fraction, the bubble size, the **particles** size and the interstitial particle fraction. First, we measure the proportion of liquid and particles retained in the foam network as function of the above mentioned parameters. These measurements are performed when the drainage is over, they are essential for the description of drainage velocity. We show that certain combinations of our study parameters lead to the jamming of the three-phase system: gas, liquid, solid. Secondly, we highlight different regimes of drainage velocity, which are controlled by two parameters: (i) λ, the ratio of the particle size and constriction size, (ii) the fraction of particles in the interstitial network: φ_p. The key to understand these regimes is the trapping of particles in the foam: (i) the jamming, which may occur for surprisingly low fractions due to the geometry of the pore network, (ii) the particles captured by the foam network when they become larger than the constrictions network. Finally, larger particles excluded from the network increase the drainage velocity, as a consequence the minimum for the velocity corresponds to the individual **capture**. The granular fraction of the suspension in the foam network is the other key parameter. Especially, the drainage can be stopped for sufficiently high fractions for certain values of λ. This work offers promising outlook for the stability of three-phase **materials**.