Dynamique de microbouchons dans un canal et une bifurcation.

Cédric Ody

▶ **To cite this version:**

Cédric Ody. Dynamique de microbouchons dans un canal et une bifurcation.. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Ecole Polytechnique X, 2007. Français. NNT : . tel-00345900

HAL Id: tel-00345900
https://pastel.hal.science/tel-00345900

Submitted on 10 Dec 2008

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.

École Polytechnique
Laboratoire d'Hydrodynamique

Thèse présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : Mécanique

par

Cédric ODY

Dynamique de microbouchons dans un canal et une bifurcation.

Soutenue le 18 décembre 2007
devant le jury composé de :

M.	Bernard Sapoval	Président	École Polytechnique, Palaiseau
M.	Stéphane Colin	Rapporteur	INSA Toulouse
M.	Marc Fermigier	Rapporteur	ESPCI Paris
M.	Matthias Heil	Invité	Université de Manchester (G.B.)
M.	Charles Baroud	Directeur de thèse	École Polytechnique, Palaiseau
M.	Emmanuel de Langre	Directeur de thèse	École Polytechnique, Palaiseau

Résumé

La dynamique de bouchons est étudiée expérimentalement dans des microcanaux de section rectangulaire fabriqués selon le procédé de lithographie molle. Les bouchons sont déplacés par de l'air introduit à pression constante et l'écoulement est enregistré par vidéomicroscopie. Deux géométries sont étudiées : le canal droit et la bifurcation en T. Dans le premier cas, on détermine le saut de pression dynamique aux interfaces de bouchons de liquide mouillant ou partiellement mouillant en calculant au préalable la dissipation visqueuse dans le volume des bouchons. Les résultats montrent des similarités avec les études réalisées en tube cylindrique : le saut de pression aux interfaces d'un bouchon de liquide mouillant suit une loi de puissance faisant intervenir le nombre capillaire à la puissance 2/3 tandis qu'en mouillage partiel, cette dépendance est plus complexe notamment en raison d'un seuil de pression lié à l'hystérésis des angles de contact. Le comportement de bouchons de liquide mouillant est ensuite étudié dans une bifurcation en T. Trois cas sont observés : la division, l'éclatement ou encore le blocage du bouchon à l'entrée du T. La pression de déblocage ainsi que le critère éclatement-division sont modélisés et discutés. Ce travail de thèse aboutit donc, pour l'écoulement diphasique considéré, aux lois de transport dans un microcanal droit ainsi qu'à la fonction de transfert à une bifurcation dans le cas du mouillage total. Combinés, ces résultats pourront être utiles à la modélisation du transport de gouttes dans un réseau de microcanaux à section rectangulaire.

Abstract

The dynamics of discrete slugs is investigated experimentally in microchannels with rectangular cross-sections. The slugs are driven by air introduced at constant pressure. Two geometries are considered : a straight channel and a T-shaped junction. For the straight case, we assume a bulk viscous dissipation of Poiseuille's kind and determine the dynamic pressure jump at the interfaces of slugs made of wetting or partially wetting liquid. The results show similarities with studies on cylindrical tubes. For the slugs of wetting liquid, the capillary pressure drop varies with the capillary number at the power 2/3 whereas in partial wetting, the relationship is more complex especially because of the existence of a threshold pressure due to contact angle hysteresis. Next, we study the behavior of a slug of wetting liquid at a T-shaped junction. Three behaviors are observed : the splitting, the rupture or the blockage of the slug at the entrance of the bifurcation. The corresponding threshold pressure and the rupture-splitting criterium are modelised. Last, the present work leads to the knowledge of propagation laws for slugs travelling in straight channels or crossing T-junctions. These results may be useful in understanding and modeling the dynamics of droplets inside networks of microchannels.

Remerciements

Je remercie Charles Baroud et Emmanuel de Langre, mes directeurs de thèse, pour leurs conseils, leur soutien et leur patience notamment dans la dernière ligne droite. Je remercie également le LadHyX pour son accueil : je suis heureux d'y avoir travaillé durant ces trois années de thèse. Je tiens à remercier Matthias Heil de l'université de Manchester au Royaume-Uni avec qui j'ai pu travaillé pendant la dernière année. Je souhaite souligner sa très grande disponibilité pour répondre à mes questions de débutant en calcul numérique.

Je remercie José Bico et Élise Lorenceau-Bossy pour leur aide au début et au milieu de la thèse, respectivement. Merci Daniel pour les coups de main informatiques (Linux, c'est super !), Pascal et Nathalie pour leurs conseils expérimentaux (dur dur les calculs d'erreur !), Antoine dit Tonio pour ses suggestions techniques. Merci à Alan et Laurentiu pour leurs explications théoriques ou numériques. Merci à toutes celles et tous ceux qui, un jour ou l'autre, ont eu la gentillesse de répondre à mes questions et/ou de m'aider au cours de ce travail (Cécile, Maher, Sedina, Maxime, Rémi, Lutz, Axel, Claire, Frédéric, Matthieu, Pantxika, les deux Pauls, Patrick, Jean-Marc, Antoine, Carlo, Joe, Charlotte, Anne-Virginie, Jérémie, Benoist, Thérèse et tou(te)s les autres que j'aurais oublié(e)s). J'espère avoir été aussi généreux.

Merci à Sabine Ortiz Clerc de m'avoir offert la possibilité d'encadrer les T.P. "Instabilités hydrodynamiques". Merci à William Gilbert du L.M.S. et à Tonio pour leur aide et leur disponibilité à préparer ces T.P..

Je remercie les membres du jury pour avoir accepté d'en faire partie et pour toutes leurs remarques et suggestions.

Je profite de ces remerciements pour saluer l'équipe de foot du Malcata de Palaiseau et les remercie de leur accueil pendant ces trois années.

Un grand merci pour leurs encouragements et leur compréhension à mes parents, ma soeur, mes grand-parents, mes amis et à Mamen.

Je remercie finalement Kim Parker mon responsable de stage de D.E.A. qui m'a donné le goût de la recherche scientifique.

"... Ainsi j'dédis ceci à tous ceux qui s'lèvent de bonne heure
En quête du bonheur mais malgré tout préservent leur honneur
Ils savent prendre sur eux-même et quelque soit leur humeur
Travaillent pour survivre même si p'tit à p'tit ils y meurent
Ils luttent pour être honnête, à la sueur de leurs fronts
S'acquittent de leurs dettes pour pas qu'on leurs fasse affront
C'est pas qu'ils ont baissés les bras, c'est plutôt la vie qu'ils affrontent
Gardent la tête haute pour pas qu'sur eux s'abattent la honte
Hin... j'dédie s'morceau, à ceux qui bossent comme des hommes
Pour nourrir leur famille, en quête du bonheur mais malgré tout préservent leur honneur
et j'di qu'il vaut mieux peu gagné honnêtement que beaucoup mal acquis ..."
Kerry James. Ce "a" d'avilissant. 2001.

Nomenclature

α	Coefficient géométrique de la loi de Poiseuille en section rectangulaire
η	Viscosité dynamique
Γ	Coefficient logarithmique intervenant dans la loi de Tanner
γ	Tension de surface
κ	Courbure
Λ	Rapport des viscosités Liquide/Air
λ	Rapport des dimensions w/h
θ	Angle de contact dynamique
θ_e	Angle de contact à l'équilibre
θ^{av}	Angle de contact à l'interface avant
θ^{ar}	Angle de contact à l'interface arrière
θ_a	Angle de contact statique d'avancée
θ_r	Angle de contact statique de recul
Bo	Nombre de Bond
Ca	Nombre capillaire
CF	Coefficient de friction
e_h	Épaisseur de film déposé dans l'épaisseur
e_w	Épaisseur de film déposé dans la largeur
h	Hauteur du canal
k	Coefficient du terme capillaire
k_B	Coefficient de la loi de Bretherton
k_T	Coefficient de la loi de Tanner
L	Longueur du bouchon

L_{ad}	Longueur du bouchon adimensionnalisée
L_{crit}	Longueur critique du bouchon entre éclatement et division
P_f	Pression de forçage adimensionnalisée
P_{cap}	Contribution capillaire adimensionnalisée
P_{seuil}	Pression seuil dans le canal droit
P_{visc}	Contribution visqueuse de type Poiseuille sans dimension
$\mathcal{P}_{blocage}$	Pression de (dé)blocage à la bifurcation
$\mathcal{P}_{cap}^{ar}$	Saut de pression à l'interface arrière
$\mathcal{P}_{cap}^{av}$	Saut de pression à l'interface avant
$\mathcal{P}_{visc}$	Contribution visqueuse de type Poiseuille avec dimension
$\mathcal{P}_{atm}$	Pression Atmosphérique
$\mathcal{P}_f$	Pression de forçage
R^{ar}	Rayon de courbure dans la largeur de l'interface arrière
R^{av}	Rayon de courbure dans la largeur de l'interface avant
R_{max}	Rayon de courbure principal maximal
R_{min}	Rayon de courbure principal minimal
Re	Nombre de Reynolds
V	Vitesse moyenne du bouchon
V_{crit}	Volume critique du bouchon entre éclatement et division
w	Largeur du canal (d'entrée)
w_o	Largeur du canal de sortie
We	Nombre de Weber
x_C	Position du centre de masse du bouchon
x_f	Position de l'interface avant
x_r	Position de l'interface arrière
y_{apex}	Position de l'apex de l'interface

Table des matières

1 Introduction **3**
- 1.1 Micro-écoulements diphasiques de bouchons . . . 3
- 1.2 Équilibre de l'interface entre deux fluides non miscibles . . . 7
- 1.3 Dynamique de la ligne de contact . . . 8
- 1.4 Problématique de la thèse . . . 10

2 Techniques et résultats expérimentaux **13**
- 2.1 Technique expérimentale . . . 13
  - 2.1.1 Les microcanaux . . . 13
  - 2.1.2 Les liquides . . . 15
  - 2.1.3 Le montage expérimental . . . 19
  - 2.1.4 Position et longueur d'un bouchon . . . 22
- 2.2 Dynamique de bouchons dans un microcanal droit . . . 23
  - 2.2.1 Protocole spécifique et premières observations . . . 23
  - 2.2.2 Observation de régimes stationnaires . . . 25
  - 2.2.3 Influence de la longueur et de la pression de forçage . . . 29
  - 2.2.4 Influence de la mouillabilité . . . 31
  - 2.2.5 Observations aux grandes vitesses . . . 35
  - 2.2.6 Conclusion . . . 38
- 2.3 Passage d'une bifurcation par un bouchon de liquide mouillant . . . 39
  - 2.3.1 Protocole spécifique . . . 39
  - 2.3.2 L'observation de trois comportements . . . 40
  - 2.3.3 Influence de la longueur et de la pression de forçage . . . 46
  - 2.3.4 Quelques traits de la cinématique . . . 48
  - 2.3.5 Conclusion . . . 49

3 Modélisation de la dynamique dans un canal droit **51**
- 3.1 Le régime visco-capillaire . . . 51
  - 3.1.1 Nombres adimensionnels . . . 51
  - 3.1.2 Le modèle visco-capillaire . . . 53
  - 3.1.3 Modélisation de la dissipation visqueuse . . . 53
  - 3.1.4 Calcul des dissipations aux interfaces . . . 55
- 3.2 Modélisation des contributions capillaires . . . 60

3.2.1 Modèle théorique pour le liquide mouillant 60
3.2.2 Modèle empirique en mouillage partiel 65
3.3 Lois de transport en microcanal 67
3.3.1 Lois de transport 67
3.3.2 Application 68
3.3.3 Extrapolation à deux bouchons de liquide mouillant 69
3.4 Conclusion 70

4 Modélisation de la traversée d'une bifurcation 73
4.1 La pression de blocage 73
4.1.1 Formes des interfaces du bouchon en blocage 73
4.1.2 Rappel sur la stabilité d'une goutte 74
4.1.3 Modélisation de la pression de blocage 75
4.1.4 Précision du modèle : calcul numérique 76
4.2 La transition division-éclatement 80
4.2.1 Hypothèses géométriques 80
4.2.2 Hypothèse dynamique et modèle 81
4.3 Comparaison avec les résultats expérimentaux 83
4.3.1 La transition division-éclatement 83
4.3.2 La pression de blocage 86
4.4 Conclusion 88

5 Conclusion et perspectives 89

Bibliographie 91

Annexes 97

A Les microcanaux 97
A.1 Composition 97
A.2 Fabrication 97
A.3 Dimensions et forme 100
A.4 Perméabilité du PDMS aux gaz 101

B Détermination de la température dans le microcanal 103

C Calcul numérique de la forme de l'interface avant en blocage 107
C.1 The problem 108
C.2 Spine-based representation of the meniscus 109
C.3 The variational meniscus shape equation 110
C.4 Numerical approach 111
C.5 Results : maximal curvatures 113

D Communications 115

Chapitre 1

Introduction

1.1 Micro-écoulements diphasiques de bouchons

Les techniques de photolithographie issues de la microélectronique ont abouti à la fabrication de microcanaux dans lesquels, des fluides ou des suspensions sont manipulés aisément et en faibles quantités (Brody *et al.*, 1996). Les applications de ces écoulements microfluidiques concernent notamment les domaines de la chimie, de la biologie (Squires & Quake, 2005), ou encore de l'énergie (Cubaud & Ho, 2004).

Les dimensions transversales typiques des microcanaux sont de l'ordre de la dizaine de microns, et les nombres de Reynolds associés aux écoulements microfluidiques sont généralement inférieurs à l'unité (Brody *et al.*, 1996; Squires & Quake, 2005; Stone *et al.*, 2004). Dans ces conditions, l'inertie du fluide étudié peut être négligée, et l'écoulement dans un microcanal est régi par l'équation de Stokes,

$$\nabla p = \eta \Delta v, \tag{1.1}$$

où p est la pression dans le fluide, η et v étant respectivement sa viscosité et sa vitesse (Brody *et al.*, 1996). Associées à cette équation, l'équation de continuité, $\nabla v = 0$, et l'hypothèse de non-glissement à la paroi conduisent, pour des géométries simples, à la connaissance du champ de vitesses v et de la distribution des pressions p dans le fluide, liquide ou gaz. Pour ce dernier, la condition de non-glissement à la paroi se justifie en effet tant que la dimension du microcanal est supérieure à la dizaine de microns (Gad-el-Hak, 1999; Stone *et al.*, 2004). En microfluidique, l'écoulement monophasique d'un fluide est donc laminaire pour des valeurs du nombre de Reynolds inférieures à 100 (Stone *et al.*, 2004).

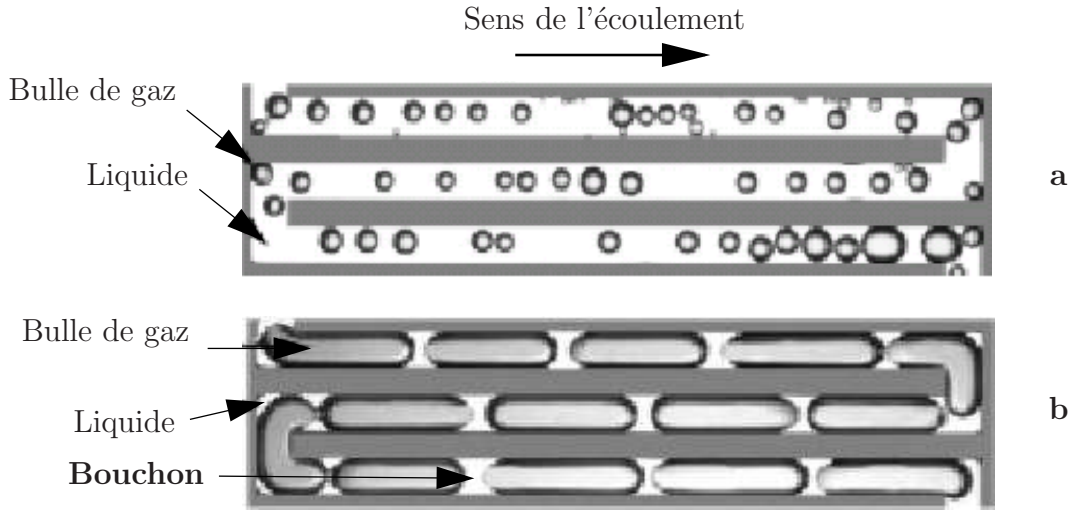


FIG. 1.1: Deux exemples d'écoulements diphasiques liquide-gaz dans des microcanaux de section carrée (Cubaud & Ho, 2004). **a**- Écoulement de bulles de gaz dans un liquide porteur. **b**- Écoulement de bouchons.

La rencontre de deux écoulements monophasiques de fluides non miscibles à la jonction de microcanaux produit un écoulement diphasique dans lequel les deux fluides sont séparés par des interfaces d'une dizaine de nanomètres d'épaisseur (Dussan, 1979). De tels écoulements sont plus complexes que leurs homologues monophasiques car les interfaces induisent, malgré leur faible épaisseur, des phénomènes interfaciaux non linéaires (Squires & Quake, 2005). La compétition entre ces derniers et les effets visqueux de l'écoulement à bas Reynolds est quantifiée par le nombre capillaire, Ca, défini par

$$Ca = \frac{\eta V}{\gamma}, \tag{1.2}$$

où γ est la tension interfaciale, et V, une vitesse typique de l'écoulement. Par ailleurs, les nombres de Bond ($Bo = \rho g h^2/\gamma$, où ρ et g sont respectivement la masse volumique du liquide considéré et l'accélération de la pesanteur, et h une dimension caractéristique) sont petits devant l'unité : l'effet de la gravité sur les interfaces est négligeable.

Différents régimes peuvent être observés en variant les débits d'introduction des deux fluides constituant l'écoulement diphasique (Cubaud & Ho, 2004; Triplett *et al.*, 1999; Günther *et al.*, 2005). La figure 1.1 illustre deux de ces régimes pour un système liquide-gaz : il s'agit des écoulements de gouttes et de bouchons, ici observés par Cubaud & Ho (2004) dans des microcanaux de section carrée. Dans le premier cas (Fig. 1.1-a), les gouttes ou bulles de gaz sont transportées par un liquide porteur. Lorsqu'on augmente le débit de gaz, on passe d'un écoulement de gouttes à celui de bouchons (Fig. 1.1-b). Dans

cette configuration, les bulles de gaz sont allongées et un bouchon de liquide sépare deux bulles consécutives : l'écoulement est dit segmenté (Günther *et al.*, 2005). Pour les deux régimes, la présence du gaz dans le liquide, pourtant moins visqueux, engendre paradoxalement des dissipations qui peuvent être plus importantes que celles dues à l'écoulement monophasique du liquide seul (Triplett *et al.*, 1999). Les mêmes observations sont faites pour des microcanaux de section circulaire (Serizawa *et al.*, 2002).

Le nombre capillaire est utile pour caractériser les écoulements diphasiques microfluidiques (Stone *et al.*, 2004). Lorsque le nombre capillaire est inférieur à $10^{-6} - 10^{-5}$, les écoulements diphasiques sont généralement considérés comme quasistatiques (Dong & Chatzis, 1995; Bico & Quéré, 2002*a*; Ajaev & Homsy, 2006). Ainsi, pour le système liquide-gaz considéré précédemment, la pression du liquide autour d'une bulle de gaz, notée $\mathcal{P}_l$, est uniforme tout comme la pression dans le gaz, $\mathcal{P}_g$. L'interface de la bulle a donc une courbure moyenne κ qui est constante et que l'on peut relier au saut de pression à l'interface $\mathcal{P}_g - \mathcal{P}_l$ par la loi de Laplace selon

$$\mathcal{P}_g - \mathcal{P}_l = \gamma\kappa. \tag{1.3}$$

Lorsque $10^{-6} < Ca < 10^{-2} - 10^{-1}$, les effets visqueux dans le liquide ne sont plus négligeables. La distribution des pressions et le champ de vitesses dans le liquide sont modifiés, et les contraintes visqueuses associées déforment les interfaces. La forme des interfaces, qui est issue d'un équilibre entre ces contraintes et la tension de surface γ, s'en trouve altérée et perd son caractère sphérique. Pour ces valeurs du nombre capillaire, les déformations restent néanmoins localisées, et loin des régions à fort cisaillement, la tension de surface contrôle la forme de l'interface, et la courbure est constante (Chebbi, 2003).

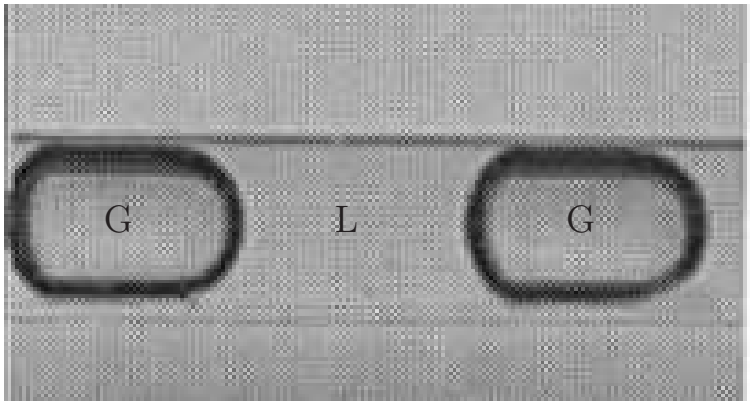


FIG. 1.2: Bouchon de liquide (L) en déplacement et entouré de deux bulles de gaz (G) (Triplett *et al.*, 1999).

Ces interactions entre viscosité et tension de surface sont visibles dans les écoulements de bouchons. La photographie de la figure 1.2 présente la forme typique d'un bouchon de liquide entre deux bulles de gaz. Ces dernières sont plus courtes que celles de la figure 1.1-b, mais leur longueur reste supérieure aux dimensions transverses du canal. La photographie met en évidence la forme assymétrique du bouchon et des bulles : la courbure des interfaces est modifiée près des parois du microcanal, à l'avant et à l'arrière du bouchon, en raison des fortes contraintes qui ont lieu dans ces régions confinées ; loin des parois, la courbure reste constante, bien que différente entre l'avant et l'arrière du bouchon.

Notons que la présence interfaces dans les écoulements de bouchons provoque des zones de recirculations qui peuvent être intéressantes pour les applications de mélange en microfluidique. Les bouchons constituent donc un écoulement adéquat pour mélanger deux liquides miscibles (Günther *et al.*, 2005). En guise d'illustration, on présente sur la figure 1.3-a une mesure expérimentale du champ de vorticité dans un bouchon obtenu par les auteurs précédents par une méthode P.I.V. (Particle Image Velocimetry).

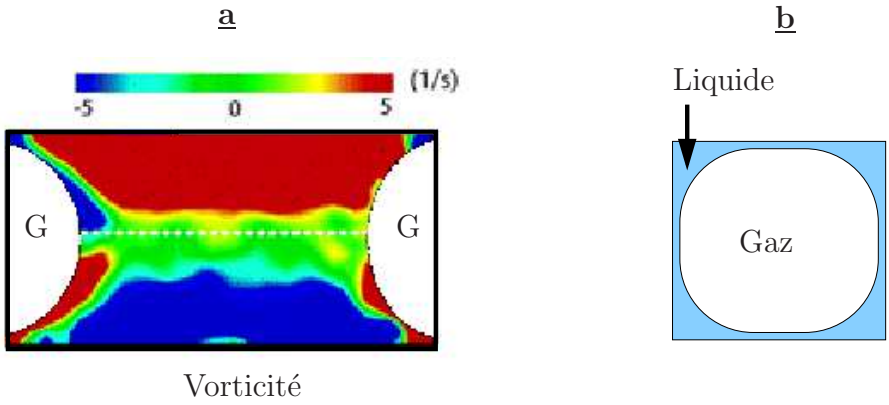


FIG. 1.3: Quelques caractéristiques de l'écoulement de bouchons dans un microcanal de section carrée (Günther *et al.*, 2005). **a-** Des zones de recirculation existent dans le bouchon. En mesurant par P.I.V. (Particle Image Velocimetry) le champ des vecteurs vitesse dans le bouchon en écoulement, les auteurs ont mesuré la vorticité, qui est notamment importante dans les régions confinées entre les interfaces et les parois du canal. **b-** Le schéma illustre la présence de liquide, autour des bulles de gaz et dans les coins du microcanal.

La figure 1.3-b illustre une autre caractéristique de l'écoulement de bouchons : la présence possible de liquide dans les coins du microcanal entre les bulles et la paroi. Le liquide n'est pas toujours présent entre les bulles et les parois et des écoulements de bouchons distincts peuvent être observés (Cubaud & Ho, 2004) : l'existence de liquide entre les bulles et les parois dépend de la vitesse de l'écoulement mais aussi des propriétés de mouillage du liquide utilisé et de la géométrie.

1.2 Équilibre de l'interface entre deux fluides non miscibles

Les propriétés de mouillage d'un liquide, qui définissent le comportement d'un liquide l sur un substrat solide s en présence d'un gaz[1] g, dépendent des forces moléculaires entre les différentes phases. Ces forces s'exercent à la ligne de contact, le lieu de rencontre des trois phases, et peuvent être modélisées macroscopiquement par des énergies interfaciales. La loi d'Young, qui établit l'équilibre thermodynamique de la ligne de contact, s'écrit

$$\gamma \cos\theta_e = \gamma_{gs} - \gamma_{ls}, \tag{1.4}$$

où γ_{ij} représente l'énergie de l'interface entre les phases i et j. L'angle de contact θ_e, illustré sur la figure 1.4, est défini entre la tangente locale à l'interface liquide-gaz et la paroi. L'angle de contact est un critère qui permet de caractériser les propriétés de mouillage d'un liquide. Pour un solide et un gaz donnés, un liquide dit mouillant s'étale spontanément sur le substrat si l'angle de contact est nul. Il est dit non mouillant pour $\theta_e = \pi$ et partiellement mouillant dans les autres situations (Ajaev & Homsy, 2006). Dans ce cas, il n'y a pas d'étalement et le liquide reste sous forme de goutte compacte à l'image de celle de la figure 1.4.

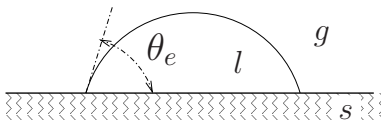
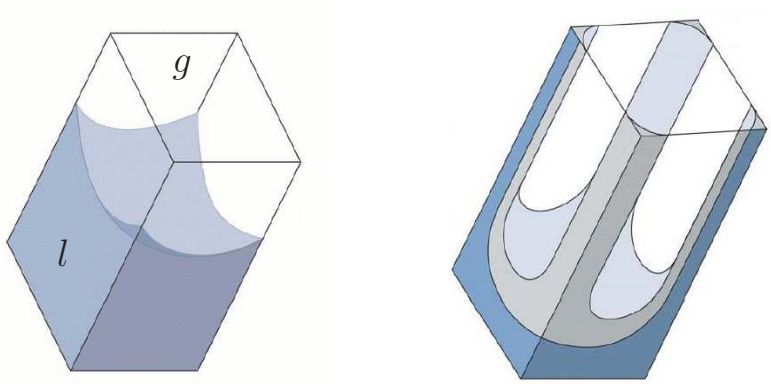


FIG. 1.4: Equilibre d'une goutte sur un substrat : lorsqu'un liquide (l) mouille partiellement un solide (s) en présence d'une phase gazeuse (g), il forme une goutte compacte dont la courbure est constante en l'absence de gravité. L'interface fait avec le substrat un angle de contact θ_e, dont la valeur est donnée par la loi d'Young (Eq. 1.4). Lorsque l'angle de contact est nul, le liquide est dit mouillant : l'équilibre sous forme de goutte n'est pas possible et le liquide s'étale spontanément.

Dans un microcanal de section carrée, la condition d'équilibre statique d'une interface est différente de celle donnée par la loi d'Young, et le liquide peut s'étaler par les coins du microcanal pour des valeurs de l'angle de contact non nulles. De telles observations ont été faites par Concus & Finn (1974) : ces auteurs ont montré mathématiquement, en étudiant la loi de Laplace associée à des conditions aux limites sur θ_e, que l'équilibre de l'interface dans le canal carré n'est possible que si $\theta_e > \pi/4$. L'interface adopte alors une forme telle que celle de la figure 1.5-a. Lorsque $\theta_e < \pi/4$, le liquide est présent dans les coins. Ce cas est illustré sur la figure 1.5-b.

[1] On considérera simplement le cas d'un système liquide-gaz qui est celui qui nous intéresse dans la suite.



a b

FIG. 1.5: Formes d'une interface dans un tube de section carrée (Concus & Finn, 1974; Ajaev & Homsy, 2006). Deux formes typiques existent selon la valeur de l'angle de contact et la section du tube (carrée, pentagonale, ...). Pour la géométrie carrée, lorsque l'angle de contact est supérieur à $\pi/4$, des lignes de contact bien définies sont présentes (**a**). Dans le cas contraire (**b**), le liquide part dans les coins du microcanal : la condition d'étalement dans les coins d'un microcanal est différente de la condition d'étalement sur un substrat plan ($\theta_e = 0$).

1.3 Dynamique de la ligne de contact

La dynamique de bouchons dans des microcanaux de section rectangulaire, et en particulier l'influence des phénomènes de mouillage introduits dans le paragraphe précédent sur cette dynamique, sont encore peu connues. Les bouchons ont néanmoins fait l'objet de plusieurs études en géométrie circulaire qui ont montré que la dynamique est régie par des phénomènes visqueux et des mécanismes de mouillage dynamique aux interfaces (Bico & Quéré, 2001). La littérature sur les bouchons ou les interfaces en géométrie circulaire ou sur substrat plan est riche car le sujet a mobilisé les géologues des milieux poreux pour l'extraction du pétrole (Sahimi, 1993), les physico-chimistes (de Gennes, 1998) ou encore les biomécaniciens du poumon (Grotberg, 2001). Ces études sont utiles pour l'appréhension des phénomènes de mouillage dynamique en géométrie rectangulaire.

La dynamique du mouillage, ou la dynamique de la ligne de contact, est un sujet complexe : elle dépend notamment du type de liquide utilisé, du sens de déplacement de la ligne de contact ainsi que de l'hétérogénéité du substrat. Par exemple, pour un bouchon de liquide mouillant, on peut observer différents comportements des interfaces du bouchon et la figure 1.6-a illustre les mécanismes observés par Bico & Quéré (2001) dans un tube circulaire : à l'avant, il y a présence d'un angle de contact qui varie en fonction de l'écoulement et qui prend donc une valeur dynamique non nulle notée θ ; à l'arrière, la ligne de contact est absente car un film de liquide est déposé sur les parois du tube.

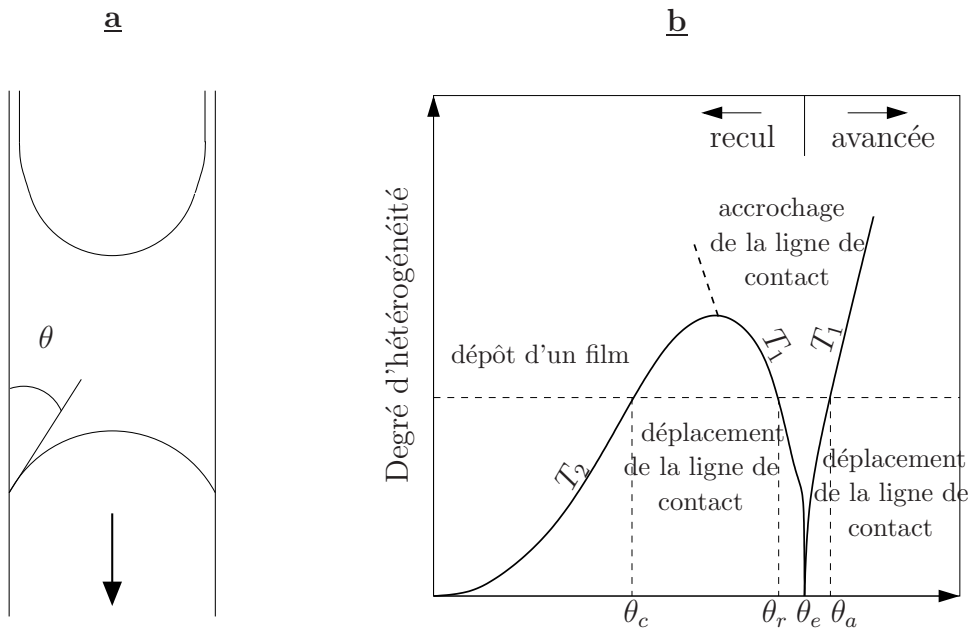


FIG. 1.6: **a**- Bouchon de liquide mouillant tombant par gravité dans un tube circulaire (Bico & Quéré, 2001). L'écoulement de liquide dans le bouchon génère à l'interface avant un angle de contact dynamique θ non nul. A l'arrière, un film de liquide est déposé sur les parois du tube. **b**- Cas du mouillage partiel : diagramme adapté de Golestanian (2004) qui montre les régimes possibles en fonction de l'angle de contact dynamique θ et de l'hétérégonéité du substrat plan. Ici, le déplacement de la ligne de contact est observé lorsque les angles de contact statiques d'avancée (θ_a) et de recul (θ_r) sont atteints. Lorsque $\theta < \theta_c$, on assiste au dépôt d'un film liquide sur le substrat. Les transitions T_1 et T_2 sont ici obtenues à partir de modèles de type hydrodynamique (Golestanian, 2004).

En mouillage partiel, le comportement des interfaces et des lignes de contact est plus complexe. Le diagramme de phases 1.6-b, adapté d'une étude de Golestanian (2004), est utile pour présenter quelques régimes de la ligne de contact sur un substrat plan dans le cas du mouillage partiel : trois régimes y sont reportés en fonction de l'hétérogénéité du substrat et de l'angle de contact dynamique θ. Le premier régime est l'accrochage de la ligne de contact pour $\theta \in [\theta_r - \theta_a]$, intervalle qui comprend l'angle de contact à l'équilibre θ_e (voir Fig. 1.6-b). Ici, θ_r et θ_a sont respectivement les angles de contact statiques de recul et d'avancée : la ligne de contact avance si $\theta > \theta_a$ ou recule si $\theta < \theta_r$; elle reste immobile sinon. Ce phénomène, propre aux liquides partiellement mouillants est appelé hystérésis des angles de contact (Dussan, 1979; Rolley & Guthmann, 2007). Sur une surface idéale, il n'y a pas d'hystérésis et la ligne de contact se déplace dès que $\theta \neq \theta_e$. A l'inverse, l'intervalle d'accrochage s'élargit lorsque l'hé-

térogénéité du substrat augmente. Le déplacement de la ligne de contact constitue le second régime et se traduit par l'avancée ou le recul de l'interface. La valeur de l'angle de contact dynamique varie avec la vitesse de déplacement de la ligne de contact (Cox, 1986; Prevost *et al.*, 1999). Le troisième régime apparaît lors du recul d'une interface lorsque l'angle de contact devient inférieur à une certaine valeur, notée θ_c (Fig. 1.6-b) : le liquide dépose un film et la ligne de contact disparaît, comme pour les liquides mouillants. Finalement, remarquons que les transitions du diagramme 1.6-b peuvent être obtenues à partir de modèles théoriques basés sur des dissipations visqueuses hydrodynamiques ou bien sur des phénomènes d'accrochage sur des défauts de la ligne de contact (Golestanian, 2004).

1.4 Problématique de la thèse

Certains des phénomènes précédents ont été observés en géométrie rectangulaire. On peut mentionner le travail de Coney & Masica (1969) pour l'étude de l'angle de contact dynamique (Chebbi, 2003), ou encore la prise en considération de l'hystérésis des angles de contact pour la mise en déplacement de bouchons de liquide partiellement mouillant par Handique *et al.* (2001). Néanmoins, les études sur les bouchons en canal rectangulaire restent peu nombreuses et le rôle des phénomènes de mouillage dans la dynamique de l'écoulement diphasique demeure une question ouverte.

Jusqu'à présent, les microfluidiciens ont davantage orienté leurs travaux vers les gouttes et les bulles en raison des nombreuses applications potentielles : production et contrôle d'émulsions, réactions chimiques dans les gouttes, encapsulation de molécules,... (Garstecki *et al.*, 2005). L'intérêt pratique des bouchons des écoulements segmentés semble avoir été perçu plus tardivement. Les études citées précédemment, qui ont mis en évidence différents régimes d'écoulements diphasiques en microcanal, n'ont pas pleinement caractérisé les écoulements de bouchons observés : elles se sont plutôt penchés sur la question des transitions et ont utilisé des méthodes issues des écoulements multiphasiques des échelles classiques (Triplett *et al.*, 1999). Ainsi, même si l'influence des propriétés de mouillage a été abordée (Cubaud & Ho, 2004), le nombre capillaire reste peu employé pour caractériser les écoulements de bouchons, contrairement aux travaux sur les gouttes. D'autre part, les physiciens du mouillage ont caractérisé théoriquement et expérimentalement la dynamique des bouchons dans des tubes de section circulaire (Bico & Quéré, 2002*b*). Leurs recherches passées trouvent aujourd'hui une nouvelle application avec la microfluidique mais malheureusement peu d'études ont été consacrées à la géométrie rectangulaire. Or, comme l'ont montré Concus & Finn (1974), des différences entre les deux géométries existent.

Ces remarques peuvent être étendues à des géométries plus complexes comme les bifurcations, et la figure 1.7 donne un aperçu de l'état de l'art actuel : en microfluidique, les gouttes ont fait l'objet de plus d'attention que les bouchons les séparant ; la dynamique de bouchons a par ailleurs été étudiée en géométrie circulaire, mais l'adaptation de ces travaux à la géométrie rectangulaire reste absente.

Dans le but d'établir les mécanismes impliqués dans le déplacement de bouchons en microcanal et de comprendre les spécificités de la géométrie rectangulaire, une étude expérimentale et de modélisation a été menée.

Des microcanaux de section rectangulaire ont été fabriqués suivant les techniques couramment utilisées en microfluidique et un montage expérimental a été développé afin de suivre le déplacement de bouchons de liquides mouillant et partiellement mouillants dans ces microcanaux. Par souci de simplicité, l'écoulement diphasique considéré a été l'écoulement discret de bouchons de liquide individuels contrairement aux écoulements continus généralement rencontrés dans la littérature. De plus, on a choisi l'air comme deuxième fluide de l'écoulement. Ainsi, on observe le déplacement d'un seul bouchon à la fois et celui-ci est entouré de part et d'autre par deux bulles d'air que l'on peut voir comme étant infiniment longues.

Les bouchons ont été forcés à pression imposée. Une première étude a été consacrée à la propagation de bouchons dans des microcanaux droits. Par rapport à d'autres techniques comme le soufflage du verre par exemple, la mise en oeuvre des techniques de fabrication des microcanaux est simple, et cette relative simplicité a été mise à profit pour caractériser dans un deuxième temps, le transport de bouchons de liquide mouillant dans une bifurcation en T.

Combinés, les résultats obtenus pour chaque géométrie pourront éventuellement conduire à des lois de transport utiles pour la modélisation d'écoulements diphasiques dans des réseaux microfluidiques, industriels ou naturels.

Le chapitre 2 présente le protocole expérimental ainsi que les résultats expérimentaux obtenus avec les deux géométries : la section 2.2 est consacrée au transport de bouchons de liquide mouillant et partiellement mouillants dans un microcanal droit tandis que dans la section 2.3.2, on présente les observations du passage d'un bouchon de liquide mouillant dans une bifurcation en T. On analyse et modélise ensuite les résultats propres à chaque géométrie dans les chapitres 3 et 4.

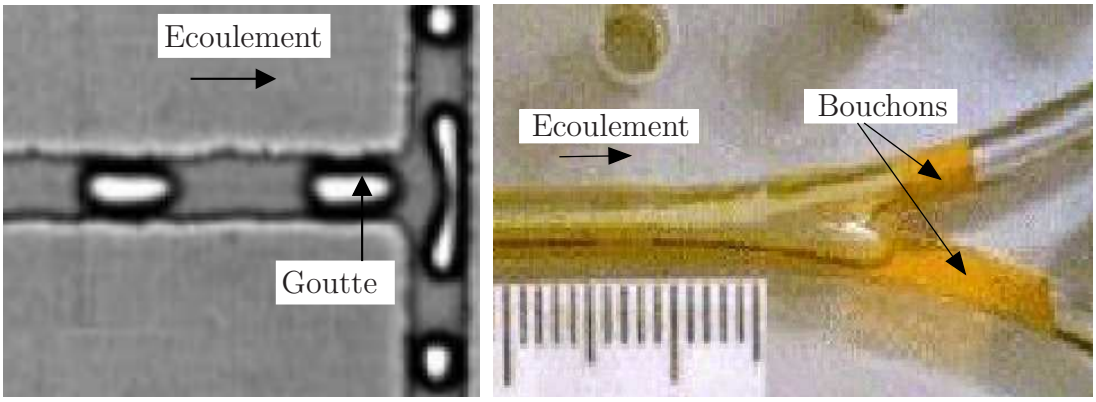


FIG. 1.7: Aperçu de l'état de l'art avec l'exemple des bifurcations. En microfluidique, l'attention a plus été portée sur les gouttes que sur les bouchons [à gauche, une série de gouttes et de bouchons traversant une bifurcation en T, permettant de réduire et contrôler la taille des gouttes, Link *et al.* (2004)]. Le déplacement de bouchons individuels a fait l'objet de travaux dans des tubes circulaires mais leur adaptation à des sections rectangulaires des microcanaux est encore absente [à droite, la propagation de deux bouchons de liquide après la division d'un bouchon dans une bifurcation, Zheng *et al.* (2005)].

Chapitre 2

Techniques et résultats expérimentaux

Dans ce chapitre, on présente les résultats expérimentaux obtenus lors du déplacement à pression constante de bouchons individuels dans des microcanaux. Deux géométries sont étudiées : la première géométrie, illustrée sur la figure 2.1-a, correspond à un microcanal droit ; dans la deuxième géométrie, deux microcanaux droits se croisent perpendiculairement formant ainsi une bifurcation en T (Fig. 2.1-b). Pour le cas du canal droit, des bouchons de liquides mouillant et partiellement mouillants sont étudiés. Dans les expériences sur la bifurcation, seul le cas mouillant est abordé. Pour chaque géométrie, les bouchons sont forcés à pression constante par de l'air qui constitue la deuxième phase de l'écoulement diphasique discret. Dans la section 2.1, on introduit la technique expérimentale, à savoir les caractéristiques des microcanaux et des liquides utilisés, ainsi que le montage expérimental et les méthodes de mesure. Les observations et les résultats des expériences sur le canal droit et la jonction en T sont présentés ensuite dans les sections 2.2 et 2.3. On détaille dans ces sections les protocoles spécifiques à chaque géométrie.

2.1 Technique expérimentale

2.1.1 Les microcanaux

Les microcanaux utilisés dans les expériences sont fabriqués selon les techniques de lithographie molle, couramment utilisées en microfluidique (Xia & Whitesides, 1998; Quake & Scherer, 2000). Les microcanaux sont obtenus à partir d'un polymère, le polydiméthylsiloxane (PDMS). Le protocole de fabrication est détaillé dans l'annexe A.2.

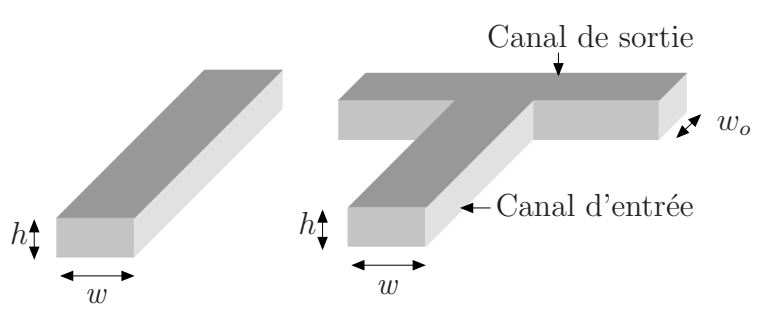


FIG. 2.1: Le transport de bouchons est étudié expérimentalement dans deux géométries : un microcanal droit et une bifurcation en T, constituée d'un canal d'entrée et d'un canal de sortie. Les canaux ont des sections rectangulaires. La largeur du canal droit (et du canal d'entrée) est notée w et sa hauteur h. Les dimensions du canal de sortie sont $w_o \times h$. Seul le cas complètement mouillant est étudié dans la jonction en T.

Le principe en est le suivant : on verse le polymère liquide mélangé à un agent réticulant sur un moule comportant les empreintes des futurs microcanaux. Ces empreintes, qui sont des structures tridimensionnelles, sont préalablement gravées sur un disque en silicium par des procédés de photolithographie à partir de résine photosensible. Un agent réticulant, qui établit des liaisons chimiques entre les chaînes du polymère, est responsable de la solidification de ce dernier lors de sa cuisson dans un four. Le polymère est ensuite démoulé et des trous sont percés dans la pièce obtenue pour l'introduction ultérieure de fluides dans le microcanal. La pièce de polymère réticulé est finalement collée contre une lame de microscope en verre, sur laquelle on a étalé auparavant une fine couche de mélange polymère-réticulant. Cette précaution assure aux quatre parois du microcanal des compositions chimiques, et donc des propriétés de mouillabilité, voisines (voir Ann. A.2). On obtient une puce microfluidique illustrée sur la figure 2.2. Le PDMS étant transparent, il est possible de deviner les trous par lesquels les fluides sont introduits de l'extérieur.

Les dimensions des canaux sont définies dans les étapes de conception et de fabrication du moule. La déformabilité du PDMS lui permet d'épouser les structures du moule, et les différences entre les dimensions du moule et celles des canaux sont inférieures au micron (Xia & Whitesides, 1998). La fabrication des structures en résine photosensible demande donc la plus grande précision.

Les mesures de profils de ces structures, réalisées sur un profilomètre et présentées dans l'annexe A.3, montrent que la section des microcanaux est plutôt trapézoïdale. Elle peut être approchée par une section rectangulaire équivalente de largeur w et de hauteur h (voir Fig. 2.1). Typiquement, pour les microcanaux utilisés dans les expériences, $h \simeq 25 - 60$ μm et $w \simeq 200 - 300$ μm. La longueur des microcanaux est de l'ordre du centimètre.

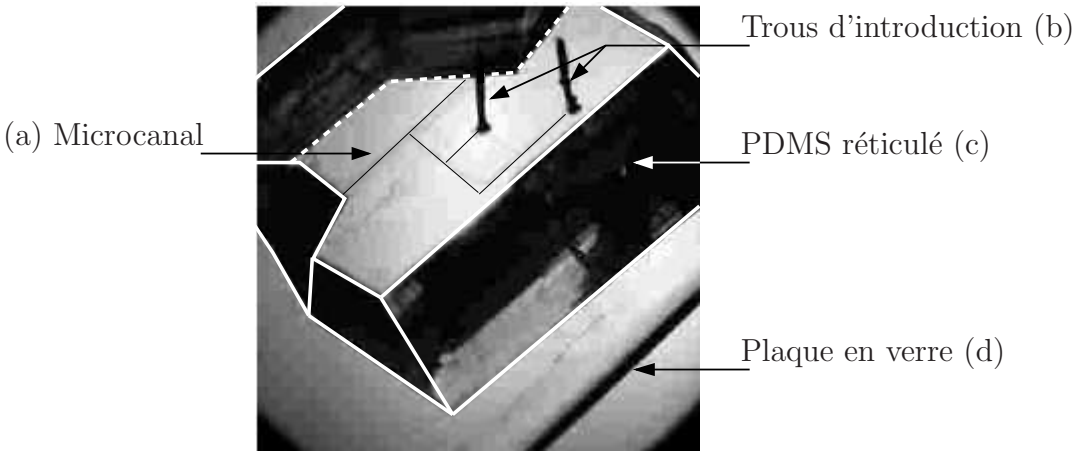


FIG. 2.2: La puce microfluidique contient le microcanal (a) utilisé dans les expériences sur les bifurcations (le microcanal a été dessiné par souci de clarté). La puce microfluidique est obtenue suite au collage du bloc de polymère réticulé (c), avec une lame de microscope (d). Le polymère utilisé est le polydiméthysiloxane (PDMS). Des trous (b) sont percés préalablement dans le PDMS en vue d'introduire les fluides dans le microcanal. De même, la lame a été recouverte d'une fine couche de polymère avant le collage, afin que les parois du microcanal aient des propriétés de mouillabilité voisines (voir le protocole détaillé dans l'annexe A.2). Les sorties de la bifurcation sont à pression ambiante.

2.1.2 Les liquides

Deux types de liquide sont employés : un liquide qui mouille le PDMS en présence d'air et deux liquides qui mouillent partiellement le PDMS en présence d'air.

La figure 2.3 présente des bouchons de liquides mouillant et partiellement mouillant au repos dans un microcanal en PDMS. Le liquide mouillant est un liquide fluoré, la perfluorodécaline (PFD), de formule chimique $C_{10}F_{18}$. Le liquide partiellement mouillant est de l'eau. Les propriétés de mouillage des deux liquides sont mises en évidence sur la figure 2.3 par la forme des interfaces et l'estimation de l'angle de contact à l'équilibre, θ_e (Chap. 1). Le liquide mouillant (Fig. 2.3-a1), qui a une affinité avec le PDMS, voit la concavité de ses interfaces orientée vers l'intérieur du bouchon. Son angle de contact est petit et on supposera que le liquide mouille complètement le PDMS, soit $\theta_e \simeq 0^\circ$. En contraste, le liquide partiellement mouillant "fuit" le PDMS, hydrophobe en raison de la présence de groupes alkyles (Fig. 2.3-a2). La concavité des interfaces est orientée vers les sorties du microcanal et l'angle de contact est supérieur à 90°, en accord avec les valeurs de la littérature, $\theta_e \simeq 112 - 114^\circ$ (Ginn & Steinbock, 2003; He *et al.*, 2003).

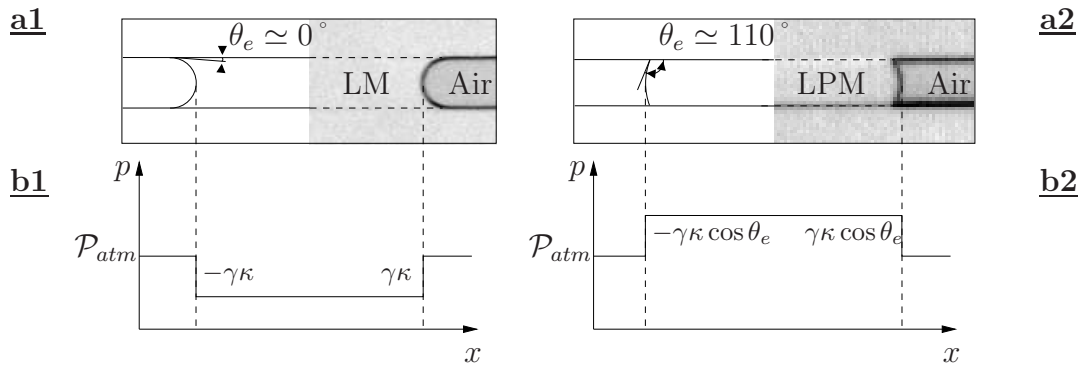


FIG. 2.3: Les figures du haut (a) sont des photos obtenues à l'aide d'un microscope et des schémas de bouchons de liquides mouillant (LM, a1) et partiellement mouillant (LPM, a1) au repos dans un microcanal. Elles montrent la forme des interfaces dans les deux cas, ainsi que les angles de contact. Pour le LM, l'angle de contact θ_e est proche de 0° tandis qu'il est supérieur à 90° pour le LPM. Les figures du bas (b) montrent la pression p dans le canal en fonction de la position x. Les courbures moyennes des interfaces (respectivement $\kappa = 2/h + 2/w$ pour le LM et $\kappa\cos\theta_e$ pour le LPM) permettent de calculer les sauts de pression aux interfaces par la loi de Laplace. Le LPM est en surpression (b2) tandis que le LM est en dépression (b1) par rapport à l'air à pression ambiante $\mathcal{P}_{atm}$.

L'extrapolation des observations de Concus & Finn (1974) à la géométrie rectangulaire laisse à penser que le liquide mouillant tend à s'étaler sur les parois et dans les coins du microcanal, comme pour le cas de la figure 1.5-b du chapitre 1. Le bouchon de liquide partiellement mouillant possède quant à lui des lignes de contact bien définies et les coins du microcanal restent secs (Fig. 1.5-a, Chap. 1).

Les illustrations des figures 2.3-a, qui sont des vues du dessus des bouchons, ne permettent pas de connaître la forme des interfaces dans l'épaisseur du microcanal. La figure 2.4 schématise en perspective l'une des interfaces d'un bouchon partiellement mouillant dans un microcanal. Les pressions dans le liquide et le gaz étant constantes, la courbure moyenne de l'interface est constante et l'interface est, pour cette situation de mouillage, une portion de sphère. Les angles de contact peuvent être définis comme étant les angles entre les tangentes à l'interface et les parois du microcanal. On supposera que les angles de contact sont les mêmes dans l'épaisseur que ceux visualisés sur les vues de dessus de la figure 2.3. Cette remarque est également valable pour le cas mouillant.

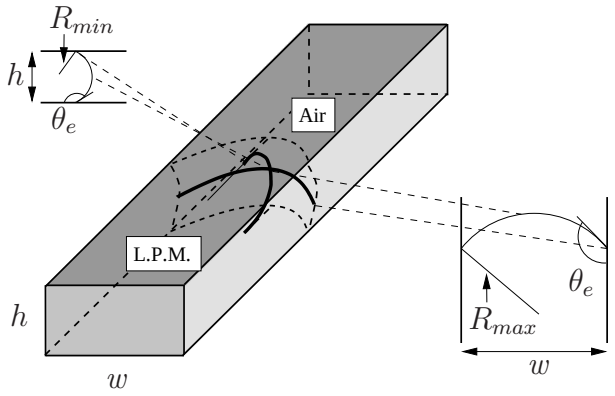


FIG. 2.4: Dans le cas partiellement mouillant, l'interface est une portion de sphère (courbure constante). L'interface possède deux rayons de courbure principaux, un dans l'épaisseur du microcanal, $R_{min} = h/(2\cos\theta_e)$, et un dans la largeur, $R_{max} = w/(2\cos\theta_e)$. Les angles de contact sont supposés être identiques dans l'épaisseur et la largeur du microcanal.

La courbure de l'interface de la figure 2.4 peut être obtenue à partir de ses rayons de courbure principaux, pris à l'apex, qui est le sommet de l'interface. Le rayon de courbure dans l'épaisseur est le rayon de courbure minimal et vaut $h/(2\cos\theta_e)$. Le rayon de courbure dans la largeur est le rayon de courbure maximal et vaut quant à lui $w/(2\cos\theta_e)$. La courbure moyenne d'une interface du bouchon de liquide partiellement mouillant vaut donc $(2/h + 2/w)\cos\theta_e$. En définissant

$$\kappa = \frac{2}{h} + \frac{2}{w}, \tag{2.1}$$

et en utilisant la loi de Laplace (Eq. 1.3, Chap. 1), le saut de pression aux interfaces d'un bouchon de liquide partiellement mouillant s'écrit (Handique *et al.*, 2001),

$$\mathcal{P}_l - \mathcal{P}_g = -\gamma\kappa\cos\theta_e, \tag{2.2}$$

où $\mathcal{P}_g$ et $\mathcal{P}_l$ sont les pressions dans l'air et le liquide.

En fait, κ est la courbure moyenne approchée de l'interface d'un bouchon de liquide mouillant (Lenormand, 1983) et on obtient dans ce cas le saut de pression à l'interface comme

$$\mathcal{P}_l - \mathcal{P}_g \simeq -\gamma\kappa. \tag{2.3}$$

Les équations 2.2 et 2.3 permettent de connaître les pressions dans les liquides et le canal. Le liquide partiellement mouillant est en surpression (Fig. 2.3-b2) tandis que le liquide mouillant est en dépression (Fig. 2.3-b1), par rapport à l'air à pression ambiante $\mathcal{P}_{atm}$.

Les deux liquides présentés ci-dessus, la perfluorodécaline et l'eau, seront utilisés dans les expériences. On les appelera respectivement "LM" et "LPM 1". Un deuxième liquide partiellement mouillant ("LPM 2"), plus visqueux, sera utilisé dans la géométrie droite : il s'agit d'une solution aqueuse de glycérol (60% glycérol-40% eau en masse). La forme d'un bouchon de cette solution dans un microcanal est similaire à celle du bouchon d'eau de la figure 2.3-a2. Les angles de contact des deux liquides sont voisins mais leur valeur précise n'a pas été determinée. L'angle de contact dépendant de la chimie du système liquide-air-PDMS, il est probable que leur valeur diffère légèrement.

Notons finalement que la perfluorodécaline, l'eau et la glycérine de la solution aqueuse sont chimiquement compatibles avec le PDMS (Lee *et al.*, 2003). Ainsi, les propriétés des liquides ne sont pas altérées par le polymère et ce dernier ne gonfle pas en leur présence. Bien que pratique pour la mise en place d'un forçage à pression constante, l'air est moins commode quand il est utilisé avec le PDMS : ce dernier est perméable aux gaz. On pourra toutefois négliger cet effet de perméabilité en raison des épaisseurs de PDMS autour du microcanal de l'ordre du demi-centimètre et des faibles pressions de forçage appliquées lors des expériences (voir Ann. A.4).

Les viscosités dynamiques (η), les tensions de surface (γ) et les masses volumiques des trois liquides sont données dans le tableau 2.1 pour une température de 25 ℃.

Liquide	Viscosité dynamique η (cP)	Tension de surface γ (mN/m)	Masse volumique ρ (Kg/m^3)
LM	5	15	1950
LPM 1	1	72	1000
LPM 2	10.68	66.9	1153

Tab. 2.1: Viscosités, tensions de surface et masses volumiques des liquides utilisés à 25 ℃ (Handbook of Chemistry and Physics, 2008; Choi *et al.*, 2003; Song *et al.*, 2003).

2.1.3 Le montage expérimental

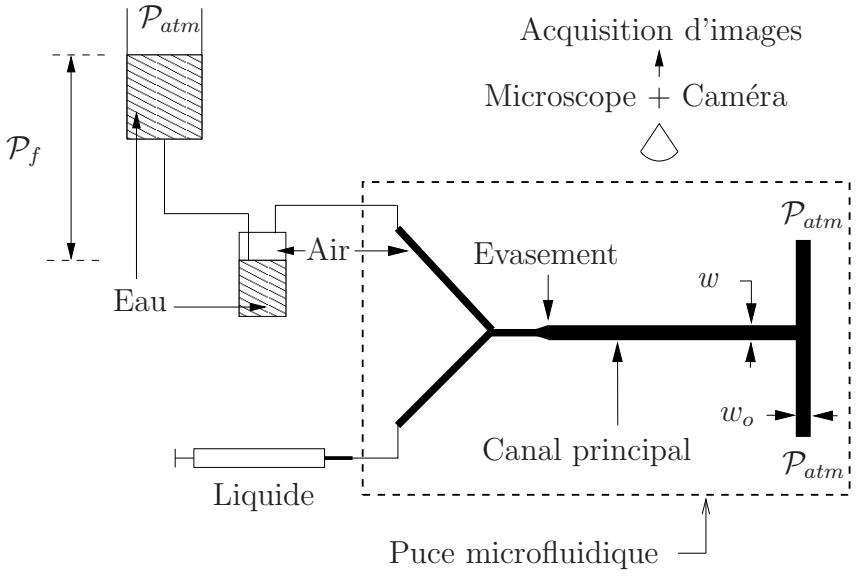


FIG. 2.5: Le montage expérimental mis en oeuvre pour le forçage à pression constante de bouchons de liquide dans des microcanaux de section rectangulaire. Une pression de forçage constante $\mathcal{P}_f$ est appliquée à la branche supérieure de la jonction en Y, située en amont du canal principal. La branche inférieure est utilisée pour introduire le liquide contenu dans une seringue actionnée par un pousse-seringue. Le déplacement des bouchons est ensuite enregistré par une caméra à travers un stéréomicroscope. Lors des expériences sur les bifurcations, un évasement du microcanal à la sortie de la jonction en Y est prévu afin d'atteindre des longueurs de bouchons de l'ordre de w. Les sorties de la bifurcation sont à la pression atmosphérique $\mathcal{P}_{atm}$.

Le montage expérimental est le même pour les expériences sur le canal droit et la bifurcation. Il est présenté sur la figure 2.5, avec un microcanal comportant une bifurcation en T. La puce microfluidique contenant le canal est placée sous un stéréomiscroscope. Une caméra rapide numérique, fixée sur ce dernier, enregistre le déplacement individuel de bouchons dans le microcanal. Contrairement aux écoulements de bouchons à débit imposé (par exemple, Cassidy *et al.* (2001)), les bouchons sont forcés ici au moyen d'une source de pression constante : de l'air comprimé dans un bocal par une colonne d'eau pousse le bouchon. Une jonction (ici, en Y) est prévue lors de la conception des microcanaux pour permettre l'introduction des fluides et la formation des bouchons. Les entrées de cette jonction sont reliées à la source de pression constante et à une seringue contenant le liquide étudié. Le canal principal d'étude est situé à la sortie de cette jonction. Pour les expériences sur les bifurcations uniquement, une zone d'évasement est conçue afin de réduire les longueurs de bouchons formés. Les sorties des microcanaux (droits ou en T) sont à la pression atmosphérique $\mathcal{P}_{atm}$.

Les paragraphes suivants développent le principe de la source de pression constante, l'étape de formation des bouchons ainsi que la méthode utilisée pour mesurer les longueurs et les vitesses de propagation des bouchons.

Le forçage à pression constante

La source de pression constante est composée d'une colonne d'eau comprimant de l'air contenu dans un bocal. Celui-ci est connecté à une des entrées de la jonction en Y par l'intermédiaire d'un tube flexible. La sortie des microcanaux étant à pression atmosphérique, $\mathcal{P}_{atm}$, la valeur de la pression différentielle de forçage, $\mathcal{P}_f$, se calcule à partir de la hauteur de la colonne d'eau, h_{eau}, par $\mathcal{P}_f = \rho_{eau} g h_{eau}$. Ici, ρ_{eau} est la masse volumique de l'eau et g la pesanteur. Le système permet d'obtenir des hauteurs de colonne d'eau telles que $0 < h_{eau} < 80$ cm, soit $0 < \mathcal{P}_f < 7850$ Pa. La précision sur la mesure de la pression est limitée par la lecture de la position des ménisques dans les bocaux de la colonne d'eau (Fig. 2.5), dont le diamètre mesure environ 5 cm. La précision sur h_{eau} est estimée à ± 0.2 cm, soit ± 20 Pa pour l'erreur absolue sur la pression de forçage $\mathcal{P}_f$.

La formation des bouchons

La synthèse des gouttes se fait à la jonction en Y (ou en T) du microcanal de la figure 2.5. Elle est conçue lors du dessin des microcanaux. Les entrées de la jonction sont reliées à la source de pression constante, et à la seringue contenant le liquide destiné à former les bouchons (Fig. 2.5). La figure 2.6 présente les étapes de la formation d'un bouchon. Tout d'abord, l'entrée d'air est fermée en pressant manuellement le tube qui relie le bocal d'air comprimé à l'entrée du microcanal (a). La seringue contenant le liquide est actionnée à l'aide d'un pousse-seringue jusqu'à obtenir dans le microcanal le volume de liquide souhaité (b). Une fois le liquide introduit dans le canal (c), on reconnecte la source de pression constante (d) et l'air pénètre à nouveau le microcanal poussant devant lui le bouchon nouvellement formé (e). La technique permet de produire des bouchons de longueurs différentes en variant le temps d'actionnement du pousse-seringue. Cependant, la longueur minimale des bouchons étant déterminée par les caractéristiques géométriques de la jonction, un évasement en aval de la jonction en Y est conçu dans le cas des bifurcations pour obtenir des longueurs plus faibles dans le canal principal (Fig. 2.5).

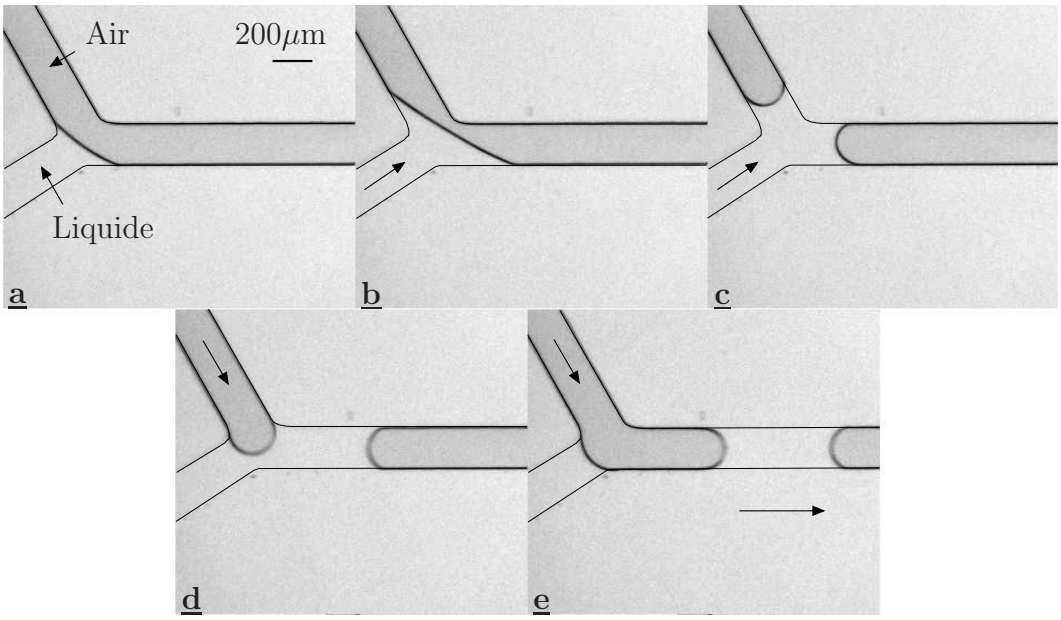


FIG. 2.6: Les étapes de formation d'un bouchon (ici un bouchon de liquide mouillant). Le liquide est présent dans la branche inférieure de la jonction en Y et l'écoulement d'air forcé dans la branche supérieure est arrêté (a). Le pousse-seringue est ensuite activé et le liquide est introduit dans la jonction (b) jusqu'à ce qu'un bouchon soit formé (c). L'air est finalement reconnecté (d) pour forcer le détachement et le déplacement du bouchon (e).

L'acquisition de séquences d'images

Le déplacement des bouchons est enregistré à l'aide d'une caméra rapide placée sur un stéréomiscrope. Celle-ci permet d'acquérir des séquences d'images. Le PDMS étant transparent et le dessus des puces microfluidiques étant plat, aucun traitement optique des images n'est nécessaire, et les images des séquences enregistrées sont directement exploitables. La caméra rapide utilisée possède une capacité d'échantillonnage de 10 à 400 images par seconde et la taille des images est 1024×256 pixels. L'intervalle de temps entre les images est donné par l'inverse de la fréquence d'échantillonnage et le facteur de conversion pixels-microns, calculé lors de la calibration du système microscope-caméra, varie de 5 à 10 μm par pixel, suivant le grossissement utilisé. Celui-ci est peu élevé puisqu'il est nécessaire de visualiser : la zone d'introduction des fluides pour la formation des bouchons ; le canal droit sur toute sa longueur pour caractériser le déplacement des bouchons ; et la bifurcation en T le cas échéant. Par conséquent, la forme précise des interfaces n'est pas accessible et on se concentre principalement sur les mesures de longueurs et de positions des bouchons, qui sont décrites dans le

paragraphe suivant.

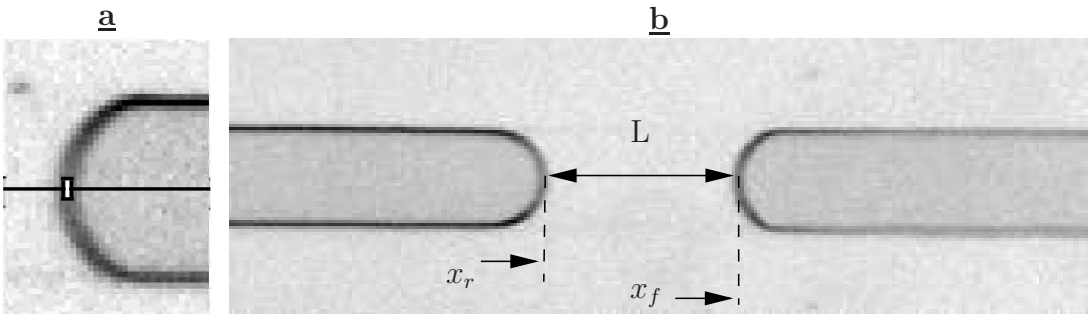


FIG. 2.7: **a**- Zoom numérique sur l'interface pour la détermination de la position de l'apex. **b**- Mesure des positions des ménisques avant et arrière, x_f et x_r, et de la longueur L d'un bouchon. La même méthode est utilisée pour les liquides partiellement mouillants.

La figure 2.7-a montre un zoom numérique sur l'interface. La largeur de l'interface est d'environ 3 pixels ($\simeq 15\mu$m à ce grossissement) et il n'est pas possible de visualiser la forme tridimensionnelle de l'interface : on n'en voit qu'une "projection". La netteté de l'interface dépend de la fréquence d'acquisition de la caméra et il est nécessaire de procéder à des tests préalables afin de s'assurer du bon choix de la qualité d'échantillonnage. En cas de vitesses de bouchons élevées, les interfaces deviennent floues. La fréquence d'acquisition et le temps d'exposition deviennent alors des limitations pour les expériences. Notons qu'une deuxième caméra, moins rapide mais de résolution supérieure, a été utilisée dans certaines expériences avec le liquide mouillant. Le déplacement de ces bouchons étant plus lent, cette caméra a suffit et a permis d'obtenir des images de meilleure qualité.

2.1.4 Position et longueur d'un bouchon

Afin de caractériser la dynamique des bouchons, leur longueur et leur position sont mesurées lors du déplacement dans le microcanal. Pour cela, on repère graphiquement la position des apexs des ménisques sur l'axe du microcanal (Fig. 2.7-a). On suppose qu'il s'agit bien de l'apex des ménisques et non de la position de la ligne de contact sur les parois des microcanaux. En notant les positions des apexs des ménisques avant et arrière x_f et x_r respectivement (Fig. 2.7-b), la position des bouchons peut être calculée à partir de ces mesures comme

$$x_C = \frac{x_f + x_r}{2}. \tag{2.4}$$

De même, la longueur L des bouchons, définie comme étant la distance entre les ménisques, s'écrit

$$L = x_f - x_r. \tag{2.5}$$

2.2 Dynamique de bouchons dans un microcanal droit

On développe, dans cette section, les observations et les résultats issus des expériences sur le transport à pression constante de bouchons individuels dans un microcanal droit. Dans un premier temps, dans la section 2.2.2, on caractérise les régimes observés en présentant des séquences d'images typiques et quelques mesures de longueur et de position. On synthétise ensuite l'ensemble des mesures expérimentales dans la section 2.2.3, afin d'étudier les rôles joués par la pression de forçage et la longueur dans le déplacement des bouchons. L'adimensionnalisation des mesures conduit, dans la section 2.2.4, à la comparaison de la dynamique des bouchons en fonction des propriétés de mouillage des liquides utilisés. La dernière section de ce chapitre, section 2.2.5, présente quelques observations faites lors du déplacement de bouchons à des vitesses élevées.

2.2.1 Protocole spécifique et premières observations

Les canaux utilisés dans les expériences sont listés dans le tableau 2.2 avec leurs dimensions : les canaux 1 & 3 ont servi aux expériences avec le liquide mouillant (LM) ; le même canal (canal 2) a reçu les deux liquides partiellement mouillants (LPM 1 & 2). Pour ce canal, le premier liquide étudié a été l'eau et on a procédé, avant les expériences avec la solution de glycérine, au rinçage du canal par cette même solution afin de dissoudre et d'éliminer d'éventuelles gouttelettes d'eau résiduelles.

N ° Canal	Liquide	$w \times h$ (μm)	$\mathcal{P}_f$ (cm_{H_2O})
1	LM	260×55	1.5-2.5-4
2	LPM 1	”	20-30-...-70
2	LPM 2	”	20-25-...-70
3	LM	210×25	4-8-...-20

Tab. 2.2: Canaux (et leurs dimensions) utilisés dans les expériences sur les microcanaux droits. Le canal 2 a servi aux expériences avec les LPM 1 & 2. Les pressions de forçage $\mathcal{P}_f$ correspondant à chaque expérience sont indiquées en cm_{H_2O}.

Les expériences sont réalisées de la façon suivante : la pression est initialement fixée à une première valeur, puis augmentée par palier ; à chaque palier, des bouchons de longueur différente sont introduits (en utilisant la méthode décrite au paragraphe 2.1.3) et leur déplacement est enregistré. Les mesures de longueurs et de positions du bouchon sont réalisées a posteriori sur chaque image des séquences obtenues.

Le tableau 2.2 reporte également les valeurs des pressions de forçage appliquées dans chaque expérience. Le déplacement des bouchons de liquide mouillant est obtenu dès qu'une pression de forçage positive est appliquée. Les bouchons des liquides partiellement mouillants restent quant à eux immobiles tant que la pression de forçage est inférieure à une valeur seuil. Ce phénomène de pression seuil a déjà été observé dans le cadre d'études sur le pompage de bouchons partiellement mouillants dans des microcanaux (Handique *et al.*, 2001), ou sur la dynamique de ménisques dans des tubes circulaires (Stokes *et al.*, 1990). Ces auteurs utilisent le terme de "depinning pressure", pression de décrochage. Son existence est due à l'hystérésis des angles de contact en mouillage partiel (chapitre 1).

Les premières pressions de forçage appliquées aux bouchons de liquides partiellement mouillants étaient, comme pour les liquides mouillants, de l'ordre du cm_{H_20}. A ces pressions et jusqu'à ce que $\mathcal{P}_f \simeq 12\ \mathrm{cm}_{H_20}$, les bouchons introduits restent immobiles dans le microcanal. Pour $12\ \mathrm{cm}_{H_2O} < \mathcal{P}_f < 20\ \mathrm{cm}_{H_20}$, les bouchons se déplacent très lentement. Par conséquent, on a fait le choix de commencer les expériences sur les liquides partiellement mouillants à partir de $\mathcal{P}_f = 20\ \mathrm{cm}_{H_20}$. Quelques mesures ont cependant été réalisées pour des pressions inférieures et elles seront utiles pour estimer la valeur de la pression seuil dans la section 2.2.4. Sa détermination ne peut pas être faite dès à présent car, comme le souligne Dussan (1979) pour la mesure des angles de contact d'avancée et de recul d'une interface sur un substrat, il est difficile de savoir à partir de quelle vitesse le bouchon ne doit plus être considéré comme immobile.

D'autre part, quelques précautions sont prises au début des expériences avec le liquide mouillant. Lorsque les premiers bouchons sont introduits et déplacés, ceux-ci voient leur longueur diminuer notablement : ils déposent spontanément du liquide mouillant dans les coins du microcanal. Des dépôts similaires de film liquide peuvent être observés lorsqu'un bouchon tombe par gravité dans un tube circulaire (Bico & Quéré, 2001), ou quand une plaque est tirée d'un bain de liquide mouillant (de Gennes *et al.*, 2004). Après le passage de quelques bouchons, les coins du canal deviennent saturés en liquide et les bouchons conservent une longueur qui varie nettement moins. L'acquisition des séquences d'images commence après ce prémouillage du canal et les mesures présentées ici concernent donc des bouchons déplacés dans des canaux prémouillés. Les premiers bouchons introduits et le remplissage des coins du microcanal ne sont pas étudiés. Les bouchons de liquides partiellement mouillants ne laissent quant à eux pas de film aux pressions appliquées lors des premières expériences ($\mathcal{P}_f \simeq 20\ \mathrm{cm}_{H_20}$) et leur longueur reste relativement constante. Ainsi, hormis la nécessité de vérifier que le canal est propre entre les expériences avec l'eau et celles avec le mélange de glycérol, aucune précaution supplémentaire n'est prise.

2.2.2 Observation de régimes stationnaires

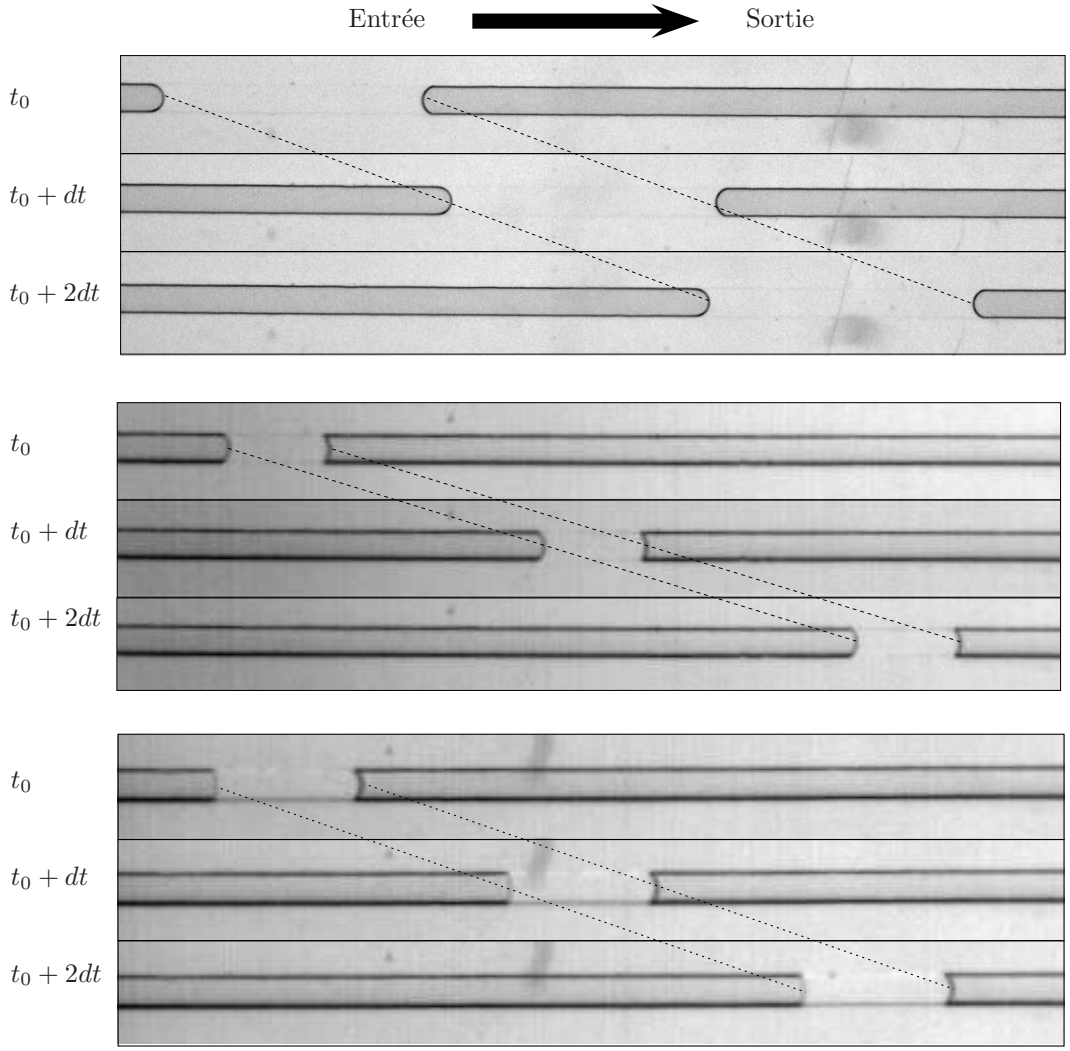


FIG. 2.8: Séquences typiques du déplacement de bouchons dans un microcanal. De haut en bas, le liquide mouillant, le LPM 2, et le LPM 1. Les images sont prises à intervalles de temps dt réguliers. La largeur des canaux (dimension visible sur les images) est de 260 μm (Canaux 1 & 2). Les pressions de forçage appliquées sont $P_f =$ 2.5 cm_{H_2O} pour le liquide mouillant et $P_f = 30$ cm_{H_2O} pour les liquides partiellement mouillants. Les lignes en pointillés mettent en évidence le caractère constant des longueurs et des vitesses durant le trajet des bouchons et ce, pour les trois liquides.

Séquences typiques

Des séquences typiques du déplacement de bouchons dans un microcanal droit sont illustrées sur la figure 2.8. Elles sont issues d'expériences réalisées avec les canaux de dimensions $w \times h = 260 \times 55$ μm (Canaux 1 & 2). Les pressions de forçage appliquées sont les suivantes : pour le liquide mouillant (Fig. 2.8 du haut), $P_f = 2.5$ cm$_{H_2O}$, pour la solution aqueuse de glycérine (Fig. 2.8 au centre) et l'eau (Fig. 2.8 du bas), $P_f = 30$ cm$_{H_2O}$. Les images sont prises à intervalles de temps réguliers et les lignes en pointillés reliant les ménisques des bouchons aux différents instants montrent que la longueur et la vitesse des bouchons restent constantes lors du trajet de ces derniers dans le microcanal.

On peut également d'ores et déjà remarquer que la forme des bouchons en déplacement est différente des formes statiques présentées sur la figure 2.3 dans la section 2.1.2 : les bouchons ne sont plus symétriques. Pour le liquide mouillant, la courbure de l'interface avant semble être plus faible qu'en statique et qu'à l'arrière du bouchon. Pour les deux liquides partiellement mouillants, l'interface arrière est à présent bombée vers l'intérieur du bouchon. L'effet est aussi visible pour l'eau mais il est moins accentué.

On précise ces remarques préliminaires dans les paragraphes suivants.

Mesures des positions et des longueurs

On présente ici des mesures de longueurs et de positions typiques. Ces quantités sont calculées à partir du repérage de la position des interfaces avant et arrière du bouchon (voir section 2.1.4). La figure 2.9 montre l'évolution de la position du centre des bouchons, x_C, en fonction du temps t, ainsi que la longueur L en fonction de la position du bouchon. L'ordre des figures est le même que pour les séquences de la figure précédente, à savoir de haut en bas, le liquide mouillant, la solution aqueuse de glycérine et l'eau. Pour chaque liquide, on présente des mesures correspondant à trois bouchons de longueur différente déplacés avec une même pression de forçage. Les points expérimentaux sont indiqués par des symboles.

Les graphiques (a) de la figure 2.9 confirment, pour les trois liquides, le caractère constant de la vitesse, mis en évidence par l'évolution linéaire de la position du centre du bouchon, en fonction du temps. Le bouchon se déplace donc avec une vitesse constante et on identifie un régime stationnaire quel que soit le liquide utilisé. La vitesse moyenne V de chaque bouchon peut être calculée en effectuant une régression linéaire de la position en fonction du temps (droite en trait plein). Les graphiques (b) montrent d'autre part que la longueur des bouchons reste globalement constante autour d'une valeur moyenne (droites en trait plein).

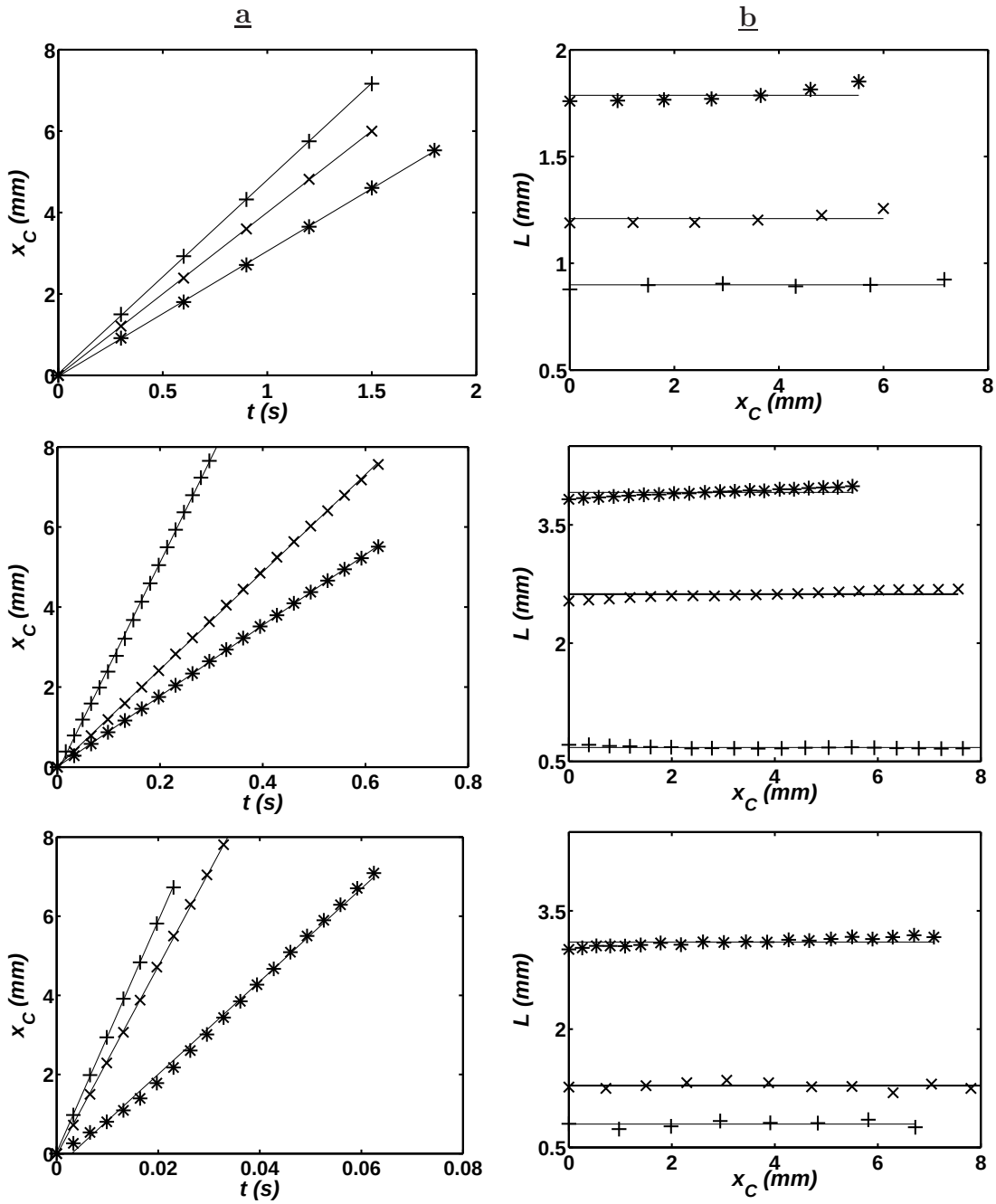


FIG. 2.9: **a**- Positions successives du centre du bouchon en fonction du temps. Trois bouchons de longueur différente sont considérés sur chaque graphe. Les droites sont des régressions linéaires des points expérimentaux. **b**- Evolution des longueurs correspondantes lors du trajet des bouchons. Les droites correspondent aux longueurs moyennes. **De haut en bas**, LM (P_f = 2.5 cm_{H_2O}), LPM 2 (P_f = 30 cm_{H_2O}), LPM 1 (eau, $P_f = 50\ \mathrm{cm}_{H_2O}$).

On remarque cependant que, pour les trois liquides, les bouchons longs subissent un accroissement de leur longueur au cours de leur trajet dans le microcanal. Ces variations restent inférieures à 10% et semblent sans effet sur la vitesse des bouchons. On les négligera par la suite.

Ces mesures typiques, qui montrent par ailleurs que la vitesse des bouchons diminue avec la longueur, sont observées pour l'ensemble des séquences enregistrées. Ainsi, on calcule pour chaque bouchon sa longueur moyenne, L, et sa vitesse moyenne, V, de la manière décrite ci-dessus. Avant de présenter la synthèse des résultats, on termine cette section par l'observation des interfaces en mouvement.

Observations des interfaces en mouvement

Angles de contact dynamiques Les images (a)&(b) de la figure 2.10 montrent des zooms sur des bouchons pendant leur déplacement. Sur les photos (a1)&(b1), les bouchons sont plus longs que leurs homologues des photos (a2)&(b2), et la pression appliquée est plus faible pour les images du haut : les vitesses des bouchons sont donc plus élevées sur les images du bas. Pour le liquide mouillant (Fig. 2.10-a), on constate pour les deux images que le rayon de courbure de l'interface avant est plus important qu'à l'arrière. Il est néanmoins difficile de distinguer une différence entre les deux images. Par contre, pour le liquide partiellement mouillant (Fig. 2.10-b), on peut deviner que les ménisques avant et arrière sont plus infléchis lorsque la vitesse du bouchon est importante (Fig. 2.10-b2). Ces observations mettent en évidence les phénomènes d'angles de contact dynamiques introduits dans le chapitre 1 : à l'arrière du bouchon partiellement mouillant, l'angle de contact diminue tandis qu'il augmente à l'avant. Enfin, pour l'interface arrière du liquide mouillant, notons que le ménisque semble se raccorder avec un angle de contact nul, comme dans la situation statique.

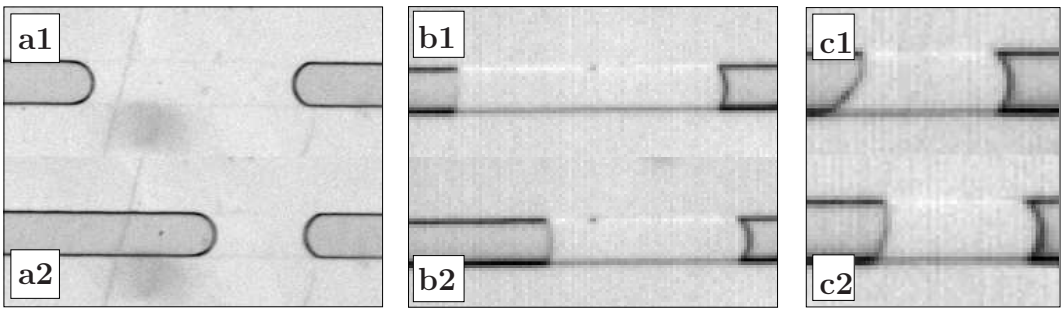


FIG. 2.10: **a**&**b**- Influence de la vitesse sur les formes des bouchons (les bouchons se déplacent plus rapidement sur les images du bas). **c**- Accrochage (1) et relaxation (2) de la ligne de contact d'un bouchon de liquide partiellement mouillant sur un défaut du microcanal.

Accrochage des lignes de contact Un autre phénomène peut être observé pour les bouchons partiellement mouillants. Il s'agit de l'accrochage des lignes de contact, présenté sur la figure 2.10-c. Il est dû à des hétérogénéités de la surface du canal : lorsque la ligne de contact rencontre un défaut, celle-ci s'y accroche momentanément déformant le ménisque du bouchon. Cela peut éventuellement induire des fluctuations locales de vitesse du bouchon.

2.2.3 Influence de la longueur et de la pression de forçage

Afin de caractériser la dynamique des bouchons, on calcule les longueurs et vitesses moyennes des bouchons pour chaque séquence d'images. On reporte l'ensemble des mesures obtenues avec les canaux 1 & 2 ($w \times h = 260 \times 55$ μm) sur les graphes de la figure 2.11. La vitesse est tracée en fonction de la longueur (graphes de gauche) et en fonction de l'inverse de la longueur (graphes de droite). Les résultats obtenus avec le canal 3 ($210 \times 25 \mu$m, LM) sont similaires.

Les pressions sont celles données dans le tableau 2.2. Cependant, pour le LPM 2, les résultats correspondant aux pressions intermédiaires ($P_{2;4;...} = 25;\ 35;\ ...\ \mathrm{cm}_{H_2O}$) ne sont pas reportés. Les longueurs moyennes des bouchons varient de la centaine de microns à quelques millimètres.

Les allures des courbes sont similaires pour les trois liquides et les courbes $V - L^{-1}$ (Fig. 2.11-b) montrent que la vitesse augmente de manière non linéaire lorsque la longueur des bouchons diminue. Les vitesses varient en fonction du liquide utilisé. Ainsi, on obtient des vitesses de l'ordre du centimètre par seconde pour le liquide mouillant et la solution aqueuse de glycérine. Ces vitesses sont celles généralement observées en microfluidique. Les vitesses des bouchons d'eau sont supérieures, atteignant presque le mètre par seconde. Pour les deux liquides partiellement mouillants, on remarque que les vitesses obtenues pour des pressions de 20 cm_{H_2O} sont faibles, de l'ordre de la centaine de microns par seconde pour l'eau et la glycérine. La vitesse augmente donc fortement avec la pression et peut être multipliée par un facteur 1000 dans le cas d'eau.

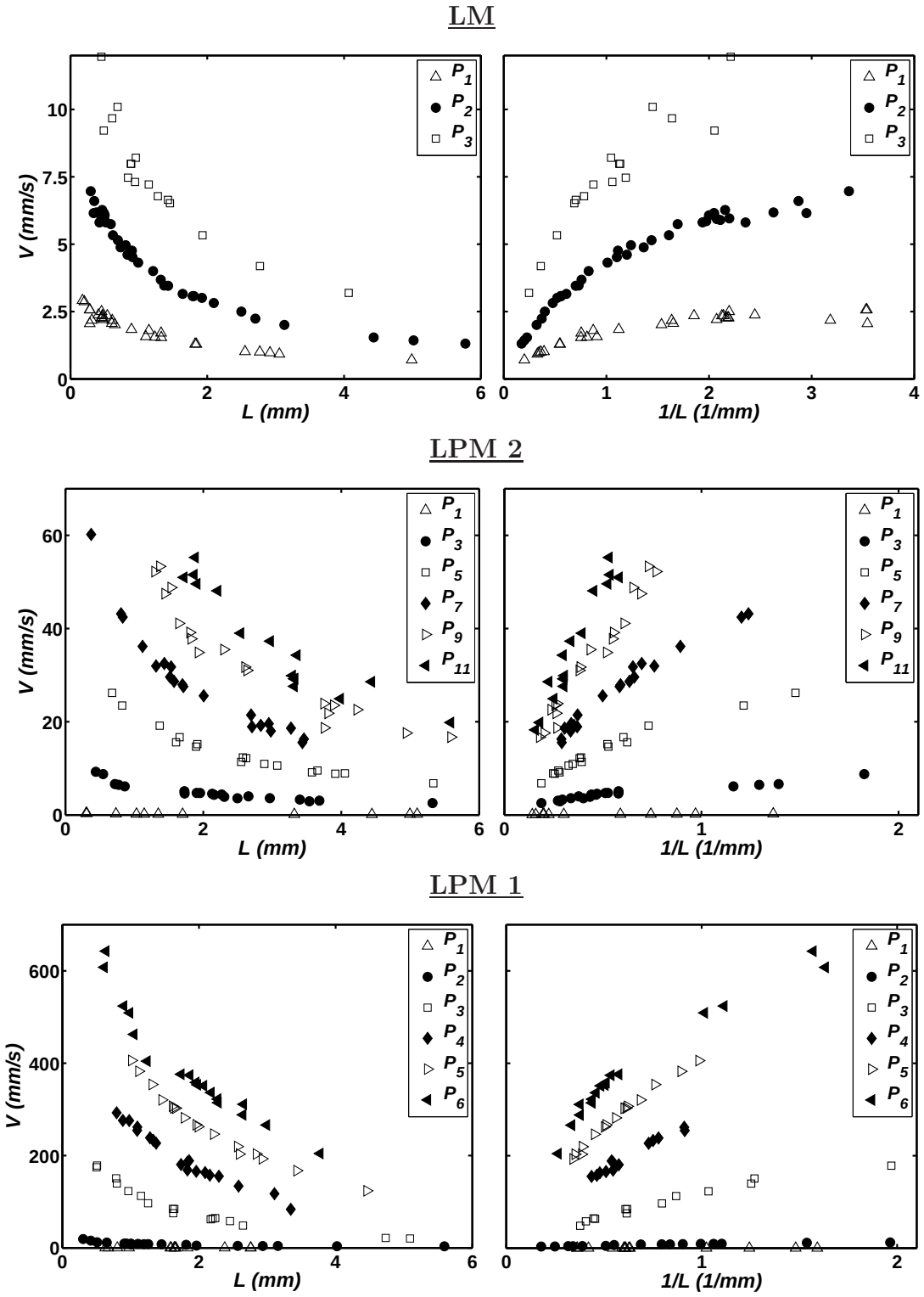


FIG. 2.11: Courbes $V - L$ et $V - L^{-1}$ pour les trois liquides. Pour le liquide mouillant, $P_{1;2;3} = 1.5;\ 2.5;\ 4\ \mathrm{cm}_{H_2O}$; pour le LPM 1, $P_{1;2;3;4;5;6} = 20;\ 30;\ 40;\ 50;\ 60;\ 70\ \mathrm{cm}_{H_2O}$; pour le LPM 2, $P_{1;3;5;7;9;11} = 20;\ 30;\ 40;\ 50;\ 60;\ 70\ \mathrm{cm}_{H_2O}$

2.2.4 Influence de la mouillabilité

Afin de comparer la dynamique des bouchons de liquides mouillant et partiellement mouillants, on adimensionnalise dans un premier temps les résultats précédents. On interpole ensuite les nombres capillaires obtenus pour une longueur adimensionnelle donnée et on en reporte les valeurs sur un graphe en fonction de la pression de forçage adimensionnalisée. On utilise ici les résultats issus des quatre expériences du tableau 2.2.

Adimensionnalisation

On reprend les adimensionnellements introduits dans le chapitre 1. La pression de forçage et la vitesse sont adimensionnalisées respectivement par la pression capillaire, $\gamma\kappa$, et la vitesse capillaire, γ/η. On obtient la pression de forçage adimensionnalisée,

$$P_f = \frac{\mathcal{P}_f}{\gamma\kappa}, \tag{2.6}$$

et le nombre capillaire

$$Ca = \frac{\eta V}{\gamma}. \tag{2.7}$$

L'adimensionnellement de la longueur est utile pour comparer les résultats obtenus pour les bouchons de liquide mouillant dans deux géométries différentes. La longueur moyenne des bouchons est adimensionnalisée par l'inverse de la courbure, κ^{-1}, et s'écrit

$$L_{ad} = L\kappa. \tag{2.8}$$

Pour calculer la pression de référence et le nombre capillaire, on utilise les propriétés des fluides à 25 ℃ pour le liquide mouillant, et celles à 30 ℃ pour les liquides partiellement mouillants. La raison de ce choix est expliquée lors de l'analyse des résultats, dans le chapitre 3. On prend donc les valeurs suivantes (http ://www.dowcorning.com, 2007; http ://www.surfacetension.de, 2007) : pour l'eau, $\eta = 0.8$ cP et $\gamma = 71.2$ mJ/m, et pour la solution de glycérine $\eta = 7.19$ cP et $\gamma = 66.56$ mJ/m. Cette dernière valeur est interpolée des valeurs de tension de surface à 30 ℃ de l'eau et de la glycérine pure.

Les courbes $V - L^{-1}$ de la page précédente sont reportées sous forme adimensionnelle sur la figure 2.12 pour les cas du liquide mouillant et du LPM 1. Les courbes en trait continu et les lignes en pointillés font l'objet du paragraphe suivant.

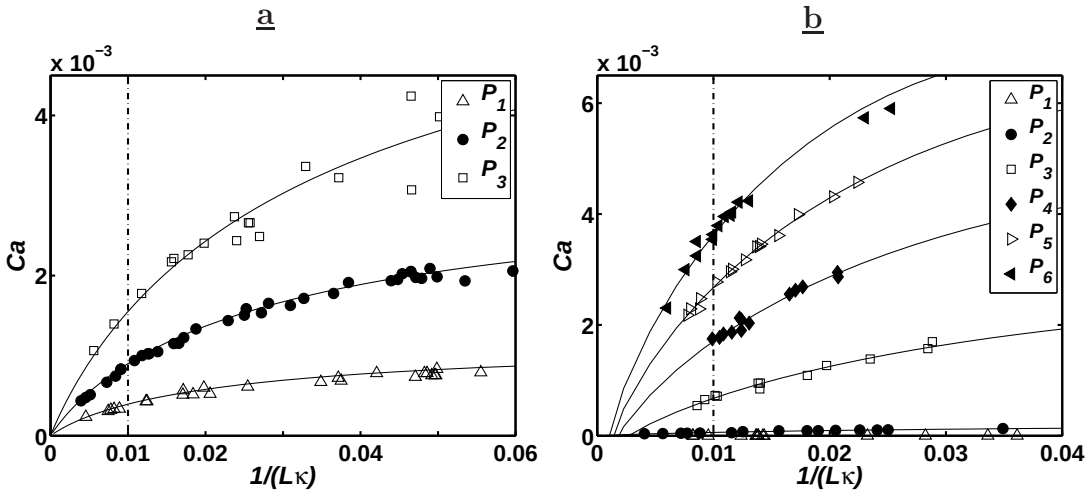


FIG. 2.12: Courbes $Ca - (L\kappa)^{-1}$ (Vitesse adimensionnalisée-Inverse de la longueur adimensionnalisée). **a**- Le liquide mouillant **b**- Le LPM 1. Les courbes en trait continu qui approchent les points expérimentaux sont obtenues par des régressions aux moindres carrés non linéaires. Elles permettent l'interpolation des nombres capillaires aux différentes pressions de forçage pour une longueur adimensionnelle $L_{ad} = 100$.

Interpolation

Afin de comparer les différentes expériences, on se place à une longueur adimensionnelle donnée. On prend ici $L_{ad} = 100$ ($L_{ad}^{-1} = 0.01$), soit 1 ou 2 millimètres selon le canal considéré. Pour chaque expérience, on interpole alors les nombres capillaires correspondant aux différentes pressions de forçage appliquées. Pour ce faire, on recherche l'intersection de droite $L_{ad}^{-1} = 0.01$ avec les courbes en trait plein de la figure 2.12. Celles-ci sont calculées à partir des points expérimentaux par des méthodes de régressions aux moindres carrés non linéaires (Manuel de Gnuplot, 2007). On fait de même pour le LPM 2 et la deuxième expérience avec le liquide mouillant. On obtient les courbes $Ca - P_f$ des figures 2.13 et 2.14.

Comparaisons à longueur fixée

Effet de la géométrie pour le liquide mouillant Le graphe (a) de la figure 2.13 montre les résultats obtenus pour le liquide mouillant dans les canaux 1 ($260 \times 55\mu$m) & 3 ($210 \times 25\mu$m). Bien que le nombre de points soit limité pour la première géométrie, les allures des courbes sont voisines. Les points expérimentaux peuvent être approchés par des droites de régression linéaire. Celles-ci ont des pentes voisines mais ne passent pas par l'origine du repère. Les droites semblent se rapprocher aux faibles nombres capillaires, ce qui laisse supposer que l'inverse de la courbure, qui a servi à adimensionnaliser la longueur et la pression de forçage, est une longueur pertinente pour ces valeurs du nombre capillaire.

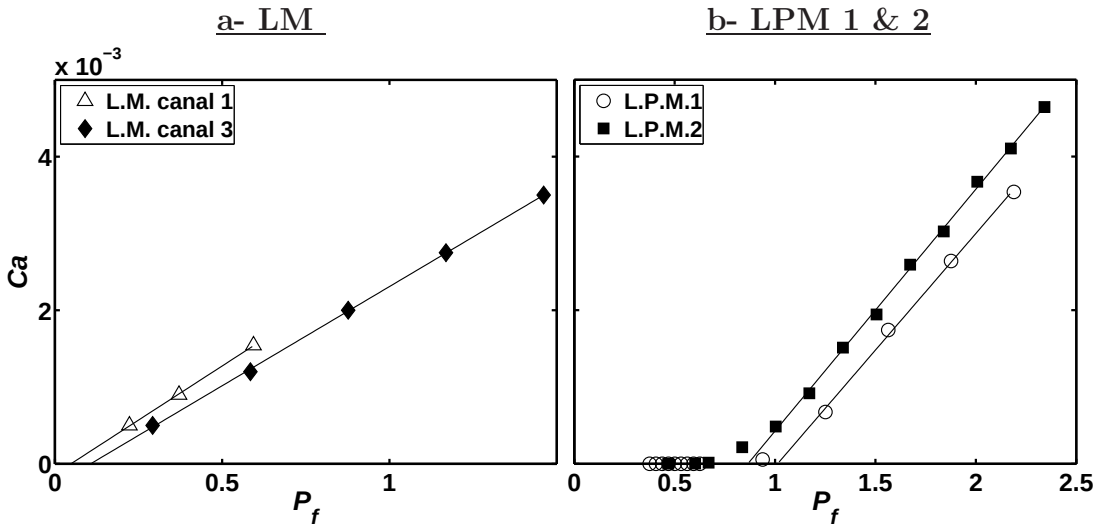


FIG. 2.13: Courbes $Ca - P_f$ pour $L_{ad} = 100$. **a-** Liquide mouillant pour deux géométries (Canaux 1 & 3). **b-** Liquides partiellement mouillants (Canal 2). Les droites sont des régressions des points expérimentaux (obtenues pour $P_f > 1$ pour les LPM).

Comparaison des liquides partiellement mouillants Le graphe (b) de la figure 2.13 correspond aux liquides partiellement mouillants pour le même canal (canal 2). Les résultats des expériences présentés sur les figures 2.11 ont été utilisés ici, et on a également pris en compte les mesures obtenues pour les pressions intermédiaires appliquées aux bouchons de solution de glycérine ($25 - 35 - ... - 65$ cm$_{H_2O}$). D'autre part, on a aussi utilisé les quelques expériences préliminaires réalisées pour les pressions inférieures à 20 cm$_{H_20}$ (voir section 2.2.1). Bien que l'on ne dispose pas forcément de résultats pour des bouchons de longueur adimensionnelle de 100, les nombres capillaires mesurés à ces pressions sont très faibles, et le graphique ne permet pas de voir l'effet de la longueur sur ces nombres capillaires. Ces mesures servent plutôt à donner un ordre de grandeur des nombres capillaires aux faibles pressions de forçage.

Pour les deux liquides partiellement mouillants, les nombres capillaires ont ainsi des valeurs faibles ($Ca < 10^{-4}$ environ) pour des pressions de forçage adimensionnelles inférieures à 0.75. Au dessus, les nombres capillaires augmentent rapidement avec la pression de forçage. Ces observations mettent en évidence la pression seuil constatée au début des expériences. Au vu de l'augmentation rapide du nombre capillaire à partir de $P_f = 0.75$, on peut considérer que le seuil de pression se situe dans l'intervalle $P_f \simeq 0.5 - 1$. Notons qu'une pression de 20 cm$_{H_20}$ équivaut, pour l'eau, à une valeur adimensionnelle de 0.63. Pour $P_f > 1$, il est possible d'approcher les points expérimentaux par une droite de régression linéaire. Les pentes des droites correspondant aux deux liquides sont proches et le décalage horizontal entre les droites est d'environ 0.2.

Comparaison des liquides mouillant et partiellement mouillants
Le graphique $P_f - Ca$ de la figure 2.14 synthétise les résultats obtenus pour les canaux de mêmes dimensions (Canaux 1 & 2). Les nombres capillaires mesurés, de l'ordre de 10^{-3}, sont voisins pour les trois liquides. Les droites de tendance ont des pentes voisines mais les courbes expérimentales sont globalement non linéaires : les liquides partiellement mouillants exhibent une pression seuil et le liquide mouillant peut soit également présenter une faible pression seuil ou avoir un comportement non linéaire aux petits nombres capillaires.

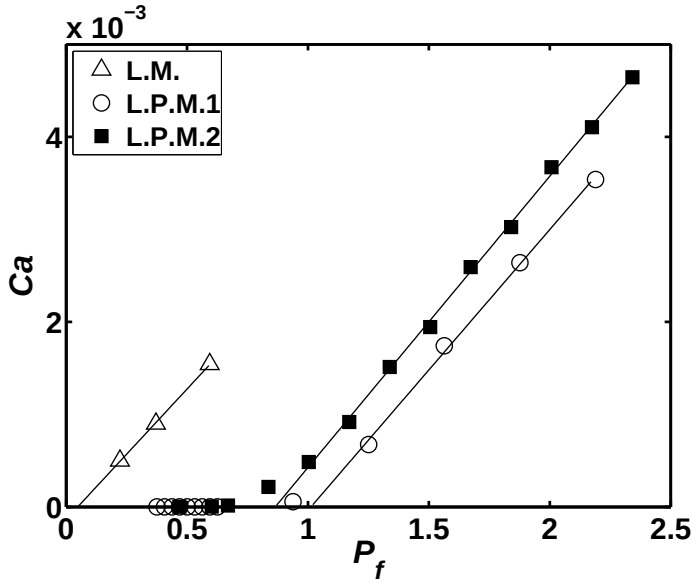
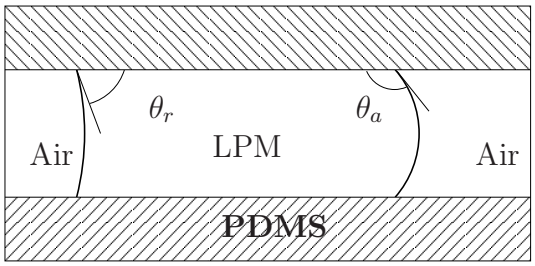


FIG. 2.14: Comparaison des liquides pour des bouchons de longueur adimensionnelle $L_{ad} = 100$ dans des microcanaux de mêmes dimensions.

Estimation théorique de la pression seuil pour l'eau

Il est possible d'estimer théoriquement la valeur de pression seuil pour la mise en mouvement d'un bouchon de liquide partiellement mouillant dans un microcanal (Handique *et al.*, 2001). Pour que le bouchon avance, les valeurs des angles statiques d'avancée et de recul doivent être atteintes. En notant les angles statiques d'avancée et de recul, θ_a et θ_r respectivement, on obtient pour un bouchon au seuil de déplacement, la configuration typique de la figure 2.15. La pression seuil théorique s'écrit alors (Handique *et al.* (2001))

$$P_{seuil} = \cos\theta_r - \cos\theta_a. \tag{2.9}$$



Réf.	θ_r	θ_a	P_{seuil}^{theo}
Morra *et al.* (1990)	81	114	0.56
Lee *et al.* (2002)	84	114	0.51
He *et al.* (2003)	88	118	0.5

FIG. 2.15: A gauche, la géométrie des interfaces au seuil de déplacement où θ_a et θ_r sont les angles statiques d'avancée et de recul. A droite, des valeurs en degrés de la littérature pour θ_a et θ_r pour de l'eau sur du PDMS. On indique également les pressions seuil théoriques correspondantes calculées avec l'équation 2.9.

Il est possible de trouver dans la littérature des valeurs des angles de contact statiques d'avancée et de recul pour l'eau sur un substrat en PDMS. Quelques-unes d'entre elles sont reportées dans le tableau de la figure 2.15, qui indique aussi les pressions seuil correspondantes calculées avec l'équation 2.9. Ces valeurs donnent un intervalle pour la pression seuil $P_{seuil} = 0.5 - 0.63$ et cette borne supérieure, calculée pour $\theta_r = 81^\circ$ et $\theta_a = 118^\circ$ correspond à la pression de forçage de 20 cm_{H_20}. L'ordre de grandeur obtenu est satisfaisant mais la détermination précise de la valeur expérimentale demande un protocole adapté et reste, comme pour les mesures des angles de contact, assez subjective (Dussan, 1979).

2.2.5 Observations aux grandes vitesses

On commente dans cette section quelques observations faites lors du déplacement de bouchons à des vitesses élevées. Cela nous permet de revenir sur les déviations des longueurs constatées lors du trajet des bouchons dans le microcanal sur les graphiques $L(x_c)$ de la figure 2.9, section 2.2.2.

Cas du liquide mouillant

A "grande" vitesse ($Ca \simeq 5 \cdot 10^{-3}$), il est possible de remarquer le dépôt d'un film sur les parois du microcanal à l'arrière des bouchons. Les images de la figure 2.16-a montrent qu'avant le passage du bouchon, les parois du microcanal sont plutôt claires tandis qu'à l'arrière du bouchon, les parois sont sombres. Ce changement de teinte des parois est dû à un film de liquide déposé par le bouchon. Ce dépôt de film, typique du déplacement d'un liquide mouillant par un fluide moins visqueux, a notamment été étudié dans les tubes circulaires par Bretherton (1961). L'épaisseur du film de liquide déposé dépend de la vitesse de déplacement de l'interface et c'est pourquoi on observe ce phénomène plus facilement à des vitesses élevées. Ensuite, toujours à grande vitesse, il est possible d'observer un

démouillage forcé du liquide mouillant. On peut deviner, derrière le bouchon, une ligne de contact qui suit le bouchon avec une vitesse voisine de celui-ci. Cette ligne de contact déstabilise le film déposé à l'arrière des bouchons pour former des gouttes espacées assez régulièrement dans le microcanal. La figure 2.16-a montre quelques gouttes ainsi formées dans le microcanal. Ce phénomène a déjà été observé dans des microcanaux avec des liquides différents (Cubaud & Ho, 2004; Jensen *et al.*, 2004) et l'illustration de la figure 2.16-a reprend le schéma de Jensen *et al.* (2004). Ces observations sur le démouillage, qui peuvent laisser penser que la perfluorodécaline n'est pas parfaitement mouillante, n'ont cependant pas été faites pour la plupart des expériences avec ce liquide et on suppose un certain vieillisement du liquide ou du microcanal.

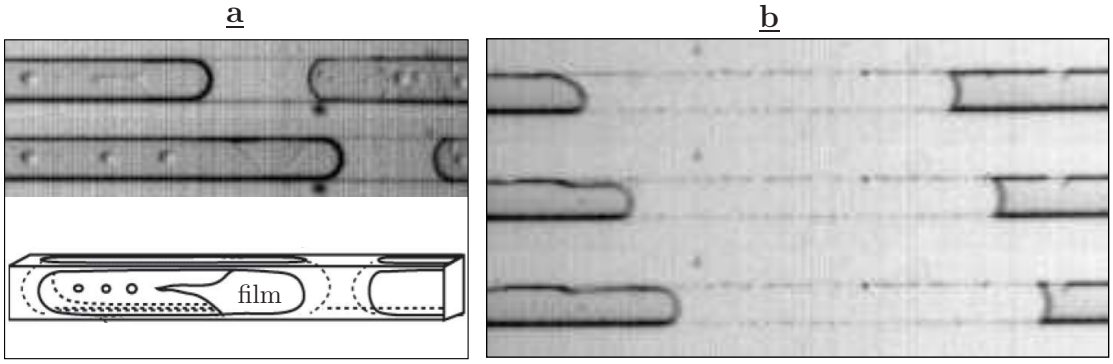


FIG. 2.16: Quelques observations pour des bouchons se déplaçant à des vitesses élevées ($Ca \simeq 5 \cdot 10^{-3}$). **a**- On observe après le passage du bouchon des parois plus sombres, synonymes du dépôt d'un film liquide à l'interface arrière. Ce film est ensuite déstabilisé par une ligne de contact, et le liquide démouille pour former des gouttes dans le microcanal. Le schéma, issu de (Jensen *et al.*, 2004), illustre ce phénomène. **b**- A grande vitesse, l'accrochage de la ligne de contact des bouchons de liquide partiellement mouillant provoque le dépôt d'un film.

Cas des liquides partiellement mouillants

Pour les liquides partiellement mouillants, les phénomènes d'accrochage évoqués précédemment dans la section 2.2.2 forcent, à grande vitesse, le dépôt d'un film à l'arrière des bouchons. Il est possible de visualiser ce phénomène sur les images de la figure 2.16-b. Des gouttes peuvent alors se former dans le microcanal, comme celle que l'on peut voir sur les images à l'avant du bouchon.

Pour s'assurer que ce sont bien les défauts des microcanaux qui provoquent le dépôt d'un film pour les liquides partiellement mouillants, on peut reprendre le critère établi par Quéré (1991) sur la vitesse minimale d'étalement forcé d'interfaces en mouillage partiel. Cette vitesse critique sépare deux régimes distincts, déjà évoqués dans le chapitre 1 : le déplacement de l'interface avec un angle dynamique en dessous de cette vitesse critique, et au dessus, l'étalement d'un film lorsque la dissipation visqueuse dans le coin de la ligne de contact devient trop importante et ne peut plus être équilibrée par les forces de tension de surface. Cette vitesse minimale d'étalement s'écrit, sous forme adimensionnelle, $Ca_c = (\theta_r)^3 / (9\sqrt{3}l)$, où l est un facteur logarithmique et θ_r est l'angle statique de recul de l'interface. Pour un liquide mouillant, $\theta_r = 0$ et donc $Ca_c = 0$: il y a étalement spontané. Pour les liquides partiellement mouillants, une estimation de Ca_c peut être faite en prenant $\theta_r \simeq \pi/2$ et $l \simeq 14$ (Quéré, 1991). On trouve $Ca_c \simeq 0.02$, qui est une valeur supérieure aux nombres capillaires expérimentaux : les bouchons ne devraient pas déposer de liquide. Les phénomènes d'accrochage de la ligne de contact sur les défauts de surface du microcanal semblent donc favoriser le dépôt de film et la formation de gouttes à l'arrière des bouchons de liquides partiellement mouillants.

Variations de longueur des bouchons

Afin de quantifier ces observations et de comprendre les déviations évoquées dans la section 2.2.2, on a mesuré les variations de longueurs des bouchons des liquides partiellement mouillants au cours de leur parcours dans le microcanal. Pour cela, on mesure la longueur du bouchon sur les première et dernière images des séquences, en s'assurant que le bouchon ait parcouru une distance supérieure à la moitié de la longueur du microcanal. Les variations relatives, $\Delta L/L$, sont reportées sur la figure 2.17 en fonction du nombre capillaire. On remarque, à grande vitesse, une diminution de la longueur des bouchons. A faibles vitesses, la longueur des bouchons augmente (environ 6%, ligne en trait plein) lors de leur trajet comme on l'avait déjà constaté précédemment. Cette augmentation de longueur est sans doute due à une réduction de la section vers l'aval du canal. Ces irrégularités dans les dimensions du microcanal engendrent des gradients de pression capillaire (Darhuber & Troian, 2005) qui peuvent accélérer ou ralentir le déplacement des bouchons. Les longueurs des bouchons étant faibles par rapport à la longueur des microcanaux, on peut supposer que ces gradients de pression capillaire ont un effet négligeable sur la vitesse moyenne des bouchons.

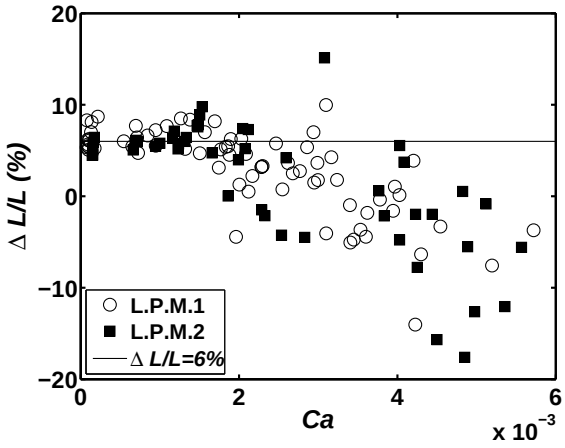


FIG. 2.17: Évolution de la variation de longueur des bouchons d'eau et d'eau-glycérine en fonction du nombre capillaire, sur une longueur de parcours supérieure à la moitié de la longueur du microcanal. La ligne indique une valeur moyenne de 6%.

2.2.6 Conclusion

Les expériences sur les bouchons dans des microcanaux montrent l'existence d'un régime stationnaire à pression de forçage constante. Ce régime stationnaire prend place dès qu'une pression de forçage positive est appliquée aux bouchons mouillants, tandis que pour les liquides partiellement mouillants, il est nécessaire de dépasser une pression seuil, liée à l'hystérésis des angles de contact aux interfaces avant et arrière des bouchons. Dans ce régime stationnaire, on remarque que la vitesse évolue de manière non linéaire avec la longueur du bouchon. L'adimensionnalisation des pressions par une pression capillaire et l'utilisation du nombre capillaire permettent, à longueur donnée, d'observer certaines similarités dans le comportement des trois liquides.

Quelques observations ont pu être faites aux ménisques des bouchons. Elles montrent la diversité des phénomènes rencontrés aux interfaces et aux lignes de contact. On retrouve dans les microcanaux des phénomènes étudiés dans d'autres géométries : l'angle de contact dynamique (Hoffman, 1975; Tanner, 1979; Fermigier & Jenfer, 1991) pour les deux types de liquides, l'hystérésis des angles dynamiques en mouillage partiel (Dussan, 1979; de Gennes, 1985), le dépôt d'un film dans le cas du mouillage total (Bretherton, 1961; Bico & Quéré, 2001) et des phénomènes d'accrochage (Joanny & Robbins, 1990) et de démouillage (Redon *et al.*, 1991).

Dans le chapitre 3, on reviendra sur la dynamique des bouchons dans un microcanal droit et on caractérisera à la fois la propagation des bouchons et les effets capillaires ayant lieu aux interfaces.

2.3 Passage d'une bifurcation par un bouchon de liquide mouillant

On décrit dans cette section le franchissement d'une bifurcation en T par un bouchon de liquide mouillant. La géométrie de la bifurcation est précisée sur la figure 2.1. L'objectif des expériences est de comprendre l'effet d'une bifurcation sur le transport de bouchons dans des réseaux de microcanaux et l'étude d'une seule bifurcation en constitue une première étape. Seuls les liquides complètement mouillants ont été étudiés. Cela fait suite à l'idée initiale de la thèse qui était de modéliser le transport de bouchons dans un réseau particulier : l'arbre pulmonaire. En raison des pressions seuil spécifiques aux bouchons de liquides partiellement mouillants, le liquide utilisé dans le traitement thérapeutique de l'arbre pulmonaire est mouillant (Grotberg, 2001; Grotberg & Jensen, 2004). D'autres applications concernent les réseaux microfluidiques ou les milieux poreux.

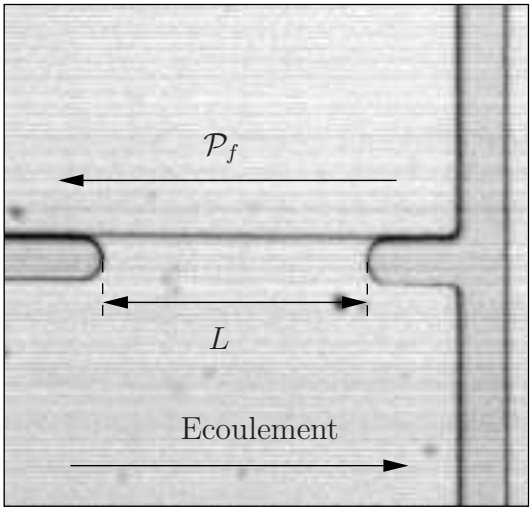


FIG. 2.18: Que se passe-t-il lorsqu'un bouchon parvient à une bifurcation en T ? Le bouchon de liquide est forcé par une pression de forçage $\mathcal{P}_f$ et la bifurcation est symétrique : les sorties sont à pression atmosphérique et les longueurs des branches "filles" de la jonction sont égales.

2.3.1 Protocole spécifique

Le montage expérimental utilisé a été détaillé dans la section 2.1.3. Le protocole est le suivant : à pression de forçage fixée, on forme un bouchon de perfluorodécaline dans le microcanal ; celui-ci est ensuite déplacé à pression de forçage constante comme pour les expériences dans le canal droit et on observe qualitativement le comportement du bouchon à la bifurcation ; on mesure ultérieurement sur les images obtenues la longueur du bouchon dans le canal d'entrée juste avant

la bifurcation. Rappelons que les branches de sortie de la jonction sont à pression atmosphérique et que leur longueur est identique : les conditions sont symétriques. Le principe de l'expérience est schématisé sur la figure 2.18. La position et la vitesse du bouchon dans le canal d'entrée ne sont pas mesurées.

Deux bifurcations en T aux dimensions différentes ont été étudiées. La première bifurcation a pour dimensions $w \times h \times w_o = 260 \times 46 \times 260$ μm. Ici, h est la hauteur des canaux d'entrée et de sortie, w est la largeur du canal d'entrée tandis que w_o est celle du canal de sortie (voir Fig. 2.1). La deuxième bifurcation a un canal de sortie dont la largeur vaut le double de celle du canal d'entrée ($w_o = 2w$, $w \times h \times w_o = 260 \times 46 \times 520\mu$m). Les pressions de forçage appliquées varient de 1 à 8 cm_{H2O}, et le microcanal est prémouillé avant le début de l'expérience. Les données sont rassemblées dans le tableau 2.3.

N° Bifurcation	Fluide	$w \times h \times w_o$ (μm)	$\mathcal{P}_f$ (cm_{H_2O})
1	LM	$260 \times 46 \times 260$	1-2-3-4-5
2	LM	$260 \times 46 \times 520$	2-4-8

Tab. 2.3: Dimensions des bifurcations utilisées lors des expériences et pressions de forçage appliquées correspondantes.

2.3.2 L'observation de trois comportements

Lorsqu'un bouchon de liquide mouillant parvient à la première bifurcation en T, deux possibilités sont tout d'abord observées : pour une pression de forçage inférieure à une valeur seuil, on assiste à l'arrêt du bouchon lorsqu'il atteint la fin du canal d'entrée et il ne rentre pas dans la bifurcation ; lorsque la pression de forçage est suffisante, le bouchon pénètre dans la bifurcation. Dans cette dernière situation, deux cas se présentent alors : soit la longueur du bouchon est suffisante et le bouchon se divise en deux bouchons "fils" qui continuent leur propagation dans les branches de sortie de la bifurcation ; soit la longueur du bouchon est trop faible et le bouchon éclate dans la bifurcation. Finalement, ce sont trois comportements distincts illustrés sur la figure 2.19 qui ont pu être observés à la jonction en T n° 1 :

- l'éclatement (Fig. 2.19-a),
- la division (Fig. 2.19-b),
- le blocage (Fig. 2.19-c).

Ces trois comportements du bouchon ont été observés pour la première géométrie. Lors des expériences sur la seconde bifurcation, le blocage n'a pas été observé et on suppose que les pressions appliquées étaient supérieures à la pression seuil de blocage. On décrit, pour la première bifurcation, chacun des cas dans les paragraphes suivants.

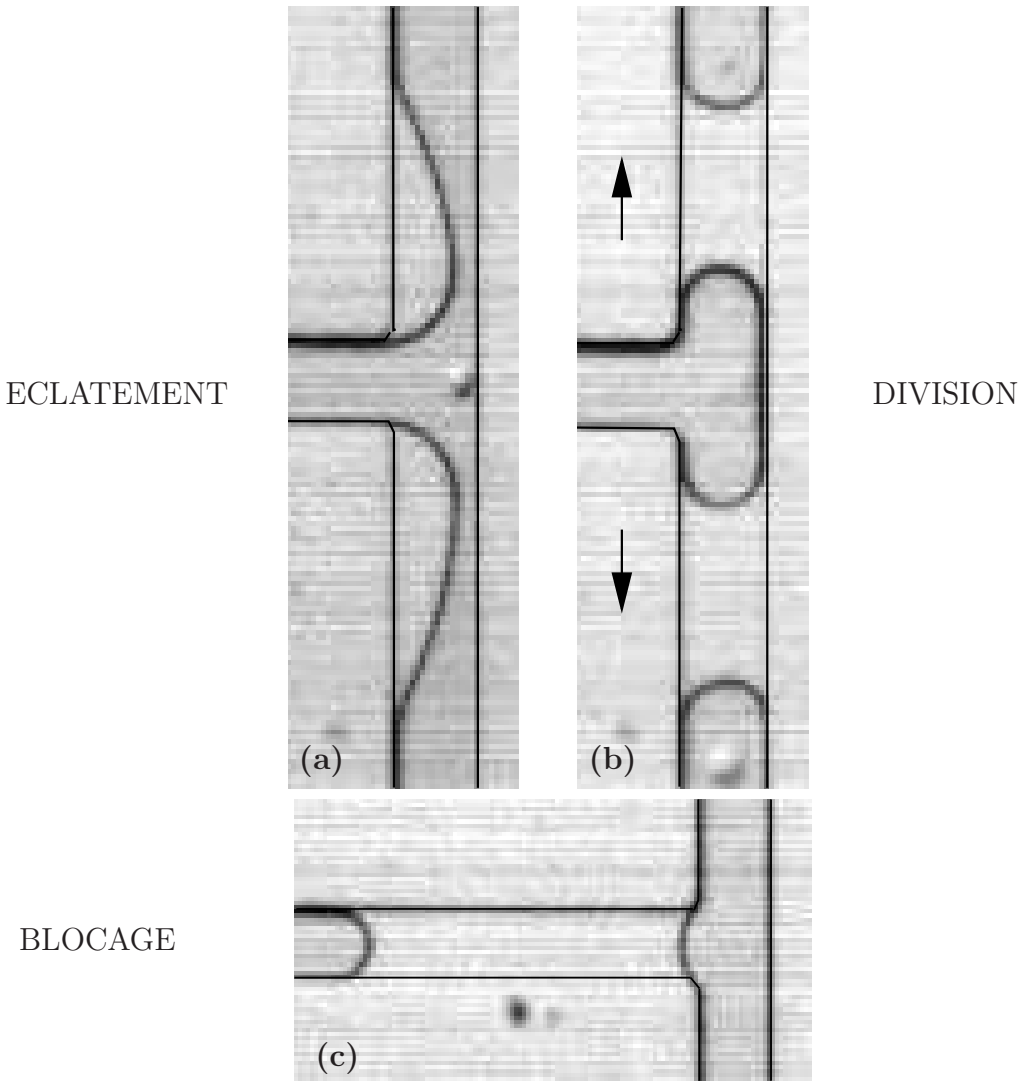


FIG. 2.19: A une bifurcation en T, le bouchon de liquide mouillant peut : **a**- éclater, **b**- se diviser en deux bouchons "fils" de longueur égale, ou **c**- rester bloqué à l'entrée de la bifurcation pour les pressions de forçage inférieures à une pression seuil, appelée pression de blocage.

Le blocage du bouchon à l'entrée de la bifurcation

Les expériences sur les bifurcations mettent en évidence l'existence d'une pression de blocage, $\mathcal{P}_{blocage}$, indépendante de la longueur des bouchons, et en dessous de laquelle le bouchon est bloqué lorsque l'interface avant parvient à l'entrée de la jonction. Les images (a) et (b) de la figure 2.20 correspondent à deux bouchons bloqués pour deux pressions de forçage différentes et inférieures à la pression de blocage. Les photos montrent que l'interface avant du bouchon adapte sa courbure en fonction de la pression appliquée. Pour les deux pressions, les extrémités de l'interface avant semblent être accrochées aux bords de la bifurcation. L'interface arrière conserve quant à elle une forme constante sur les deux images.

Bien que le bouchon paraisse immobile pendant le blocage, l'observation sur des temps longs de l'ordre de la minute montre que l'interface arrière se déplace et que le volume de liquide dans le bouchon diminue. Les images de la figure 2.20-c sont issues d'une même séquence et illustrent ce déplacement de l'interface arrière. L'interface avant reste immobile. Le diagramme spatiotemporel de la figure 2.20-d est obtenu en mesurant, en fonction du temps, la position des interfaces avant et arrière du bouchon bloqué sur une ligne médiane du microcanal (dessinée sur l'image du bas de la figure 2.20-c). La vitesse semble stationnaire et des mesures préliminaires donnent une vitesse de l'ordre de 10 μm/s, indépendante de la pression de forçage. L'écoulement du liquide mouillant par les coins du microcanal ou par les rugosités (Lenormand & Zarcone, 1984), ou encore l'évaporation du liquide (Tabeling, 2003) peuvent être responsables du déplacement de l'interface arrière. Les modèles théoriques correspondants prédisent une évolution de la position qui varie en racine carrée du temps. Prat (2007) propose quant à lui un modèle linéaire en temps en combinant les phénomènes précédents.

Lorsque la pression de forçage est supérieure à la pression de blocage, on assiste soit à la division du bouchon, soit à son éclatement. A pression de forçage donnée, la longueur initiale du bouchon dans le canal d'entrée détermine le futur du bouchon.

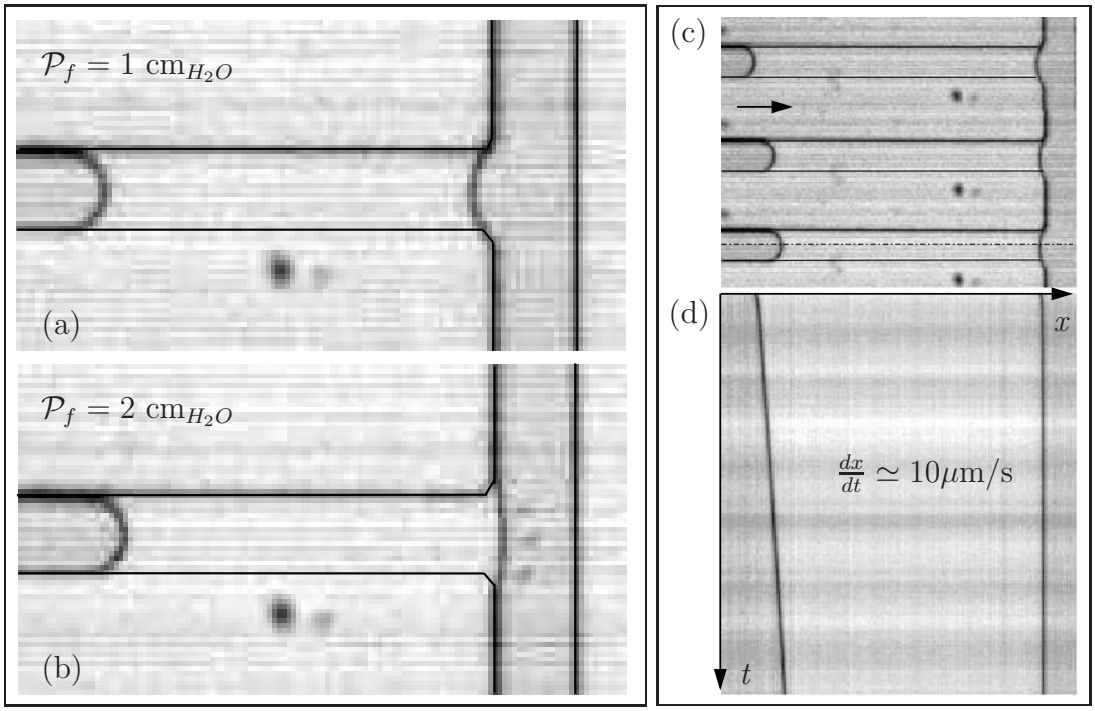


FIG. 2.20: Le blocage. **a** & **b**- Images prises lors du blocage du bouchon de liquide mouillant à l'entrée de la bifurcation pour $\mathcal{P}_f < \mathcal{P}_{blocage}$. Les images montrent que l'interface avant du bouchon semble accrochée aux bords de la bifurcation et qu'elle adapte sa courbure en fonction de la pression de forçage appliquée. Pour la photo (a), l'interface, vue du dessus, est bombée vers l'intérieur du bouchon. C'est le contraire pour la photo (b). La forme de l'interface arrière paraît indépendante de la pression de forçage. **c** & **d**- Bien que le bouchon semble au repos lorsqu'il est bloqué à la bifurcation, il est possible d'observer sur les images successives de la figure (c), le déplacement lent de l'interface arrière pendant lequel la forme des interfaces reste inchangée. Le diagramme spatiotemporel (d) permet de suivre la position des interfaces sur une ligne médiane du microcanal : alors que la position du ménisque avant ne varie pas, l'interface arrière évolue avec une vitesse de l'ordre de la dizaine de microns par seconde, indépendante de la pression de forçage.

La division

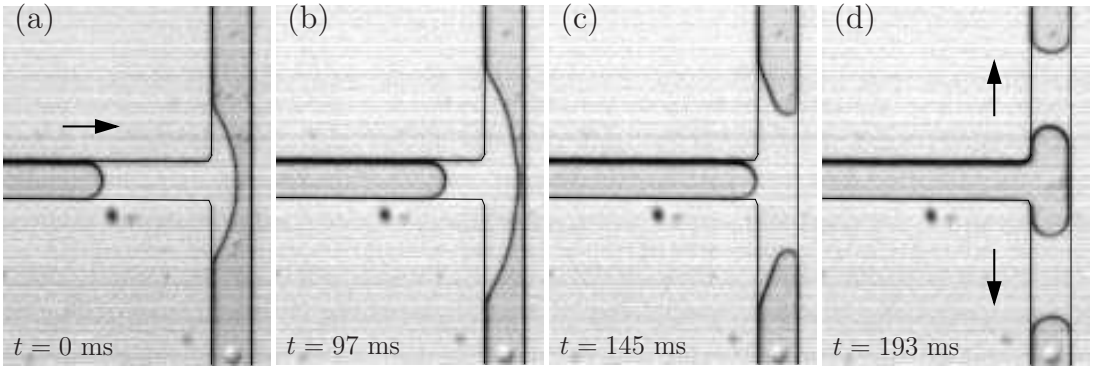


FIG. 2.21: Images successives de la division d'un bouchon à une jonction en T. La division conduit à la formation symétrique de deux bouchons "fils" dans les branches de sortie de la bifurcation.

Lorsque les bouchons ont une longueur suffisante, ils se divisent en deux bouchons "fils" de longueurs égales. Une division typique est présentée sur les images de la figure 2.21. En rentrant dans la jonction (Fig. 2.21-a), l'interface avant voit sa courbure changer et adopte une forme proche d'un arc de cercle. La division commence lorsque l'interface avant touche la paroi du canal de sortie située à l'opposé du canal d'entrée (Fig. 2.21-b). Des phénomènes capillaires rapides ont alors lieu pour rétablir la symétrie de l'interface avant des futurs bouchons "fils" (Fig. 2.21-c). Pendant ce temps, l'interface arrière franchit la bifurcation. Ses extrémités sont accrochées aux bords de la jonction et l'interface adopte une forme circulaire, jusqu'à rentrer, à son tour, en contact avec la paroi du canal de sortie. La séquence présentée sur la figure 2.21 ne rend pas compte de ces observations.

L'éclatement

Des observations similaires pour l'interface arrière peuvent être faites lors de l'éclatement d'un bouchon à la bifurcation, comme le montrent les photos (b) et (c) de la figure 2.22. Dans le cas de l'éclatement, les deux interfaces ne parviennent pas à toucher la paroi opposée au canal d'entrée car l'éclatement a lieu lorsque l'interface arrière rattrape l'interface avant dans la bifurcation (Fig. 2.22-c). Deux gouttes sont formées sur les parois du canal de sortie, du côté de l'entrée de la bifurcation (Fig. 2.22-d). La figure 2.23 présente l'évolution de la forme de leur interface dans le temps. Celle-ci est due, entre autres, à la combinaison du frottement de l'air et de gradients de pression capillaire dans les coins du canal. Une fois déposées, les gouttes évoluent lentement et peuvent rester présentes pendant des temps supérieurs à ceux de la traversée de la bifurcation.

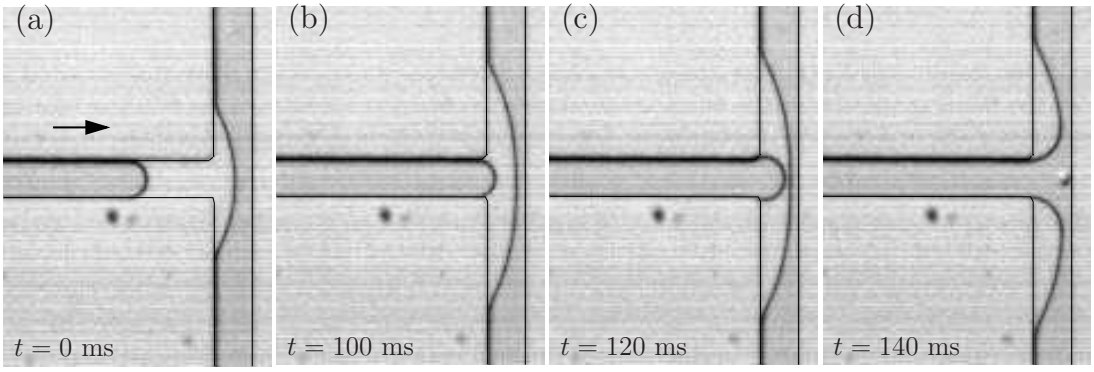


FIG. 2.22: Images successives de l'éclatement d'un bouchon. Le bouchon éclate dans la bifurcation et laisse du liquide sur les parois du microcanal, du côté de l'entrée de la jonction. L'air peut alors circuler avec moins de résistance dans le microcanal.

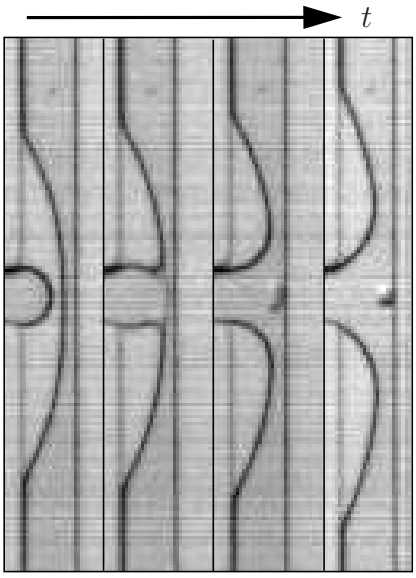


FIG. 2.23: La forme des gouttes de liquide laissées sur les parois après l'éclatement du bouchon évolue dans le temps. Remarquons aussi le filament résultant de la rencontre des interfaces avant et arrière, et qui forme une goutte sur la paroi inférieure ou supérieure du canal : le liquide n'est pas totalement mouillant. Pendant tout le processus, les bords de la jonction accrochent les extrémités de l'ancienne interface arrière. Les lignes de contact situées près des sorties de la jonction peuvent quant à elles évoluer librement.

2.3.3 Influence de la longueur et de la pression de forçage

Afin de comprendre les rôles de la pression de forçage et de la longueur initiale du bouchon, les trois comportements observés dans la première bifurcation sont reportés sur le diagramme de phases de la figure 2.24-a, en fonction de la pression de forçage appliquée et de la longueur des bouchons initialement mesurée dans le canal d'entrée. Ces deux quantités sont respectivement adimensionnalisées par une pression de référence γ/w et une longueur de référence w. Ces adimensionnellements sont différents de ceux utilisés dans la géométrie droite et définis dans la section 2.2.4. Ainsi, pour la bifurcation,

$$P_f = \frac{\mathcal{P}_f w}{\gamma}, \tag{2.10}$$

et

$$L_{ad} = \frac{L}{w}. \tag{2.11}$$

Le blocage ($\triangle$) est observé en dessous de $\mathcal{P}_{blocage}$, dont la valeur adimensionnelle se situe autour de 4 et est indépendante de la longueur des bouchons. Au-dessus de $\mathcal{P}_{blocage}$, les points expérimentaux montrent que la transition entre l'éclatement ($\blacksquare$) et la division ($\circ$) dépend de $\mathcal{P}_f$ et de L : lorsque la pression augmente, la longueur requise pour former deux bouchons "fils" diminue. Le diagramme obtenu pour la deuxième bifurcation est présenté sur la figure 2.24-b. Bien que le nombre de points expérimentaux soit limité, il est possible d'observer une transition entre l'éclatement et la division similaire à celle de la première bifurcation.

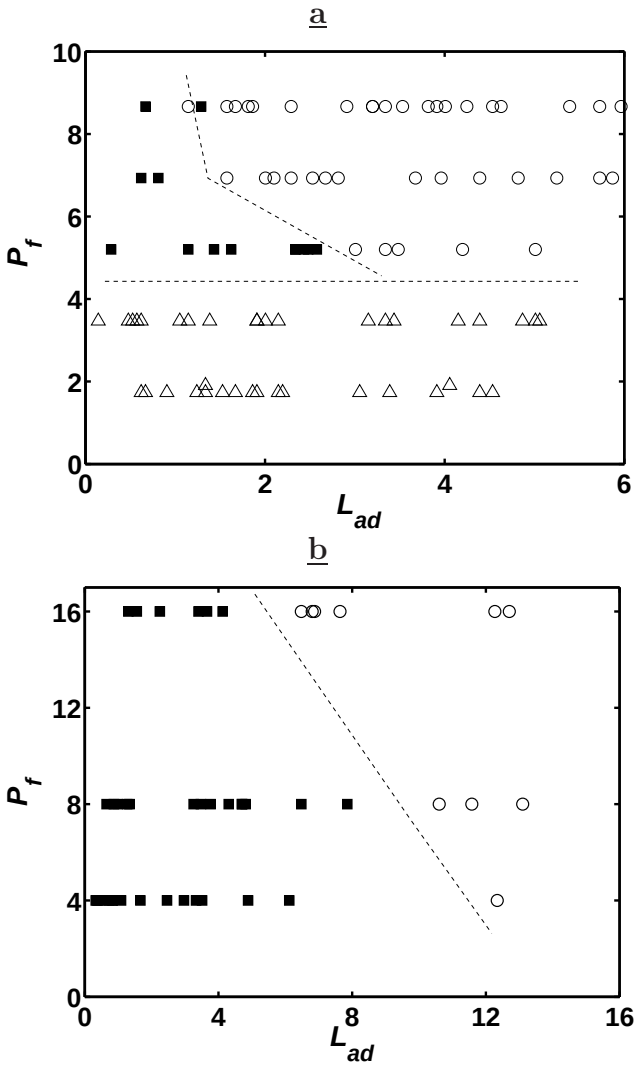


FIG. 2.24: Diagrammes $L_{ad} - P_f$ expérimentaux. On reporte les cas observés qualitativement [division (O), éclatement (■) et blocage (△)] en fonction de la longueur initiale des bouchons et de la pression de forçage adimensionnalisées. **a**- Première géométrie - La valeur de la pression de blocage adimensionnalisée se situe autour de 4-5, et le blocage est indépendant de la longueur des bouchons. **b**- Deuxième géométrie - Le blocage n'est pas observé, les expériences ayant été commencées à une pression de forçage certainement supérieure à la pression de blocage $\mathcal{P}_{blocage}$. La transition entre l'éclatement et la division est similaire à celle obtenue pour la première géométrie : plus la pression de forçage est grande, plus la longueur requise pour obtenir deux bouchons fils est faible.

2.3.4 Quelques traits de la cinématique

La traversée de la bifurcation a été décrite qualitativement dans les paragraphes précédents. Des mesures préliminaires ont cependant été réalisées afin de donner quelques traits du franchissement de la bifurcation. La figure 2.25 montre ainsi une séquence d'images enregistrée pendant la traversée de la bifurcation par un bouchon dont la longueur est environ cinq fois supérieure à la largeur du microcanal.

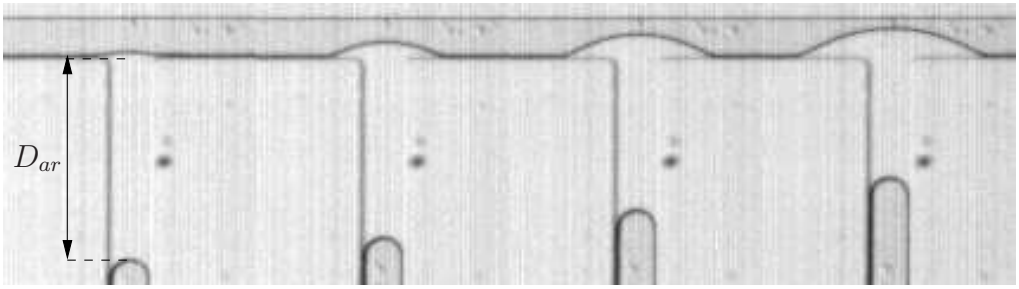


FIG. 2.25: Franchissement de la bifurcation ($\mathcal{P}_f = 4$ cm$_{H_2O}$). Ici, D_{ar} est la position de l'interface arrière, mesurée depuis la sortie du canal d'entrée.

L'observation de la forme de l'interface avant pendant le franchissement est intéréssante. La figure 2.26-a est extraite de la séquence précédente, et montre un zoom numérique sur l'interface qui évolue avec une forme de champignon. Pour quelques images de la séquence, la position de l'interface avant a été repérée en plusieurs points et de cette façon, l'interface a été numérisée. Les points obtenus ont été approchés par des paraboles aux différents instants et celles-ci sont tracées en ligne pointillée sur les images de la figure 2.26-a. Dans ce cas précis, les formes de l'interface aux différents instants sont bien approchée par les paraboles. Ces formes paraboliques sont parfois observées dans les études sur les gouttes, et on peut par exemple citer le travail de Geoffroy *et al.* (2006), dans lequel des paraboles modélisent les formes des interfaces en écoulement quasistatique.

La position de l'interface arrière, D_{ar}, illustrée sur la figure 2.25, a également été mesurée pour certaines séquences pendant la traversée de la bifurcation. Son carré est reporté en fonction du temps sur le graphique 2.26-b. Sur ce graphique, les trois séries de points expérimentaux correspondent à des bouchons de longueur voisine, mais forcés à trois pressions différentes ($P_1 = 3$ cm$_{H_2O}$, $P_2 = 4$ cm$_{H_2O}$ & $P_3 = 5$ cm$_{H_2O}$). L'origine des temps est prise au moment où l'interface avant sort du canal d'entrée, comme sur la première image de la figure 2.25. On observe dans chaque cas, que le carré de la distance évolue linéairement avec le temps, jusqu'à ce que D_{ar}^2 devienne inférieure à 0.5 mm^2 environ, c'est à dire

$D_{ar} \simeq 2.5w$. Une tendance similaire a été observée lors du remplissage d'un microcanal (Ichikawa *et al.*, 2004) : aux temps longs, le déplacement de la colonne de liquide est principalement dominé par les dissipations visqueuses dans la colonne. Dans notre situation qui peut être vue comme la vidange d'un canal, c'est aux premiers instants que l'on peut remarquer cette évolution du carré de la position linéaire en temps. En supposant que la dissipation visqueuse dans la colonne de liquide domine l'écoulement, le champignon interviendrait peu dans la dynamique aux temps courts. Cette hypothèse peut être cohérente avec les formes paraboliques observées dans certains cas et présentées plus haut : la pression pourrait être considérée uniforme dans le champignon et l'écoulement y serait quasistatique. Néanmoins, toutes ces remarques nécessitent des mesures complètes et leur analyse devra prendre en compte les sauts de pression aux interfaces, considérés constants dans cette discussion. Notons finalement que lorsque la longueur de la colonne de liquide devient petite, l'interface arrière accélère.

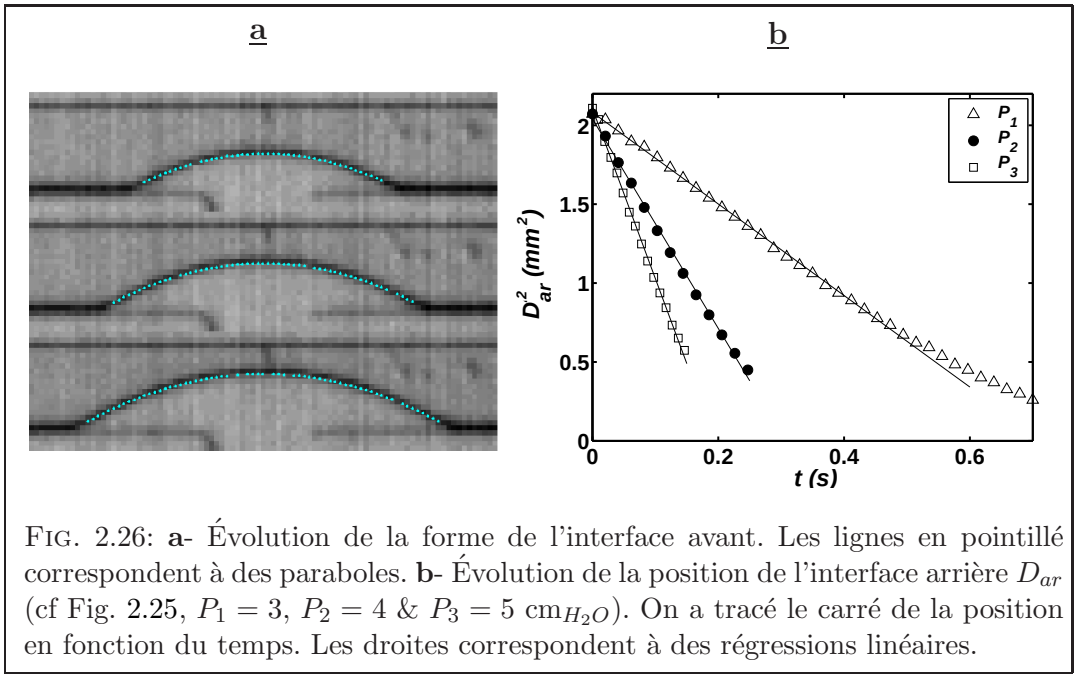


FIG. 2.26: **a-** Évolution de la forme de l'interface avant. Les lignes en pointillé correspondent à des paraboles. **b-** Évolution de la position de l'interface arrière D_{ar} (cf Fig. 2.25, $P_1 = 3$, $P_2 = 4$ & $P_3 = 5$ cm$_{H_2O}$). On a tracé le carré de la position en fonction du temps. Les droites correspondent à des régressions linéaires.

2.3.5 Conclusion

Les expériences sur les bifurcations en T ont montré trois comportements distincts : le blocage du bouchon à l'entrée de la jonction, la division ou l'éclatement du bouchon. Les frontières entre ces comportements dépendent de la pression de forçage et de la longueur initiale du bouchon. Le diagramme 2.27 synthétise les observations faites pour la première bifurcation : la pression de blocage $\mathcal{P}_{blocage}$ est indépendante de la pression de forçage tandis que la longueur critique, L_{crit},

qui est située sur la frontière entre les cas de l'éclatement et de la division, dépend de la pression appliquée. Dans le chapitre 4, on propose des modèles pour chacune des transitions de ce diagramme.

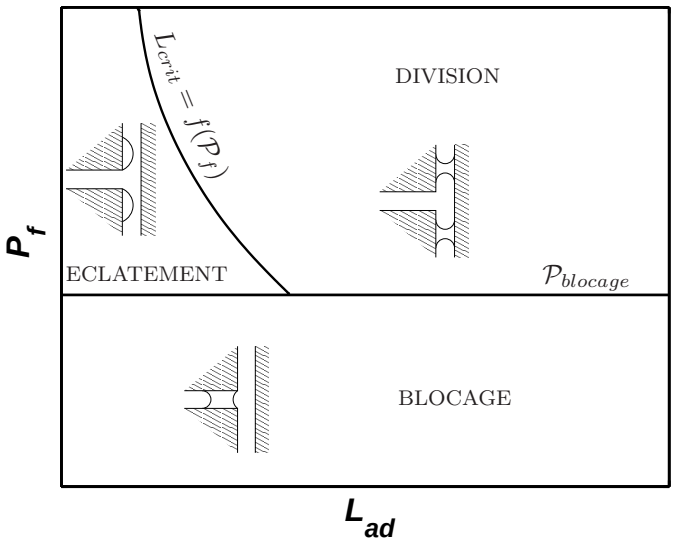


FIG. 2.27: Diagramme synthétisant les régimes observés pour la première bifurcation.

Pendant le franchissement de la jonction par le bouchon, l'interface avant évolue en forme de "champignon". Quelques mesures préliminaires du franchissement semblent montrer que les dissipations visqueuses dans la colonne de liquide dominent la dynamique : le carré de la longueur de liquide dans le canal d'entrée évolue linéairement avec le temps et les formes des interfaces peuvent être approchées par des paraboles. Cette dernière remarque suggère une évolution quasistatique du champignon, tout du moins lors des premiers instants de l'entrée du liquide dans la jonction.

Enfin, ces observations sur les comportements d'un bouchon à une bifurcation sont utiles d'un point de vue pratique pour le transport de bouchons dans un réseau. Concernant la distribution de liquide dans les poumons et l'étude de Cassidy *et al.* (2001) sur la division de bouchons en tubes circulaires, l'utilisation d'une pression imposée met en évidence deux nouveaux comportements, l'éclatement et le blocage. Dans le contexte microfluidique ou celui des milieux poreux, ce dernier cas rappelle les "valves d'arrêt capillaires" (Glière & Delattre, 2006), ou les blocages (Lenormand, 1983), obtenus lorsqu'un ménisque rencontre un changement de géométrie.

Chapitre 3

Modélisation de la dynamique dans un canal droit

L'étude expérimentale de la propagation de bouchons individuels dans un canal droit a montré, dans le chapitre 2, l'établissement d'un régime stationnaire à pression de forçage imposée. Les formes des interfaces des bouchons en déplacement ont été commentées qualitativement. On s'attache dans ce chapitre à caractériser le régime stationnaire observé dans la géométrie droite. Il s'agit d'établir, en analysant les résultats expérimentaux de la section 2.2, les relations entre la pression de forçage, la vitesse du bouchon et sa longueur. Dans ce but, on discute dans la section 3.1.2 les valeurs des nombres adimensionnels rencontrés dans les expériences afin de déterminer les dissipations régissant la dynamique des bouchons. Ces dissipations sont ensuite quantifiées et modélisées à partir de lois locales dans les sections 3.1.2 et 3.2. On compare les résultats avec les expériences et la littérature dans la section 3.2, et on extrapole les lois de propagation des bouchons obtenues à des écoulements diphasiques de plusieurs bouchons dans un microcanal.

3.1 Le régime visco-capillaire

3.1.1 Nombres adimensionnels

Le nombre de Reynolds $Re = \rho V h/\eta$ et le nombre capillaire $Ca = \eta V/\gamma$, calculés à partir des mesures de vitesse des bouchons dans le canal (Fig. 2.11, section 2.2), sont reportés sur la figure 3.1. Les propriétés des liquides sont indiquées dans les sections 2.1.2 et 2.2.4.

Excepté pour les expériences avec l'eau (LPM 1), les nombres de Reynolds sont inférieurs à l'unité et confirment le faible rôle joué par l'inertie sur les écoulements. La valeur maximale du nombre de Reynolds pour les bouchons

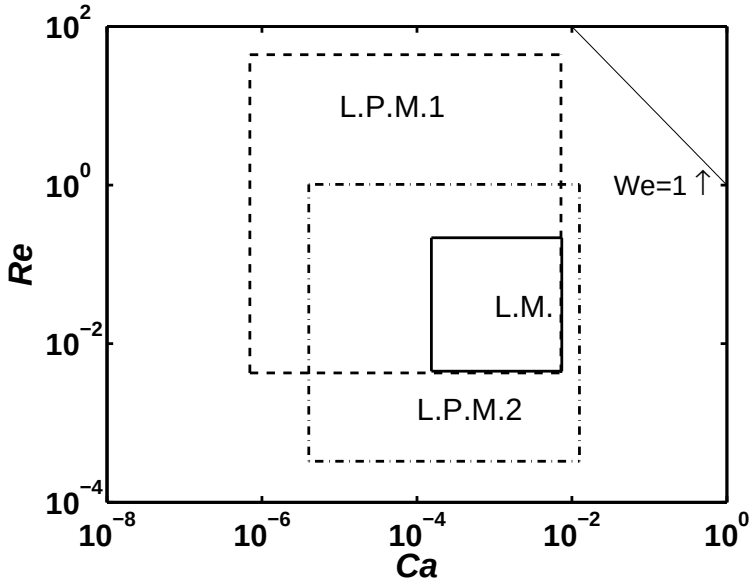


FIG. 3.1: Nombre de Reynolds ($Re = \rho Vh/\eta$) et nombre capillaire ($Ca = \eta V/\gamma$) rencontrés dans les expériences sur les microcanaux droits. La courbe correspond à $We = ReCa = 1$, où We est le nombre de Weber.

d'eau vaut 50 mais ne remet pas en question cette remarque sur l'inertie (Stone *et al.*, 2004). Les nombres capillaires varient quant à eux de 10^{-6} à 10^{-2} pour les liquides partiellement mouillants, et de 10^{-4} à 10^{-2} pour le liquide mouillant. Le nombre de Weber, $We = ReCa$, qui exprime le rapport inertie sur tension de surface, est inférieur à l'unité et les valeurs expérimentales se situent pour les trois liquides sous la courbe We=1, tracée sur figure 3.1. Rappelons également que la gravité est négligeable : le nombre de Bond, $Bo = \rho g h^2/\gamma$, est inférieur à 10^{-3}.

Typiquement, les valeurs du nombre capillaire données ci-dessus sont faibles et elles correspondent à deux régimes distincts. Pour $Ca < 10^{-6} - 10^{-5}$, l'hypothèse quasi-statique est généralement admise et la forme des interfaces est peu influencée par l'écoulement dans le bouchon (Bico & Quéré, 2002*a*; Ajaev & Homsy, 2006; Dong & Chatzis, 1995). Lorsque $10^{-6} - 10^{-5} < Ca < 10^{-2} - 10^{-1}$, les effets visqueux ne deviennent plus négligeables et la forme des interfaces est affectée localement par l'écoulement confiné entre ces dernières et les parois du canal. Les fortes dissipations hydrodynamiques qui y ont lieu sont responsables de la déformation des interfaces. Loin des parois, les forces de tension de surface dominent néanmoins et la courbure des interfaces reste constante. Des exemples typiques de ces phénomènes à nombres capillaires intermédiaires sont la forme d'une bulle d'air dans un écoulement (Wong *et al.*, 1995), la variation de l'angle de contact avec la vitesse de la ligne triple (Hoffman, 1975), ou encore le dé-

pôt de liquide sur une fibre (Quéré, 1999). D'autres dissipations peuvent venir s'ajouter à cette dissipation hydrodynamique : dans le cas des liquides partiellement mouillants, on peut notamment mentionner les phénomènes d'élasticité de la ligne de contact et d'accrochage sur des défauts (Raphael & de Gennes, 1989; Joanny & Robbins, 1990) ou encore d'ondes capillaires (Zhou & Sheng, 1990). Enfin, lorsque le nombre capillaire devient grand ($Ca > 10^{-1}$), des transitions vers d'autres régimes d'écoulements peuvent avoir lieu (Colin, 2004), ou l'influence de l'inertie via le nombre de Weber peut se faire sentir (Quéré, 1991).

3.1.2 Le modèle visco-capillaire

Lorsque phénomènes visqueux et capillaires interagissent au niveau des interfaces et gouvernent la dynamique de ménisques ou de bouchons, le régime est dit visco-capillaire (Quéré, 1991; Suresh & Grotberg, 2005; Prat, 2007). A l'image de l'étude de Stokes *et al.* (1990) portant sur la dynamique de ménisques dans des tubes circulaires, on écrit le bilan de pression régissant le régime stationnaire sous la forme de deux dissipations distinctes, soit

$$P_f = P_{visc} + P_{cap}. \tag{3.1}$$

Rappelons que P_f est la pression de forçage adimensionnalisée. Le premier terme, P_{visc}, rend compte des dissipations visqueuses dans le volume des fluides. Le deuxième terme, P_{cap}, représente les dissipations d'énergie ayant lieu au voisinage des interfaces avant et arrière des bouchons. Ces dernières peuvent aussi être d'origine visqueuse mais sont localisées près des interfaces. C'est par exemple le cas de la diffusion visqueuse entre l'interface et la paroi du microcanal évoquée précédemment. Les deux quantités de l'équation 3.1 s'expriment en termes de pression adimensionnalisée

Le terme P_{visc} peut être approché par une dissipation de type Poiseuille et on en détaille le calcul dans la section suivante. La connaissance de P_{visc} permet ensuite de déterminer le terme capillaire P_{cap} à partir de l'équation 3.1. La méthode de calcul du terme capillaire est présentée dans la section 3.1.4 et appliquée au liquide mouillant dans un premier temps, puis aux liquides partiellement mouillants.

3.1.3 Modélisation de la dissipation visqueuse

Le terme P_{visc} représente les dissipations visqueuses ayant lieu dans l'air en amont et en aval des bouchons et dans le liquide constituant ces derniers. La dissipation dans l'air peut être calculée en utilisant la loi de Poiseuille adaptée à la section rectangulaire des microcanaux. Pour cette géométrie, le coefficient de la loi de Poiseuille, noté α, s'obtient analytiquement au moyen de séries de

Fourier et peut être approché par $\alpha = 12/h^2 \cdot [1 - 6 \cdot (h \cdot 2^5)/(w \cdot \pi^5)]^{-1} + O(h/w)$ (Brody *et al.*, 1996; Stone *et al.*, 2004; Ichikawa *et al.*, 2004). En réalité, on déterminera α au second ordre minimum. La dissipation visqueuse lors de l'écoulement du gaz dans le microcanal, notée $\mathcal{P}_{visc}^{air}$, s'écrit sous la forme

$$\mathcal{P}_{visc}^{air} = \alpha \eta_{air} L_{air} V, \tag{3.2}$$

où η_{air} est la viscosité de l'air ($\eta_{air} = 1.8 \cdot 10^{-2}$ cP), et L_{air} est la longueur de la colonne d'air dans le microcanal qui vaut $L_{air} = L_0 - L$. Ici, L_0 est la longueur du microcanal, et L la longueur du bouchon. Pour établir l'équation 3.2, on suppose que l'air s'écoule dans le canal à la même vitesse que le bouchon. Par ailleurs, le diamètre du tube (660 μm) qui connecte la source de pression constante au microcanal étant supérieur aux dimensions du microcanal, on néglige les pertes de charge dans la connectique extérieure, petites par rapport à celles se produisant dans le microcanal et exprimées par $\mathcal{P}_{visc}^{air}$.

La dissipation visqueuse dans le volume du liquide (ou la longueur du bouchon), notée $\mathcal{P}_{visc}^{liq}$, peut quant à elle être approchée par la même expression que pour l'air. En effet, malgré les zones de recirculation présentes dans le bouchon en déplacement et évoquées dans le chapitre 1, cette méthode a déjà été employée pour des bouchons dans des tubes circulaires (Bico & Quéré, 2001; Zheng *et al.*, 2005). Dans ces conditions, la loi de Poiseuille calculée pour un canal rectangulaire et appliquée sur la longueur L (entre les ménisques) d'un bouchon se propageant à une vitesse V s'écrit

$$\mathcal{P}_{visc}^{liq} = \alpha \eta L V. \tag{3.3}$$

Lorsque les bouchons sont longs, ou bien lorsque la viscosité du liquide est élevée comme pour le cas du LPM 2, la dissipation visqueuse de l'air en écoulement dans le canal est petite par rapport à la dissipation dans le liquide. Néanmoins, on tient compte des deux fluides dans le calcul de la dissipation visqueuse totale. On obtient finalement, après adimensionnalisation et en notant le rapport des viscosités $\lambda = \eta_{air}/\eta$

$$P_{visc} = \frac{\alpha}{\kappa}[(1 - \lambda)L + \lambda L_0]Ca. \tag{3.4}$$

Précisons que, pour obtenir l'équation 3.4, on a fait l'hypothèse de non-glissement à la paroi, dont la légitimité en microfluidique est parfois discutée. Des expériences ont montré, dans le cadre d'écoulements monophasiques dans des microcanaux de taille caractéristique pouvant aller jusqu'à la dizaine de micromètres, des déviations par rapport à la prévision théorique de la loi de Poiseuille avec la condition de non-glissement (Anduze, 2000; Tretheway & Meinhart, 2002; Joseph & Tabeling, 2005). Cependant, les valeurs des longueurs de glissement obtenues diffèrent et la dimension caractéristique des microcanaux à partir de

laquelle le glissement apparaît ne fait pas l'unanimité. On sait de plus que l'utilisation d'une surface hydrophobe (ou de manière équivalente d'un fluide peu mouillant tel que l'eau dans notre cas) favorise le glissement (Squires & Quake, 2005). Néanmoins, malgré ces remarques, on supposera l'hypothèse de non-glissement valide pour les conditions expérimentales en jeu ici.

On montre dans la section suivante que la modélisation de la dissipation visqueuse par la loi de Poiseuille (Eq. 3.4) est appropriée. Pour cela, on calcule, à partir de P_{visc}, le terme capillaire P_{cap} qui représente les dissipations supplémentaires ayant lieu aux interfaces des bouchons.

3.1.4 Calcul des dissipations aux interfaces

Principe

D'après le modèle visco-capillaire, le terme capillaire de l'équation 3.1 s'écrit

$$P_{cap} = P_f - P_{visc}. \tag{3.5}$$

On applique l'équation 3.5 à chacun des points expérimentaux présentés sur les courbes de la figure 2.11 de la section 2.2.3. Le terme P_{visc} est calculé de la façon décrite dans le paragraphe précédent en utilisant les longueurs et les vitesses moyennes des bouchons. La figure 3.2 illustre le principe du calcul en présentant d'une part la pression de forçage adimensionnalisée et le terme visqueux calculé pour une expérience avec le liquide mouillant (Canal 1, $\mathcal{P}_f = 2.5$ cm$_{H_2O}$). Le terme capillaire s'obtient graphiquement en soustrayant, à nombre capillaire donné, le terme visqueux à la pression de forçage. L'équation 3.5 va être appliquée à tous les points expérimentaux des courbes $V - L$ de la section 2.2.3. Afin de s'assurer que les erreurs de mesure sur la longueur et la vitesse entrant en compte dans le terme visqueux ne bruitent pas les termes capillaires calculés, on ne garde que les points pour lesquels $P_{cap} > 30\%\ P_f$.

Application au liquide mouillant

L'utilisation de la viscosité du LM à 25 ℃ dans le calcul du terme visqueux permet d'obtenir pour le terme capillaire les courbes $Ca - P_{cap}$ de la figure 3.3. Sur cette figure, on reporte, en échelles logaritmiques, les termes P_{cap} obtenus avec le canal 1 en fonction du nombre capillaire et pour les différentes pressions de forçage appliquées ($P_{1;2;3} = 1.5;\ 2.5;\ 4$ cm$_{H_2O}$). En fait, afin de garder une certaine similitude avec les courbes $P_f - Ca$ de la section 2.2.4, on trace ici le nombre capillaire en fonction du terme capillaire.

Excepté pour la plus faible pression, les points s'alignent sur une même droite. Les termes capillaires sont donc uniquement fonctions du nombre capillaire et sont indépendants de la longueur du bouchon : ils représentent les dissipations

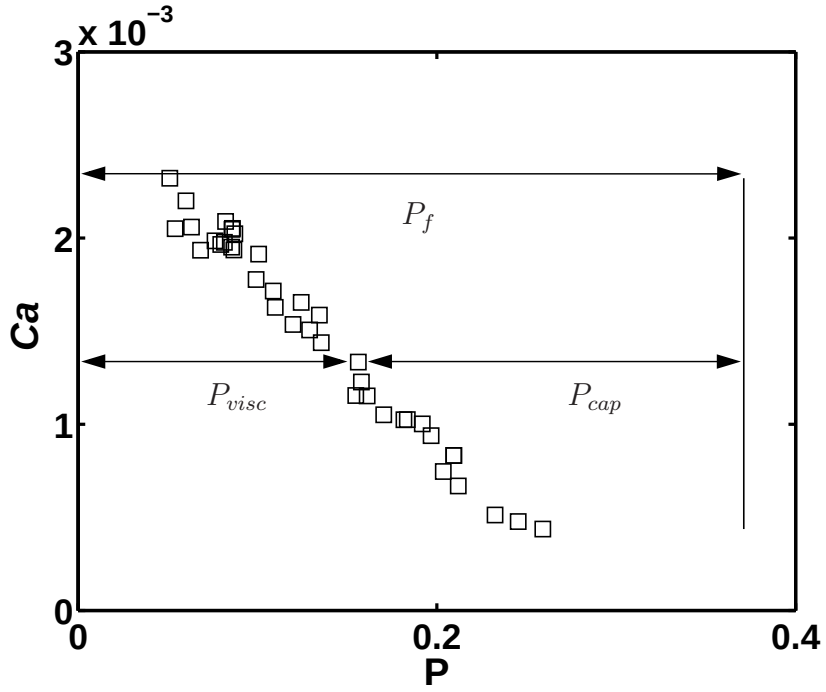


FIG. 3.2: Illustration du calcul des contributions visqueuses et capillaires. La ligne verticale en trait continu représente la pression de forçage appliquée. Pour chaque bouchon, on calcule la dissipation visqueuse P_{visc} ayant lieu dans le liquide et l'air à partir des vitesses et longueurs moyennes. Cette dissipation, estimée pour les bouchons de liquide mouillant forcés dans le canal 1 avec une pression de forçage $\mathcal{P}_f = 2.5$ cm$_{H_2O}$, est ici reportée en fonction du nombre capillaire : elle augmente avec celui-ci. La différence entre la pression de forçage, P_f, et le terme P_{visc} donne la dissipation ayant lieu aux interfaces, P_{cap}.

ayant lieu aux interfaces. La pente de la droite de régression est 1.55 et l'ordonnée à l'origine vaut -4.32.

On effectue le même calcul pour les expériences réalisées avec le canal 3 et pour cinq pressions de forçage différentes. On reporte les résultats correspondants et ceux de la première géométrie sur le graphique 3.4. Afin d'en simplifier la lecture, les pressions ne sont plus indiquées. La courbe obtenue pour le deuxième canal a la même allure : les points expérimentaux s'alignent sur une droite et les termes capillaires sont indépendants de la longueur des bouchons. La droite de régression a dans ce cas une pente de 1.54, valeur voisine de celle de la première géométrie. L'ordonnée à l'origine est inférieure et vaut -4.69. Comme pour le canal 1, les points qui ne s'alignent pas sur la droite de régression correspondent à la plus faible pression.

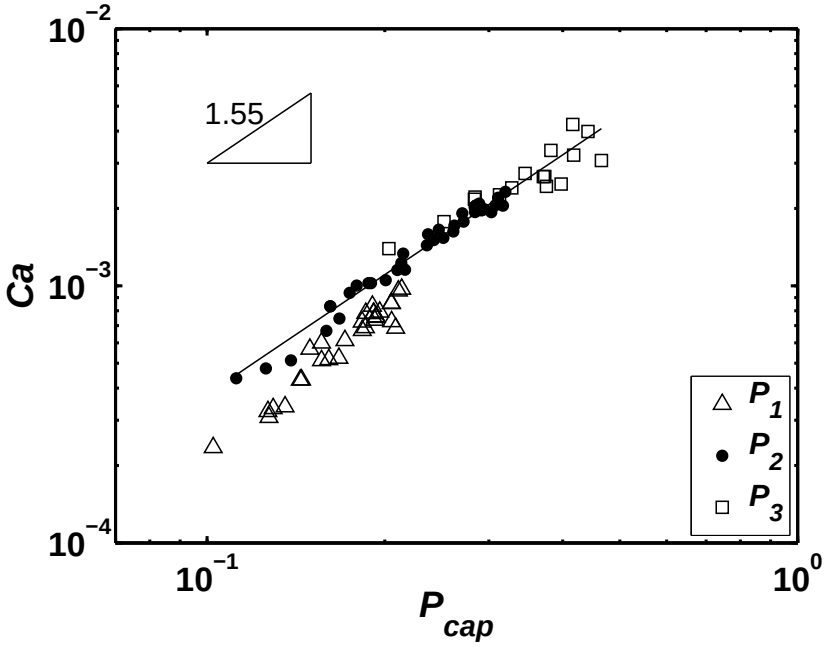


FIG. 3.3: Terme capillaire pour le liquide mouillant pour la première géométrie (Canal 1). ($P_{1;2;3}$ = 1.5; 2.5; 4 cm_{H_2O}). La droite de régréssion est calculée pour les points obtenus avec les pressions P_2 et P_3 uniquement.

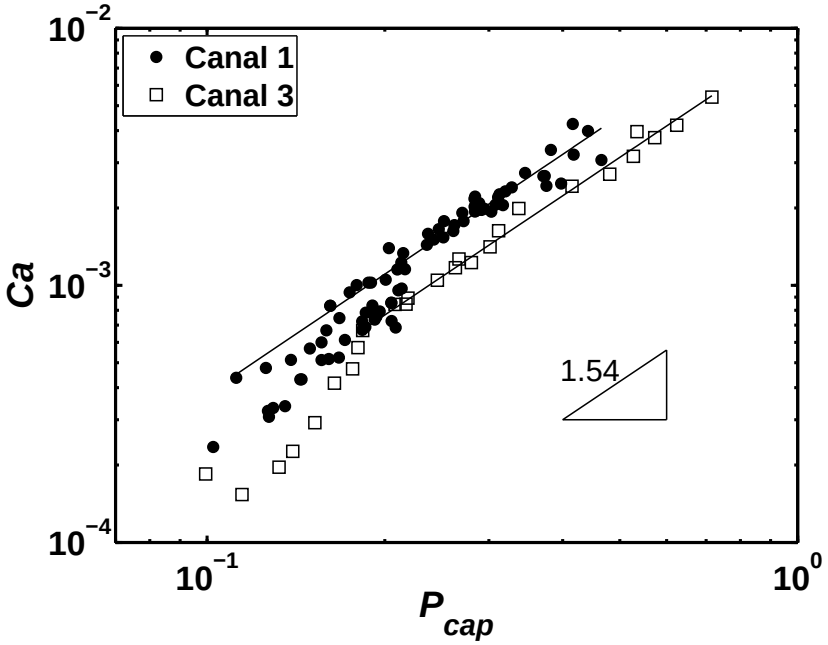


FIG. 3.4: Terme capillaire pour le liquide mouillant pour les canaux 1 & 3. Les points expérimentaux obtenus pour le canal 3 peuvent être approchés par une droite de pente 1.54. Comme pour le graphique précédent, la plus faible pression n'est pas prise en compte dans le calcul de la régression linéaire.

Application aux liquides partiellement mouillants

La méthode précédente est appliquée aux liquides partiellement mouillants. En utilisant les viscosités dynamiques des liquides à 25 ℃ du tableau 2.1 de la section 2.1.2 pour le calcul du terme visqueux, on obtient les courbes $Ca - P_f$ présentées dans l'annexe B. Les nuages de points obtenus suggèrent une certaine dépendance des termes capillaires vis à vis de la longueur des bouchons, contrairement au cas mouillant. Les. Devant ce résultat surprenant, la viscosité des liquides est ajustée de manière à prendre en compte une éventuelle influence de la température de la lampe du microscope. Les puces microfluidiques sont en effet illuminées par le dessous par une lampe et la température sur la platine du microscope est d'environ 32 ℃. Les courbes obtenues avec les valeurs de viscosité et de tension de surface des LPM à la température de 30 ℃ sont présentées sur les graphiques de la figure 3.5, en échelles logaritmiques. Les points expérimentaux semblent suivre une certaine tendance, ce qui n'était pas observé sur les courbes de l'annexe B calculées pour des viscosités des liquides à 25 ℃.

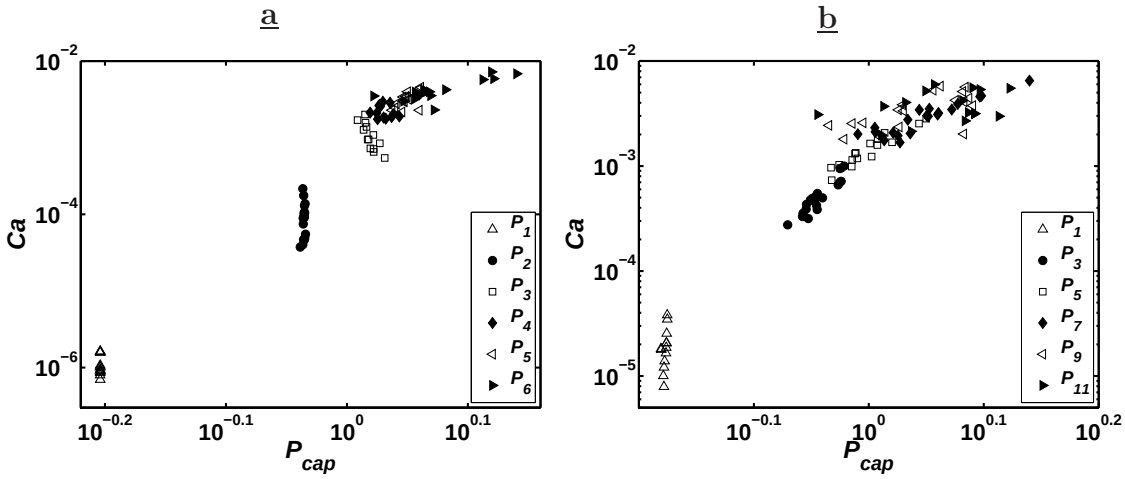


FIG. 3.5: Terme capillaire pour les liquides partiellement mouillants. **a**- LPM 1. **b**- LPM 2. Les propriétés des liquides sont prises à $T = 30$ ℃ et les pressions sont les mêmes que celles des courbes de la figure 2.11.

Notons que sur ces graphes, l'effet de la température sur la tension de surface a également été pris en compte pour le calcul de la pression de référence et du nombre capillaire. Les viscosités et tensions de surface utilisées sont données dans la section 2.2.4. L'introduction d'une longueur de glissement aurait le même effet que l'influence de la température de la lampe du microscope sur la viscosité, puisqu'elle diminuerait la viscosité et permettrait donc d'aboutir également à une indépendance des termes capillaires vis à vis de la longueur des bouchons. Néanmoins, cet effet, qui n'aurait pas de conséquence sur les exposants d'éventuelles lois d'échelle, est négligé, la prise en compte seule de la température semblant être suffisante et raisonnable.

Finalement, les termes capillaires obtenus pour les liquides partiellement mouillants sont reportés sur la figure 3.6. On utilise les pressions intermédiaires (25-35-...-65 cm_{H_2O}) pour la solution aqueuse de glycérol. Les courbes obtenues montrent un comportement similaire pour les deux liquides lorsque les pressions de forçage deviennent importantes. Cela conforte la méthode de calcul du terme visqueux qui prend en compte la température du microscope. Néanmoins, pour les faibles pressions de forçage, les LPM 1 & 2 exhibent des tendances différentes, sans doute liées aux pressions seuils qui sont différentes pour les deux liquides. On peut également noter un problème avec l'eau et les bouchons forcés avec la pression P_3 (voir Fig. 3.5-a).

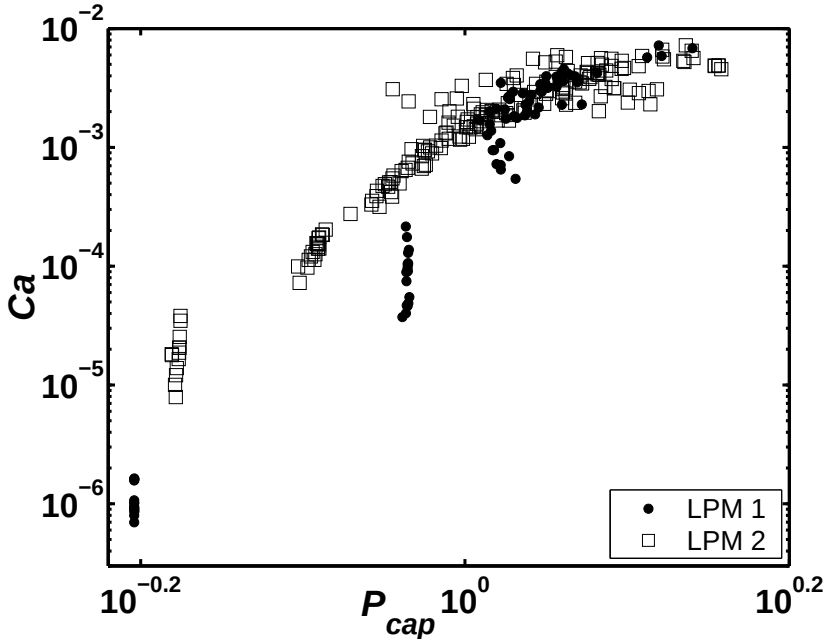


Fig. 3.6: Comparaison du terme capillaire pour les LPM 1 & 2

Comparaison des liquides

Contrairement au liquide mouillant, les termes capillaires des liquides partiellement mouillants ne s'alignent pas sur une même droite. Le graphique 3.7 permet de synthétiser les résultats obtenus et comparer les effets de la mouillabilité du canal. Pour simplifier la lecture du graphique, seuls les points correspondant au LPM 2 sont reportés et on présente uniquement les termes capillaires pour une même géométrie (Canaux 1 & 2). Ils semblent montrer une même tendance à se rejoindre asymptotiquement.

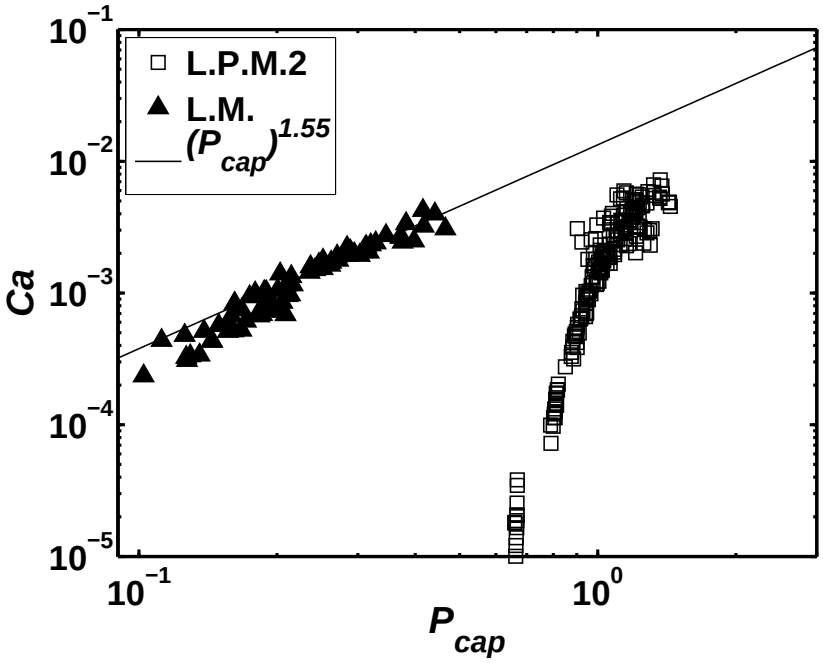


FIG. 3.7: Comparaison des liquides mouillant et partiellement mouillant (ici, le LPM 2) pour des canaux de même dimension.

3.2 Modélisation des contributions capillaires

Les dissipations visqueuses dans le volume des bouchons et dans la colonne d'air en écoulement dans le microcanal ont été modélisés par la loi de Poiseuille en géométrie rectangulaire, et ont abouti à "l'extraction" du terme capillaire à partir des données expérimentales. Dans cette section, on propose un modèle théorique pour la loi d'échelle observée pour les bouchons de liquide mouillant. Dans le cas du mouillage partiel, on applique ensuite des méthodes de la littérature pour isoler un coefficient de friction. On trouve pour cette quantité une nouvelle loi d'échelle empirique.

3.2.1 Modèle théorique pour le liquide mouillant

On adapte ici une étude de Bico & Quéré (2001), dans laquelle les auteurs caractérisent la chute par gravité de bouchons de liquide mouillant dans des tubes capillaires de section circulaire. La gravité sert à mettre en mouvement les bouchons mais ne joue pas sur les effets aux interfaces. Ceux-ci s'opposent au déplacement du bouchon à travers des variations dynamiques des rayons de courbure des interfaces avant et arrière.

Lois de Tanner et de Bretherton en géométrie rectangulaire

On suppose que la forme d'un bouchon en déplacement peut être représentée par le schéma de la figure 3.8. Le bouchon de longueur moyenne L se déplace avec une vitesse stationnaire V. A l'avant du bouchon, l'angle de contact entre l'interface et la paroi est régi par les dissipations visqueuses dans le coin, et il varie en fonction de la vitesse de l'interface ou du bouchon : c'est l'angle de contact dynamique noté θ^{av}. A l'arrière, le bouchon dépose un film de liquide dont l'épaisseur dépend également de la vitesse de propagation.

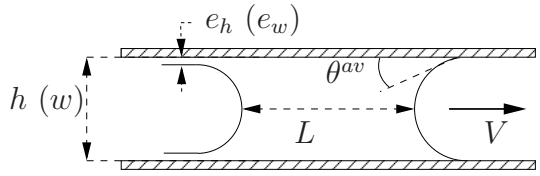


FIG. 3.8: Schéma du bouchon. A l'avant, l'interface fait un angle de contact dynamique θ^{av}. On suppose que l'angle est le même dans l'épaisseur et la largeur. Par contre, les épaisseurs de film déposé à l'arrière du bouchon sont différentes et sont notées respectivement e_h et e_w pour la hauteur et la largeur.

Les lois théoriques de Tanner (Tanner, 1979; de Gennes, 1985) et de Bretherton (Bretherton, 1961; Quéré, 1991) permettent de connaître pour des écoulements dans des tubes circulaires ou sur des substrats plans, les dépendances de l'angle de contact dynamique et de l'épaisseur du film de liquide en fonction du nombre capillaire. Ces lois sont issues d'un équilibre entre forces de mouillage et dissipations visqueuses dans les régions confinées. On utilise ces deux lois pour les microcanaux de section rectangulaire.

A l'avant, l'interface forme avec la paroi un angle de contact dynamique θ^{av}. Cet angle est supposé le même dans la largeur et la hauteur du canal. D'après l'équation 2.2 de la section 2.1.2, le saut de pression capillaire à l'interface avant, $\mathcal{P}^{av}_{cap}$, est relié à cet angle par la relation

$$\mathcal{P}^{av}_{cap} = -\gamma\kappa\cos\theta^{av}. \tag{3.6}$$

D'autre part, la loi de Tanner relie l'angle de contact dynamique θ^{av} au nombre capillaire Ca selon

$$\theta^{av} \simeq (6\Gamma Ca)^{1/3}, \tag{3.7}$$

où Γ est un facteur logaritmique, nécessaire à la résolution du calcul de la dissipation visqueuse au sommet de l'angle. On reviendra dans la discussion sur ce coefficient, dont la valeur dépend notamment du prémouillage du tube. Pour des tubes circulaires millimétriques, Bico & Quéré (2001) utilisent la valeur $\Gamma = 13$, dans la plage de valeurs généralement admises dans la littérature et pour les diverses formes de la loi de Tanner (Colin, 2004; de Gennes *et al.*, 2004). La loi de Tanner s'exprime donc sous la forme $\theta^{av} \simeq k_T\, Ca^{1/3}$ où $k_T = (6\Gamma)^{1/3}$ est de

l'ordre de 4-5 pour des tubes millimétriques. En utilisant les équations 3.6 et 3.7, et en développant le cosinus à l'ordre 2, il vient

$$\mathcal{P}_{cap}^{av} = -\gamma\kappa \left[1 - \frac{k_T^2}{2} Ca^{2/3}\right]. \tag{3.8}$$

Le saut de pression à l'interface diminue avec le nombre capillaire et la dépression dans le liquide à l'avant du bouchon devient moins motrice.

A l'arrière, une relation similaire peut être obtenue. La loi de Bretherton donne pour un tube circulaire l'épaisseur du film déposé lors du déplacement d'un fluide visqueux par un fluide moins visqueux. Elle s'écrit $e/R = k_B\ Ca^{2/3}$, où e est l'épaisseur du film, et R le rayon du tube. Le coefficient k_B vaut 3.88 (Bico & Quéré, 2001). L'épaisseur du film de liquide déposé à l'arrière du bouchon dépend donc du nombre capillaire mais aussi de la géométrie. Pour les microcanaux, la section étant rectangulaire, les épaisseurs laissées à l'arrière du bouchon de liquide mouillant sont différentes dans la largeur et la hauteur. On les note e_w et e_h, où e_w (respectivement e_h) correspond à l'épaisseur du film déposé dans la largeur (respectivement la hauteur) (voir Fig. 3.8). En supposant la loi de Bretherton valide dans notre géométrie, il vient

$$\frac{2e_h}{h} = \frac{2e_w}{w} = k_B Ca^{2/3}. \tag{3.9}$$

Le saut de pression capillaire à l'interface arrière, noté $\mathcal{P}_{cap}^{ar}$, peut être obtenu à partir des rayons de courbure principaux. Ceux-ci sont différents de leur valeur statique en raison de l'épaisseur de liquide déposé. En utilisant la loi de Laplace, on obtient

$$\mathcal{P}_{cap}^{ar} = \gamma \left[\frac{1}{h/2 - e_h} + \frac{1}{w/2 - e_w}\right]. \tag{3.10}$$

En développant les fractions et en utilisant les équations 3.9, le saut de pression capillaire à l'interface arrière s'écrit

$$\mathcal{P}_{cap}^{ar} = \gamma\kappa \left[1 + k_B Ca^{2/3}\right]. \tag{3.11}$$

Le film déposé, en diminuant les rayons de courbure à l'interface arrière du bouchon, augmente le saut de pression capillaire correspondant. La pression dans le liquide à l'arrière du bouchon diminue donc lorsque la vitesse augmente, et une plus grande partie de la pression appliquée est dissipée à l'interface.

En additionnant les sauts de pressions aux interfaces avant et arrière du bouchon (Eq. 3.8 et 3.11) et après adimensionnalisation, on obtient le terme capillaire sous la forme

$$P_{cap} = kCa^{2/3}, \tag{3.12}$$

où le coefficient k est fonction des coefficients des lois de Tanner et de Bretherton selon

$$k = k_B + k_T^2/2. \tag{3.13}$$

En prenant les valeurs numériques des coefficients des lois de Tanner et de Bretherton, on obtient $k \simeq 3.88 + 4.5^2/2 \simeq 14$ (le coefficient de Tanner est ici pris à 4.5, une valeur intermédiaire de celles mentionnées précédemment dans le cas de tubes millimétriques).

Comparaison du modèle avec les expériences

Loi d'échelle Pour les expériences, on avait calculé le nombre capillaire en fonction du terme capillaire. En tenant compte des résultats obtenus avec les deux expériences, la loi d'échelle expérimentale se met sous la forme

$$Ca \sim P_{cap}^{1.54\pm0.01} \tag{3.14}$$

soit

$$P_{cap} \sim Ca^{0.65\pm0.01}, \tag{3.15}$$

à comparer avec l'équation 3.12. Les lois d'échelle expérimentales sont donc en accord avec le modèle théorique de l'équation 3.12. Par ailleurs, les valeurs du nombre capillaire mesurées lors des expériences ($10^{-4} - 10^{-2}$) sont bien dans les domaines d'application des lois de Bretherton et de Tanner (Bico & Quéré, 2002*b*).

Coefficients numériques Les coefficients numériques des lois d'échelle expérimentales sont respectivement égaux à $e^{-4.32}$ et $e^{-4.69}$ pour les canaux 1 et 3. On obtient pour le canal 1, $P_{cap} = 16.2Ca^{0.65}$ et pour le canal 3, $P_{cap} = 21.0Ca^{0.65}$. Ces valeurs sont proches de la valeur théorique précédente (k=14), calculée pour des tubes millimétriques. Néanmoins, elles sont supérieures indiquant une dissipation accrue et elles diffèrent pour les deux canaux : le coefficient est plus grand pour le canal 3, de dimensions inférieures.

Influence du film précurseur Alors que le coefficient théorique de la loi de Bretherton est unique, le coefficient de la loi de Tanner $k_T = (6\Gamma)^{1/3}$ dépend de la géométrie mais aussi d'une longueur de coupure (Bico & Quéré, 2001). Le coefficient Γ est en fait un facteur logaritmique nécessaire pour contourner la singularité de la dissipation visqueuse au sommet de l'angle dynamique et on peut écrire Γ sous la forme

$$\Gamma = \ln \frac{x_{max}}{x_{min}}. \tag{3.16}$$

Ici, x_{max} est la "longueur du coin" où la dissipation a lieu, et x_{min} est une longueur de coupure. Le premier terme est généralement pris comme étant égal au rayon du tube dans la géométrie circulaire, tandis que la longueur de coupure correspond à l'épaisseur d'un film liquide situé en amont du liquide. Il peut provenir du prémouillage du canal, ou dans le cas d'un canal sec, du développement spontané d'un film précurseur en amont de la ligne de contact lors du mouillage total

(de Gennes, 1985). Dans cette situation, x_{min} est pris égal à une taille moléculaire ($x_{min} \simeq 10$ Å) et dans le cas prémouillé qui correspond a priori à nos expériences, x_{min} est pris égal à l'épaisseur du film déposé lors du prémouillage. Bien que ce paramètre ne soit pas contrôlé, en suivant un protocole précis dans l'ordre de formation des bouchons par exemple, on peut estimer cette épaisseur par la loi de Bretherton en prenant un nombre capillaire moyen, $Ca \simeq 10^{-3}$. Pour le canal 1 de hauteur $h = 55$ μm, on obtient pour l'épaisseur de film liquide déposé dans la hauteur du canal, $x_{min} \simeq 1$ μm. En considérant uniquement les effets dans l'épaisseur, on peut calculer le coefficient k à partir de l'équation 3.13 et de l'expression de Γ (Eq. 3.16), en utilisant les deux valeurs précédentes pour x_{min}, et en considérant $x_{max} \simeq h/2$. L'évolution de k est portée en fonction de la hauteur du canal sur le graphique 3.9. La comparaison avec les valeurs expérimentales montre, d'une part, que les valeurs théoriques de Γ sont inférieures aux coefficients expérimentaux et d'autre part, que la tendance observée est différente : le coefficient expérimental diminue avec la hauteur du microcanal alors que le coefficient théorique varie nettement moins, en augmentant. Alors qu'a priori, les microcanaux sont prémouillés dans les expériences, les valeurs théoriques calculées pour un canal sec sont les plus proches des points expérimentaux.

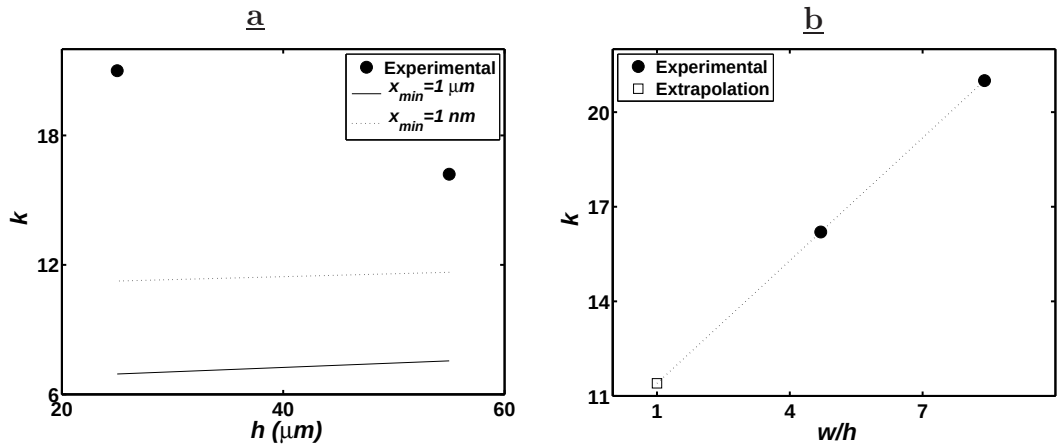


FIG. 3.9: **a-** Comparaison des valeurs théoriques et expérimentales du coefficient k (Eq. 3.13). Le coefficient théorique est obtenu par les équations 3.13 et 3.16, en prenant dans cette dernière, $x_{max} = h/2$ et $x_{min} = 1$ μm (canal prémouillé) ou $x_{min} = 10$ Å (canal sec). **b-** Tracé du coefficient en fonction du facteur de forme w/h (Canal 1 : $w/h \simeq 4.7$, Canal 3 : $w/h \simeq 8.4$) et extrapolation linéaire pour une géométrie carrée $w/h = 1$.

Influence du facteur de forme w/h et rôle des coins Le coefficient expérimental k obtenu pour le canal 1 ($w/h \simeq 4.7$) est inférieur à celui de la deuxième géométrie (canal 3, $w/h \simeq 8.4$). Il est difficile de connaître le rôle des coins et du facteur de forme dans les dissipations. Il est possible que la différence des rayons

de courbure dans la largeur et l'épaisseur induise des gradients de pression capillaire qui influent sur le saut de pression à l'interface. Ces gradients de pression capillaire vont ainsi engendrer des écoulements des régions de plus faible courbure vers les régions de courbure supérieure. Cet effet est sans doute moindre pour les facteurs de forme de l'ordre de 1. Dans ce sens, en étudiant le déplacement de bulles dans des géométries carrées, Wong *et al.* (1995) ont obtenu des sauts de pression dynamiques aux interfaces voisins de ceux obtenus par Bretherton dans la géométrie circulaire ($\mathcal{P}_l - \mathcal{P}_g = 3.57Ca^{2/3}$). Pour la loi de Tanner, les coefficients expérimentaux en géométrie rectangulaire sont inférieurs à ceux de la géométrie circulaire, mais restent néanmoins voisins ($k_T = 3.4$, Chebbi (2003)). En prenant ces valeurs, on obtient un coefficient $k = 3.57 + 3.4^2/2 = 9$. Bien que d'autres investigations soient nécessaires, on peut finalement remarquer que l'extrapolation des résultats expérimentaux à une géométrie carrée ($w/h = 1$) présentée sur le graphique (b) de la figure 3.9, conduit à une valeur de l'ordre de 11. Celle-ci se rapproche de la valeur précédente et de celles calculées à partir du modèle circulaire de Bico & Quéré (2001) en situation sèche, pour des dimensions submillimétriques. Finalement, le coefficient expérimental k dépend des dimensions du canal mais sa valeur ne semble pas affectée par l'absence de contrôle de l'épaisseur du film de prémouillage.

3.2.2 Modèle empirique en mouillage partiel

Calcul d'un coefficient de friction

Excepté pour les grandes vitesses (cf section 2.2.5), les liquides partiellement mouillants ne déposent pas de film et les ménisques des bouchons présentent à l'avant comme à l'arrière des angles de contact non nuls. L'évolution de ces angles est liée, d'une part à l'hystérésis des angles statiques d'avancée et de recul, et d'autre part, à l'influence de la vitesse de la ligne de contact (Cox, 1986).

On reprend une méthode développée par Fermigier & Jenfer (1991), Zhou & Sheng (1990), Stokes *et al.* (1990) et Joanny & Robbins (1990). Dans ces études, les auteurs isolent un coefficient de friction obtenu en soustrayant au terme capillaire P_{cap}, la pression seuil liée à l'hystérésis des angles de contact, P_{seuil}. Le coefficient de friction s'écrit

$$CF = P_{cap} - P_{seuil}. \tag{3.17}$$

Des lois d'échelles pour le coefficient de friction ont été obtenues expérimentalement ou théoriquement en fonction du nombre capillaire ou de la vitesse de la ligne de contact. On se propose de calculer le coefficient de friction pour les expériences réalisées avec la solution aqueuse de glycérol, pour lequel l'extraction du terme capillaire donne des résultats plus exploitables que ceux avec l'eau. On détermine la pression seuil pour ce liquide dans le paragraphe suivant.

Estimation de la pression seuil

Comme on l'avait vu dans la section 2.2.4, la détermination de la pression seuil est assez subjective. Le graphique 2.14 permet d'évaluer le seuil de pression et donne pour le cas du LPM 1 un ordre de grandeur en accord avec la prédiction théorique de l'équation 2.9. Pour le LPM 2, on ne dispose pas de mesures d'angles statiques d'avancée et de recul mais le graphique 2.14 donne également une estimation de la pression seuil qui se situe dans l'intervalle [0.6-0.8]. Afin d'obtenir une valeur plus fine, la figure 3.10-a reprend le terme capillaire P_{cap} calculé pour le LPM 2 avec l'équation 3.12. La courbe montre clairement un saut dans le terme capillaire. Ce saut a lieu entre les points expérimentaux des pressions de forçage $P_1 = 20$ cm$_{H_2O}$ et $P_2 = 25$ cm$_{H_2O}$, ou en termes de pression adimensionnalisée, pour $0.67 < P_{cap} < 0.79$. Pour le LPM 2, on estime ainsi la pression seuil comme

$$P_{seuil} = 0.73 \pm 0.06. \tag{3.18}$$

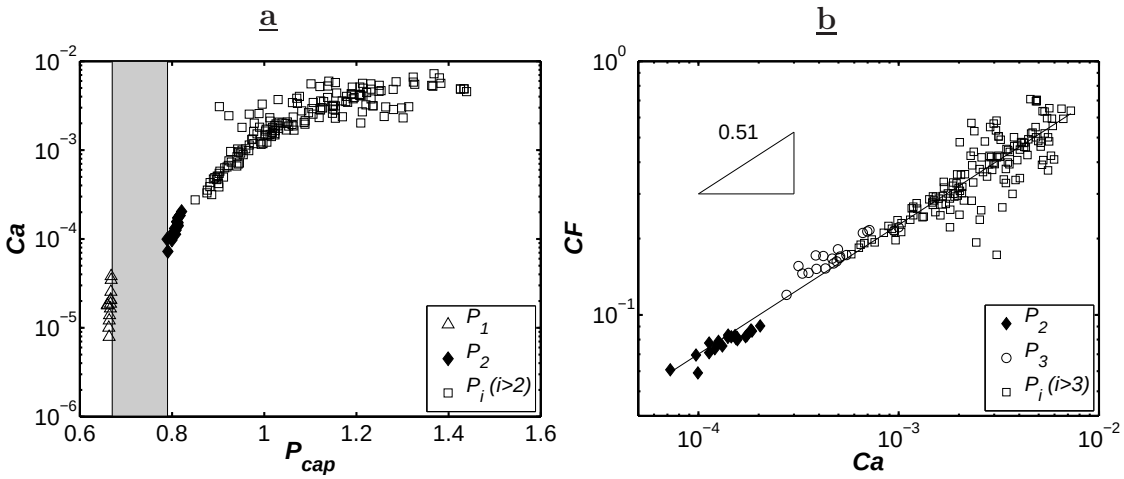


FIG. 3.10: **a**-Détermination de la pression seuil pour le LPM 2. La pression seuil se situe dans l'intervalle grisé [0.67-0.79]. **b**- Le coefficient de friction est reporté en fonction du nombre capillaire.

Le coefficient de friction

L'utilisation de la valeur précédente pour la pression seuil dans le calcul du coefficient de friction (Eq. 3.17) permet d'aboutir au graphique (b) de la figure 3.10. Les valeurs expérimentales s'alignent sur une même droite dont la pente vaut 0.51 et l'ordonnée à l'origine est 6.77. En tenant compte de l'erreur sur la pression seuil, on obtient finalement

$$CF \sim Ca^{0.51 \pm 0.14}. \tag{3.19}$$

Le coefficient numérique de cette loi d'échelle varie de façon importante, de 4.45 à 17.6, en fonction de la pression seuil considérée.

Discussion

Ces exposants sont voisins de ceux que l'on peut trouver pour le coefficient de friction dans la revue de Sahimi (1993). Parmi les études citées et traitant de la dynamique de ménisques en géométrie circulaire, on peut trouver des valeurs expérimentales des exposants comprises entre 1/3 et 1/2, avec une erreur allant de ± 0.05 à ± 0.1. Les facteurs numériques se situent autour de 3-8 (Stokes *et al.*, 1990; Zhou & Sheng, 1990). Malgré des erreurs importantes dues à l'imprécision sur la valeur de la pression seuil, l'exposant du coefficient de friction mesuré ici pour une géométrie rectangulaire est donc proche de ceux de la littérature. On peut mentionner également les modèles théoriques de Zhou & Sheng (1990), Joanny & Robbins (1990) et Raphael & de Gennes (1989) qui donnent respectivement des exposants de 1/2, et 2/3 pour les deux derniers groupes d'auteurs. Les modèles sont construits en considérant l'amortissement d'ondes capillaires aux interfaces, ou des mécanismes d'accrochage ou d'élasticité de la ligne de contact sur des défauts. Le modèle hydrodynamique pour l'angle de contact existe également pour le mouillage partiel, et la variante de la loi de Tanner est la loi de Cox (Cox, 1986; Fermigier & Jenfer, 1991). Nos résultats expérimentaux sont en désaccord avec cette loi, puisque l'exposant du coefficient de friction serait égal à l'unité dans ce cas (Stokes *et al.*, 1990). Bien que les liquides mouillant et partiellement mouillants tendent vers un même comportement (cf Fig. 3.7), il n'est donc pas possible d'affirmer que la dynamique de bouchons de liquide partiellement mouillant est gouvernée par des mécanismes hydrodynamiques, comme dans le cas du mouillage total. Enfin, une transition pour le coefficient de friction ayant lieu pour $Ca = 2 \cdot 10^{-3}$ est évoquée par Zhou & Sheng (1990). Elle n'est pas observée lors de nos expériences.

3.3 Lois de transport en microcanal

3.3.1 Lois de transport

Finalement, il est possible d'écrire les lois de propagation du régime stationnaire viscocapillaire observé dans les expériences sur les microcanaux droits. Pour le liquide mouillant, on peut écrire

$$P_f = a_v(L)Ca + a_m Ca^{b_m}, \tag{3.20}$$

et pour le liquide partiellement mouillant

$$P_f - P_{seuil} = a_v(L)Ca + a_{pm} Ca^{b_{pm}}. \tag{3.21}$$

Le premier terme linéaire en Ca rend compte de la dissipation visqueuse de type Poiseuille dans le liquide et l'air en écoulement. Le coefficient a_v est identique pour les deux liquides et se calcule analytiquement en fonction de la longueur du

bouchon. Le second terme, qui est non linéaire, est la contribution des sauts de pression dynamiques aux interfaces. La théorie et les résultats expérimentaux montrent que les coefficients a_v et $a_{m,pm}$ dépendent de la géométrie.

3.3.2 Application

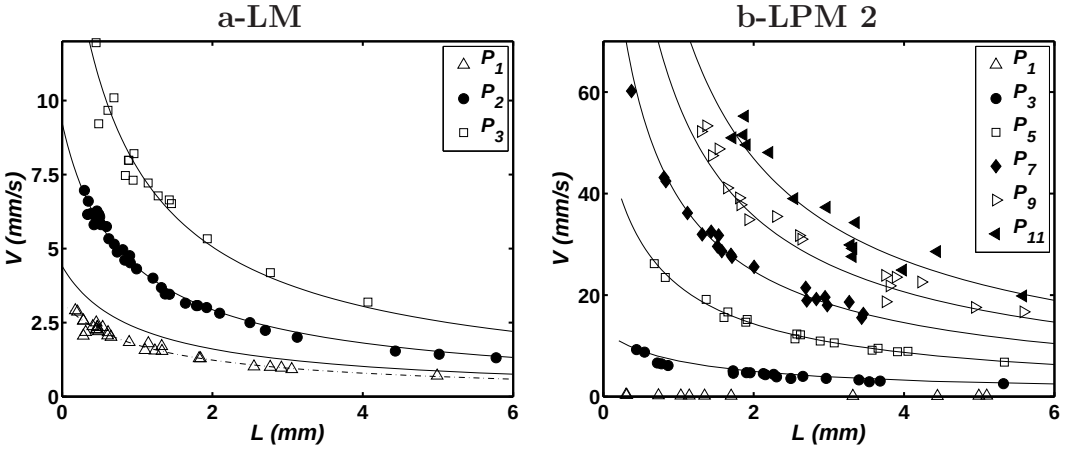


FIG. 3.11: Comparaison des vitesses expérimentales et théoriques. Pour le liquide mouillant (gauche), la courbe en trait discontinu correspond à une pression P_1 ajustée à 1.2 cm_{H_2O} au lieu de 1.5 cm_{H_2O}. (droite)- LPM 2.

En utilisant les formes dimensionnelles des équations 3.20 et 3.21, les coefficients numériques obtenus expérimentalement, ainsi que la valeur de la pression seuil pour le liquide partiellement mouillant, on peut calculer les courbes $V - L$ théoriques de la figure 3.11. Le graphique (a) correspond au liquide mouillant tandis que sur la figure (b), il s'agit des bouchons de LPM 2. Les vitesses des bouchons sont prédites très correctement. Des déviations apparaissent pour la plus faible pression dans le cas mouillant et pour les hautes pressions dans le cas partiellement mouillant. Dans ce dernier cas, les erreurs sont dues à des imprécisions sur la mesure de la position des interfaces, dont la netteté diminue au fur et à mesure que les vitesses deviennent grandes. Pour le liquide mouillant, la ligne en trait pointillé de la figure 3.11-a est calculée en ajustant la pression : on a utilisé une valeur de 1.2 cm_{H_2O} au lieu de 1.5 cm_{H_2O}. De même, pour les courbes $V - L$ correspondant au canal 3 non présentées ici, un ajustement de la pression P_1 de 0.6 cm_{H_2O} a été pratiqué afin de faire coincider les courbes théoriques et expérimentales. Les erreurs sur ces pressions sont trop grandes pour être dues à une erreur de mesure sur la source de pression constante, mais peuvent être dues à des déviations sur les dimensions des canaux. Ainsi, pour le canal 1, une erreur de pression de 0.3 cm_{H_2O} peut être engendrée, pour le liquide mouillant, par un gradient de pression capillaire équivalent à une différence de hauteur du canal de 3 μm, soit une déviation relative sur la hauteur de 5 %. Pour le canal 3

($h = 25$ μm), une différence de 1 μm suffit à modifier la pression de forçage de 0.6 cm_{H_2O}. Ces déviations sur la hauteur sont tout à fait plausibles.

3.3.3 Extrapolation à deux bouchons de liquide mouillant

On a également étudié le transport de deux bouchons de LM dans un microcanal. L'introduction des bouchons dans le microcanal étant réalisée manuellement, il a été possible de ne former que deux bouchons consécutifs.

Les images de la figure 3.12-a montrent ainsi la propagation de deux bouchons dans un microcanal. Les résultats expérimentaux sont reportés sur la figure 3.12-b. Les dimensions du canal sont $w \times h = 260 \times 55$ μm et les pressions appliquées sont 3, 6 et 8 cm_{H_2O}. On observe également un régime stationnaire. En calculant la vitesse moyenne des bouchons et en sommant leur longueur (L_1 et L_2, cf Fig. 3.12-a), on peut calculer une prédiction théorique de la vitesse en fonction de $L = L_1 + L_2$. Le terme visqueux P_{visc} se calcule à partir de cette longueur tandis que le terme capillaire P_{cap} de l'équation 3.20 est multiplié par le nombre de bouchons. En notant n le nombre de bouchons, et ΣL la longueur totale de liquide, le modèle correspondant s'écrit

$$P_f = a_v(\Sigma L)Ca + n a_m Ca^{b_m}. \tag{3.22}$$

Le coefficient a_m a été pris égal à 16.2, comme dans le cas d'un seul bouchon dans le canal 1 (de mêmes dimensions).

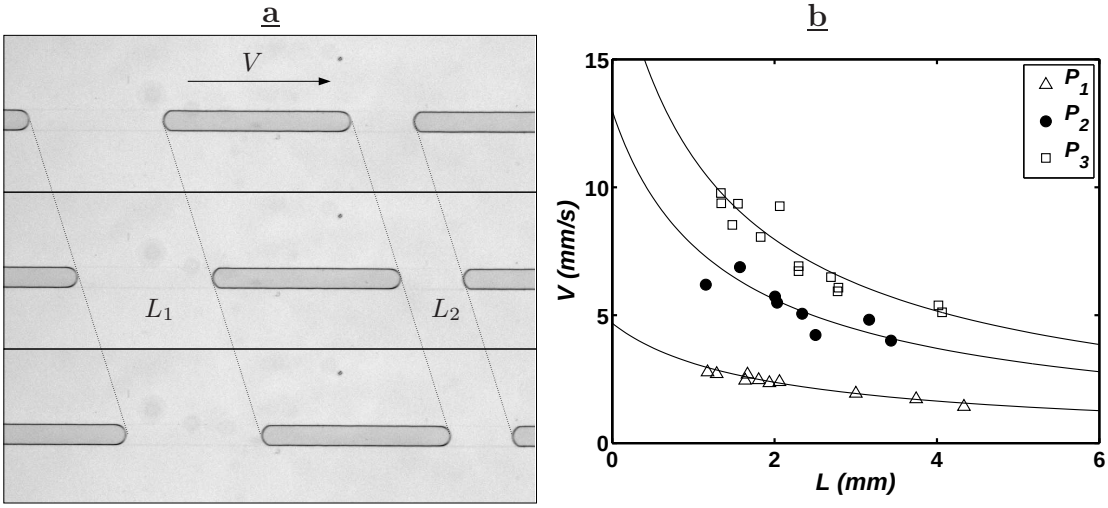


FIG. 3.12: **a-** Deux bouchons se propageant dans un microcanal. On observe également un régime stationnaire. **b-** Courbes expérimentales et théoriques pour deux bouchons. Les courbes théoriques sont calculées par l'équation 3.22 en sommant les longueurs dans le terme visqueux, et en multipliant les effets capillaires par le nombre de bouchons. Ici, $P_{1;2;3} = 3;\ 6;\ 8$ cm_{H_2O}, $w \times h = 260 \times 55$ μm).

On peut penser que le modèle pour n bouchons (Eq. 3.22) reste valide tant que les nombres capillaires sont inférieurs à 10^{-2} environ, et que l'épaisseur de film entre les bouchons reste faible devant les dimensions du canal.

Dans ces conditions, l'application de la loi de Tanner à l'avant des bouchons semble possible, comme le suggère la ressemblance entre le modèle (Fig. 3.8) et la forme de l'interface avant du bouchon de la figure 1.2 du chapitre 1. Néanmoins, La ligne de contact entre les trois phases n'existe plus vraiment et il convient sans doute d'utiliser le terme de ligne de contact apparente (Ajaev & Homsy, 2006). Des travaux supplémentaires sont nécessaires pour observer les variations éventuelles des coefficients numériques des lois d'échelle en fonction de l'épaisseur de film liquide entre les bouchons.

3.4 Conclusion

Le modèle visco-capillaire montre que la dynamique des bouchons dans un microcanal canal droit est régie par une dissipation visqueuse dans le volume des fluides ainsi qu'une dissipation ayant lieu aux interfaces du bouchon.

L'équilibre de la pression de forçage avec ces dissipations conduit à l'observation d'un régime stationnaire, caractérisé par les lois de propagation précédentes. La dissipation visqueuse dans le bouchon peut être modélisée par la loi de Poiseuille, appliquée sur la longueur du bouchon et ce, malgré un profil de vitesses non parabolique dans le liquide. Pour nos conditions expérimentales, les pertes de charge dues à l'écoulement de l'air en amont et en aval du bouchon sont à prendre en compte pour les bouchons de faible longueur dans le cas de l'eau et de la perfluorodécaline.

Les mécanismes impliqués dans les dissipations aux interfaces sont plus complexes. Dans le cas des bouchons mouillants, il s'agit d'une dissipation visqueuse ayant lieu dans le liquide, dans les régions confinées entre les interfaces et les parois du canal. Bien que les mécanismes des lois de Tanner et de Bretherton utilisés dans le modèle théorique soient différents, leurs contributions respectives à la dissipation d'origine capillaire suivent une même loi d'échelle en $Ca^{2/3}$, vérifiée expérimentalement. Pour les liquides partiellement mouillants, il est probable que des mécanismes hydrodynamiques similaires aient lieu mais les lois de puissance obtenues pour le coefficient de friction ne permettent pas d'affirmer ce point : la loi de Cox, équivalente de la loi de Tanner en mouillage partiel, prédit un exposant de un pour le coefficient de friction (cf section 3.2.2). Néanmoins, le graphique 3.7 montre que liquides mouillant et partiellement mouillant tendent vers un même comportement asymptotique : il est possible que, loin des pressions seuils, les dissipations hydrodynamiques visqueuses régissent la dynamique des interfaces des bouchons de liquide partiellement mouillant. Il n'est pas non plus

exclu que d'autres sources de dissipation soient responsables des non-linéarités observées à la ligne de contact.

Finalement, les lois d'échelle obtenues pour les termes capillaires pour les deux types de liquides sont proches de celles de la littérature portant sur des bouchons ou des ménisques dans des tubes circulaires. De même, le terme visqueux a été calculé en adaptant la loi de Poiseuille à la géométrie rectangulaire. Il semble donc que la dynamique de bouchons dans un tube rectangulaire soit proche de celle des bouchons en géométrie circulaire.

Néanmoins, les différences se situent principalement dans les coefficients des lois d'échelle, quel que soit le liquide. Leur détermination plus précise dans une géometrie carrée apporterait sans doute des informations intéressantes pour un calcul plus rigoureux des lois de Tanner et de Bretherton dans des canaux de section rectangulaire.

Chapitre 4

Modélisation de la traversée d'une bifurcation

Dans ce dernier chapitre, on s'attache à modéliser les transitions entre les trois régimes observés à la bifurcation (blocage, éclatement, division) pour les liquides mouillants. Dans un premier temps, on étudie le seuil de pression nécessaire à l'entrée d'un bouchon dans la bifurcation. Puis, on résoud le problème de la transition éclatement-division en considérant, comme pour la dynamique de bouchons mouillants en microcanal droit, un régime visco-capillaire.

4.1 La pression de blocage

Les observations de la section 2.3.2 montrent l'existence d'une pression de blocage, $\mathcal{P}_{blocage}$, au dessous de laquelle les bouchons restent bloqués à l'entrée de la bifurcation. Avant de développer un modèle basé sur un critère de stabilité de l'interface avant, on revient sur la forme des interfaces en situation de blocage.

4.1.1 Formes des interfaces du bouchon en blocage

L'interface avant

En dessous de $\mathcal{P}_{blocage}$, les observations expérimentales (Fig. 2.20) montrent que la forme de l'interface avant dépend de la pression appliquée. Il est assez difficile d'obtenir des visualisations tridimensionnelles de l'interface dans cette configuration. Néanmoins, on peut imaginer que, le fluide étant mouillant, les courbures principales sont de signe opposé (Fig. 4.1-a). Dans ces conditions, l'interface est semblable à l'intérieur d'un tore. A l'aide d'un petit support métallique (Fig. 4.1-b), on a pu y fixer des bulles de savon afin de vérifier si une telle forme pouvait exister. La forme du support essaye de retranscrire à la fois la géométrie de la bifurcation et le caractère mouillant du LM. Néanmoins, le rapport de forme n'est pas respecté. La forme de la bulle de savon est

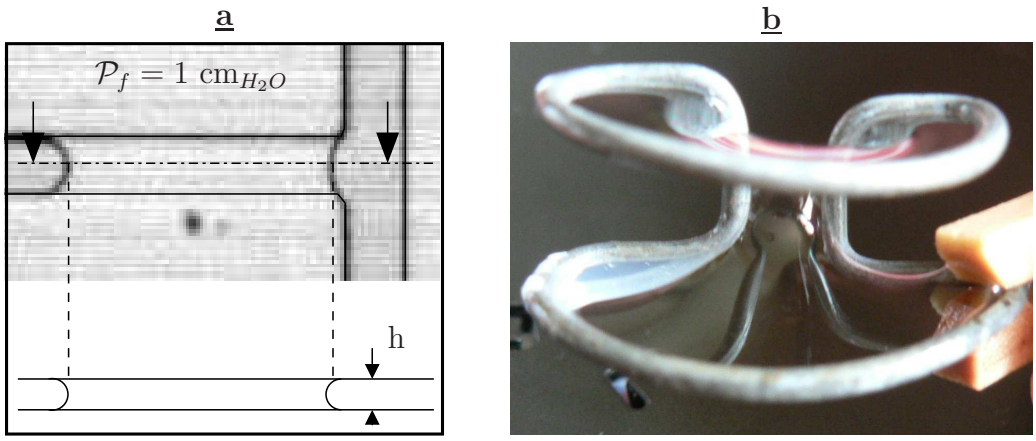


FIG. 4.1: **a**- Vues de dessus et de côté des bouchons en situation de blocage. **b**- Montage permettant de se faire une idée de la forme de l'interface avant du bouchon en blocage, en vue de face, c'est à dire, sortant du microcanal.

probablement proche de celle des ménisques avant en blocage.

Par ailleurs, pour les deux pressions auxquelles le blocage est observé (Fig. 2.20), l'interface avant semble accrochée aux bords de la bifurcation. C'est également le cas de l'interface arrière lorsqu'elle parvient à son tour dans la bifurcation, comme dans le cas de l'éclatement présenté sur la figure 2.23.

L'interface arrière

Pendant le blocage, l'interface arrière se déplace lentement mais sa forme paraît inchangée et indépendante de la pression de forçage. L'effet de la vitesse de déplacement de l'interface arrière, $Ca \simeq 10^{-6}$, est négligeable sur la courbure arrière et la figure 1.5-b du chapitre 1 schématise la forme de l'interface arrière. On peut alors utiliser l'expression 2.3 et le saut de pression capillaire à l'interface arrière s'écrit en première approximation

$$\mathcal{P}_{cap}^{ar} \simeq \gamma\kappa. \tag{4.1}$$

4.1.2 Rappel sur la stabilité d'une goutte

La figure 4.2-a schématise différentes configurations observées lors du gonflage d'une goutte d'eau ou d'une bulle de savon accrochée au bout d'une aiguille de seringue. Pendant le gonflage, le rayon de courbure R de la goutte diminue puis augmente en fonction de la position de l'apex y_{apex}. En considérant le problème plan, la courbure R^{-1} se calcule comme l'inverse du rayon de courbure et s'écrit

$$R^{-1} = \frac{2y_{apex}}{R_{tube}^2 + y_{apex}^2}, \tag{4.2}$$

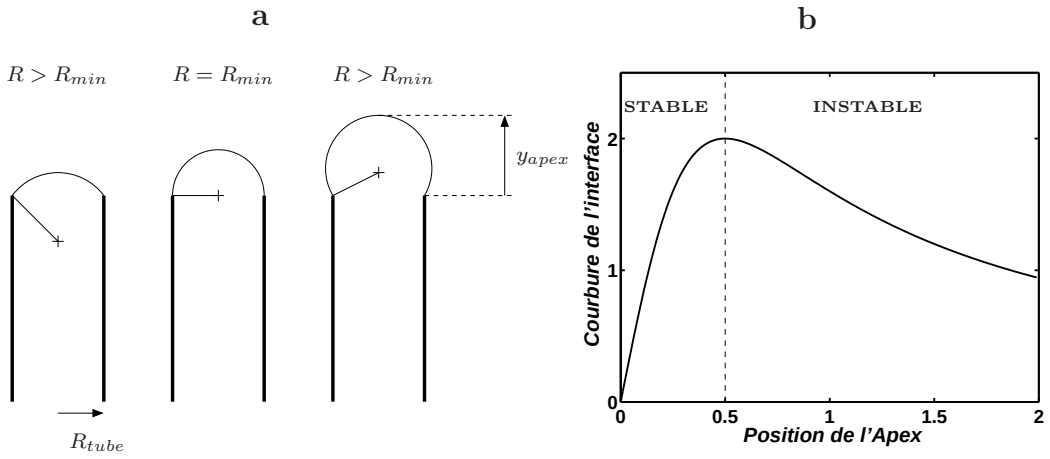


FIG. 4.2: Stabilité d'une goutte en gonflage (problème plan).

où R_{tube} est le rayon du tube. Elle passe par un maximum pour $y_{apex} = R_{tube}$ et d'après la loi de Laplace, la pression dans la goutte est donc maximale pour cette position de l'apex. La figure 4.2-b montre, toujours pour un problème plan, l'évolution de la courbure de l'interface en fonction de la position verticale de l'apex. La courbe permet de caractériser la stabilité de la goutte. En effet, lorsque $y_{apex} < R_{tube}$, l'état est stable : si on augmente légèrement la pression, le rayon de courbure diminue et, à tout moment, un nouvel équilibre s'établit entre les forces de pression et celles de tension de surface, qui s'opposent au gonflage de la goutte. Lorsque $y_{apex} > R_{tube}$, une perturbation (positive) de la pression n'est plus contrecarrée par les forces de tension de surface qui diminuent puisque le rayon de courbure augmente : l'équilibre devient instable. Dans la suite, on considère que ce critère de stabilité peut s'appliquer à l'interface avant du bouchon.

4.1.3 Modélisation de la pression de blocage

On considère les hypothèses suivantes : dans la largeur du microcanal, l'interface est accrochée sur les bords de la bifurcation ; dans la hauteur, l'angle de contact est nul et l'interface est bombée vers l'intérieur du bouchon (Fig. 4.1-a). L'équilibre du bouchon en blocage s'écrit alors

$$\mathcal{P}_f = \mathcal{P}_{cap}^{ar} + \mathcal{P}_{cap}^{av}, \tag{4.3}$$

où $\mathcal{P}_{cap}^{av}$ exprime le saut de pression à l'interface avant. Comme pour $\mathcal{P}_{cap}^{ar}$, $\mathcal{P}_{cap}^{av}$ peut être relié par la loi de Laplace aux rayons de courbure principaux de l'interface avant. En supposant que le rayon de courbure dans l'épaisseur peut être estimé à $h/2$, les rayons de courbure dans l'épaisseur à l'avant et à l'arrière du bouchon sont égaux et donc, les sauts de pression capillaires associés s'annulent.

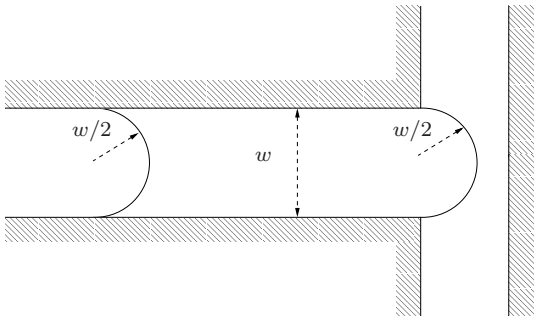


FIG. 4.3: Condition de stabilité pour le bouchon. Le saut de pression maximal est obtenu lorsque la courbure de l'interface avant vaut $2/w$.

Le bilan correspond à un problème plan et devient

$$\mathcal{P}_f = \gamma \left(\frac{1}{R^{ar}} + \frac{1}{R^{av}} \right), \tag{4.4}$$

où R^{ar} et R^{av} sont les rayons de courbure dans la largeur (vue de dessus) des interfaces arrière et avant respectivement.

La situation pour laquelle $R^{av} = +w/2$ est illustrée sur la figure Fig. 4.3. D'après le critère de stabilité évoqué précédemment, cette situation correspond au saut de pression maximal admissible par l'interface ou le bouchon. On en tire une expression pour la pression de blocage qui s'écrit finalement

$$\mathcal{P}_{blocage} = \frac{4\gamma}{w}. \tag{4.5}$$

4.1.4 Précision du modèle : calcul numérique

Principe

Si le saut de pression à l'arrière peut être connu à 5% près par l'équation 4.1 (Lenormand, 1983), le calcul précédent, qui approche la forme de l'interface par une surface torique malgré la présence des parois, n'est qu'une estimation et l'erreur par rapport à la valeur exacte du saut de pression à l'interface avant est inconnue.

Afin de déterminer plus précisemment la pression de blocage, une méthode numérique a été développée pour calculer la forme et la courbure moyenne tridimensionnelle de l'interface. La méthode utilise la technique des éléments finis. L'interface est paramétrée à l'aide de vecteurs supports, les "spines", et une forme variationnelle de la loi de Laplace est obtenue par l'utilisation du principe des travaux virtuels. Les conditions aux limites sont les suivantes : les interfaces latérales sont accrochées sur les bords de la bifurcation ; les lignes de

contact aux parois inférieure et supérieure du canal sont libres et forment un angle de contact fini. On donne également la position de l'apex de l'interface. La méthode est détaillée dans l'annexe C. Bien que le calcul ne s'applique pas aux angles nuls, on peut s'approcher du caractère mouillant de la perfluorodécaline en prescrivant des angles de contact petits. Ainsi, pour différentes positions de l'apex, il est possible de calculer la forme de l'interface. Des exemples de formes calculées numériquement sont présentées sur la figure 4.4. Le rapport des dimensions $\lambda = w/h$ vaut 6 (pour la bifurcation 1, on a $\lambda \simeq 5.65$) et l'angle de contact prescrit vaut 7°.

En variant la position de l'apex de l'interface et en calculant la courbure moyenne de l'interface correspondante, il est possible d'obtenir un graphe de stabilité similaire à celui de la figure 4.2-b, et de déterminer la courbure maximale.

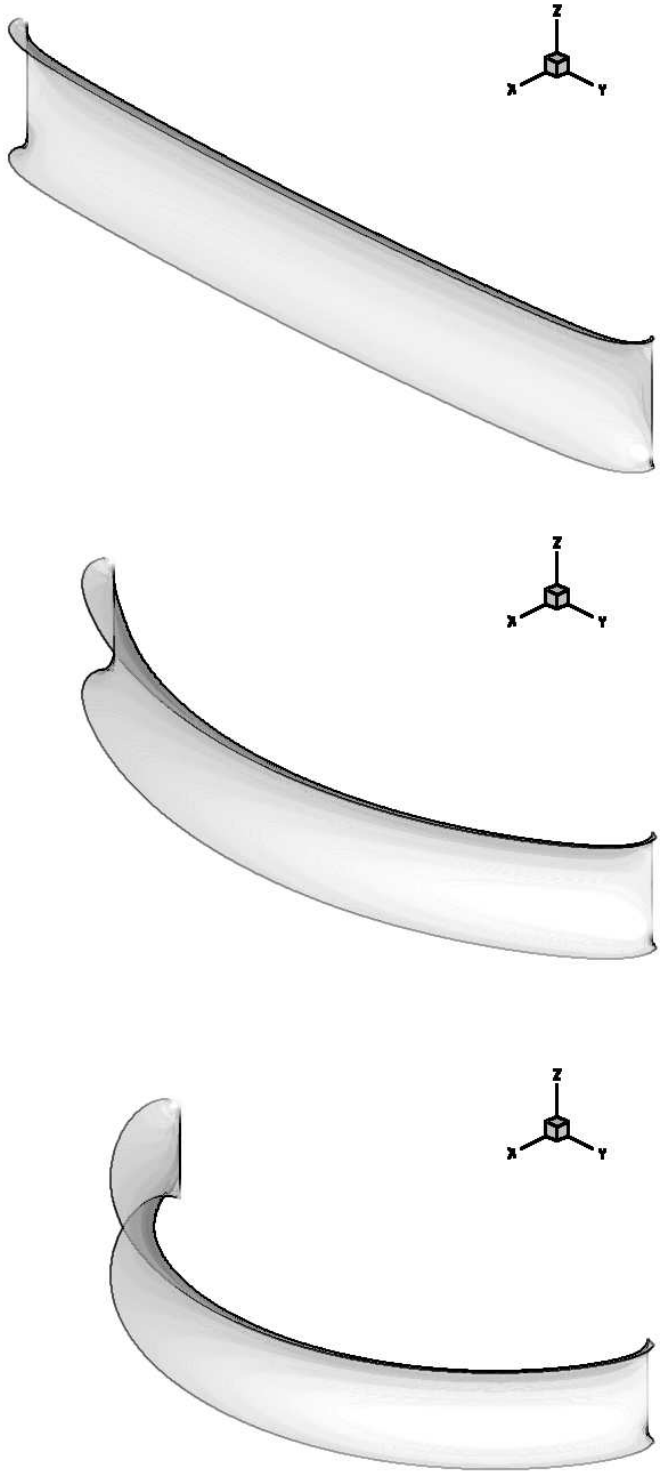


FIG. 4.4: Formes de l'interface avant calculées numériquement par la méthode présentée dans l'annexe C. Le canal est orienté suivant l'axe **x**.

Application

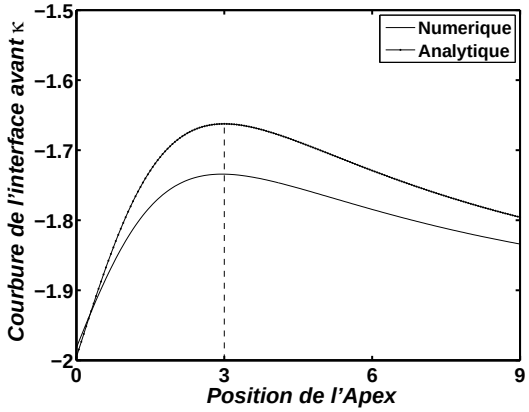


FIG. 4.5: Comparaison des calculs analytique et numérique pour la courbure maximale.

La courbe calculée numériquement pour $\lambda = 6$ et $\theta_e = 7^\circ$ est présentée sur la figure 4.5. La courbe obtenue analytiquement, qui correspond à une forme torique de l'interface, est calculée de la façon suivante. La courbure dans l'épaisseur est approchée, en valeur absolue, par $2\cos\theta_e/h$. La courbure dans la largeur varie avec la position de l'apex et peut être obtenue en remplaçant R_{tube} par $w/2$ dans l'équation 4.2. En prenant pour longueur de référence la hauteur h, on obtient la courbure moyenne de l'interface adimensionnalisée,

$$\kappa_{ad} = -2\cos\theta_e + \frac{2\ y_{apex}/h}{(\lambda/2)^2 + (y_{apex}/h)^2}. \tag{4.6}$$

Le signe "-" devant le premier terme est dû au fait que les courbures sont de signe opposé. Comme mentionné précédemment, la courbure maximale est obtenue pour $y_{apex} = w/2$, soit $y_{apex}/h = \lambda/2$, et vaut

$$\kappa_{ad}^{max} = -2\cos\theta_e + 2/\lambda. \tag{4.7}$$

En prenant $\lambda = 6$ et $\theta_e = 7^\circ$, on obtient $\kappa_{ad}^{max} = -5/3$, valeur que l'on retrouve sur la courbe analytique du graphique 4.5. La valeur numérique de la courbure maximale (environ -1.75) est inférieure à la courbure analytique et l'erreur est d'environ 5 %.

Pour les rapports de forme considérés ici, le modèle analytique donne donc une bonne estimation de la valeur de la pression de blocage.

4.2 La transition division-éclatement

Au dessus de la pression de blocage, les bouchons rentrent dans la bifurcation et on assiste soit à l'éclatement du bouchon soit à sa division en deux bouchons fils. Les expériences montrent que le critère éclatement-division dépend de la pression de forçage mais aussi de la longueur du bouchon. Afin de comprendre les mécanismes en jeu dans cette transition, on formule une hypothèse géométrique pour calculer la longueur critique d'un bouchon situé sur la frontière entre les deux cas précédents. On estime ensuite la vitesse moyenne du liquide dans cette configuration pour obtenir la pression de forçage correspondante.

4.2.1 Hypothèses géométriques

Le diagramme de la section 2.3.3 montre que la transition entre l'éclatement et la division dépend de la longueur initiale de la goutte L ainsi que de la pression de forçage $\mathcal{P}_f$. Afin d'analyser les caractéristiques de l'éclatement et de la division, on observe la forme des interfaces dans ces deux cas. La figure 4.6 montre ainsi une goutte avant l'éclatement (Fig. 4.6-a) : l'interface arrière intercepte l'interface avant, avant que celle-ci touche la paroi opposée. Dans le cas contraire (Fig. 4.6-c), on assiste à la division (l'interface avant touche la paroi avant d'être rattrapée par l'interface arrière) et deux bouchons fils sont formés. La figure 4.7, qui présente une séquence typique de division obtenue avec la deuxième bifurcation, montre que le comportement des interfaces est similaire dans les deux géométries.

On suppose que le cas limite correspond à une goutte de longueur L_{crit} pour laquelle les interfaces arrière et avant se rencontrent simultanément à la paroi (4.6-b). Les interfaces avant et arrière étant approchées par des arcs de cercle de rayon respectif

$$R^{av} = w_o(1 - \cos\theta^{av})^{-1} \tag{4.8}$$

et

$$R^{ar} = w_o(1 + \cos\theta^{ar})^{-1}, \tag{4.9}$$

le volume critique de liquide s'écrit

$$V_{crit} = hw_o^2\left[f(\theta^{av}) - g(\theta^{ar})\right]. \tag{4.10}$$

Ici, θ^{av} et $\theta^{ar} = 2\arctan(w/2w_o)$ sont respectivement les angles de contact au point E (interface avant) et au point C (interface arrière). Les fonctions f et g sont définies telles que

$$f(\theta^{av}) = (\theta^{av} - \cos\theta^{av}\sin\theta^{av})(1 - \cos\theta^{av})^{-2}, \tag{4.11}$$

et

$$g(\theta^{ar}) = (\pi - \theta^{ar} + \cos\theta^{ar}\sin\theta^{ar})(1 + \cos\theta^{ar})^{-2}. \tag{4.12}$$

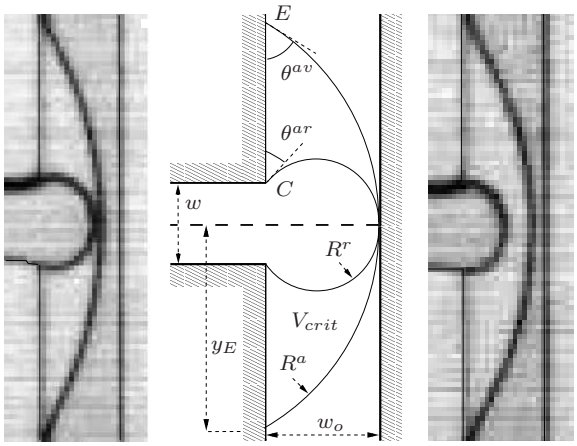


FIG. 4.6: Forme des bouchons avant **(a)**- l'éclatement et **(c)**- la division. **(b)**- Schéma d'un "bouchon" de volume critique V_{crit} situé sur la frontière théorique entre l'éclatement et la division. Dans cette configuration, les interfaces avant et arrière se rencontrent à la paroi.

La longueur initiale de la goutte correspondant au volume critique V_{crit} est telle que

$$\frac{L_{crit}}{w} = \left(\frac{w_o}{w}\right)^2 \left[f(\theta^{av}) - g(\theta^{ar})\right] - \left(1 - \frac{\pi}{4}\right), \tag{4.13}$$

où le terme $1 - \pi/4$ prend en compte le volume contenu dans les ménisques.

On remarque que pour pour un angle de contact θ^{av} donné, un bouchon de longueur initiale $L < L_{crit}$ éclate dans la bifurcation tandis qu'un bouchon de longueur telle que $L > L_{crit}$ produit deux bouchons "fils". Pour une géométrie donnée, la valeur de L_{crit} dépend uniquement de θ^{av}, décroît lorsque θ^{av} augmente, et peut s'annuler pour $\theta^{av} = \pi - \theta^{ar}$.

4.2.2 Hypothèse dynamique et modèle

En supposant que la loi de Tanner s'applique à la situation de la figure 4.6-b, l'angle de contact θ^{av} peut être relié à la vitesse de la ligne de contact au point E par

$$\theta^{av} = (6\Gamma Ca_E)^{1/3}, \tag{4.14}$$

où Ca_E est le nombre capillaire calculé à partir de la vitesse au point E.

Bien que l'écoulement dans la bifurcation ne soit pas stationnaire, on suppose qu'il est régi, comme pour le transport de bouchons dans le canal droit, par un régime visco-capillaire (section 3.1.2). Ainsi, il est possible, à un instant donné,

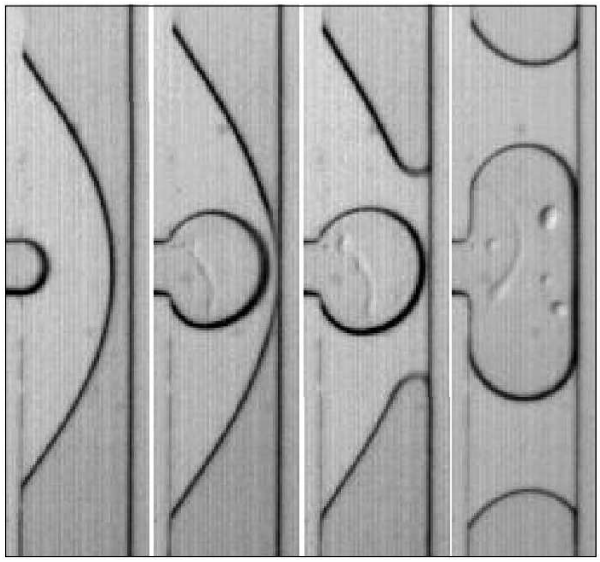


FIG. 4.7: Séquence de division pour le seconde bifurcation.

d'établir le bilan de pression sur une ligne de courant spécifique. Par simplicité, on écrit ce bilan de pression entre les points C et E, soit

$$\mathcal{P}_f = \mathcal{P}_{visc} + \mathcal{P}_{cap}, \tag{4.15}$$

où $\mathcal{P}_{visc}$ est le terme de dissipation visqueuse et $\mathcal{P}_{cap}$ le terme capillaire regroupant les contributions des interfaces avant et arrière.

Près du point C, la vitesse de l'interface arrière est nulle puisque celle-ci est accrochée aux bords de la bifurcation. Le saut de pression capillaire à l'arrière du bouchon vaut

$$\mathcal{P}_{cap}^{ar} = \gamma \left(\frac{1}{R^{ar}} + \frac{2}{h} \right). \tag{4.16}$$

Pour l'interface avant, on suppose que la vitesse de la ligne de contact au point E établit l'angle de contact θ^{av}, et que θ^{av} est le même dans l'épaisseur et dans le plan. Le saut de pression capillaire à l'interface avant s'écrit alors

$$\mathcal{P}_{cap}^{av} = \gamma \left(\frac{1}{R^{av}} - \frac{2\cos\theta^{av}}{h} \right). \tag{4.17}$$

Le terme visqueux de l'équation 4.15 est estimé en considérant la géométrie proche d'une cellule Hele-Shaw ($h/w_o < 0.18$), soit

$$\mathcal{P}_{visc} = \frac{12\eta}{h^2} L_m V_m, \tag{4.18}$$

où L_m est la longueur de la ligne de courant C-E et V_m est la vitesse moyenne du liquide entre les points C et E. La vitesse au point C, V_C, est nulle tandis que la

vitesse au point E est reliée à l'angle de contact par la loi de Tanner (Eq. 4.14) soit

$$V_E = \frac{\gamma\,(\theta^{av})^3}{6\eta\Gamma}. \tag{4.19}$$

On estime les quantités V_m et L_m par $V_m = (V_E + V_C)/2$ et $L_m = y_E - w/2$, où $y_E = w_o/\tan(\theta^{av}/2)$ est la distance du point E à la ligne centrale du microcanal. Finalement, en combinant les termes ci-dessus, la chute de pression instantanée pour la goutte s'obtient comme

$$\mathcal{P}_f \simeq \gamma\left[\frac{y_E - w/2}{\Gamma h^2}\,(\theta^{av})^3 + \frac{1}{R^{av}} + \frac{1}{R^{ar}} + \frac{2}{h}(1-\cos\theta^{av})\right]. \tag{4.20}$$

En utilisant une pression de référence γ/w et en développant les différents termes de l'expression précédente en fonction de θ^{av}, w/w_o, w_o/h and w/h, l'équation 4.20 peut s'écrire

$$\overline{\mathcal{P}_f} \simeq \left[\frac{w_o}{h}\frac{w}{h}\left(\tan\frac{\theta^{av}}{2}\right)^{-1} - \frac{1}{2}\left(\frac{w}{h}\right)^2\right]\frac{(\theta^{av})^3}{\Gamma} + \left[1+\cos\left(2\arctan\frac{w}{2w_o}\right)\right]\frac{w}{w_o} + \left[\frac{2w}{h}+\frac{w}{w_o}\right](1-\cos\theta^{av}), \tag{4.21}$$

où $\overline{\mathcal{P}_f} = w\mathcal{P}_f/\gamma$.

4.3 Comparaison avec les résultats expérimentaux

Les transitions obtenues théoriquement sont présentées avec les résultats expérimentaux sur les diagrammes de la figure 4.8.

4.3.1 La transition division-éclatement

Résultats

Pour une valeur donnée de θ^{av}, on est capable d'estimer la valeur de $\mathcal{P}_f$ correspondante ainsi que la longueur critique L_{crit} : la condition géométrique (Eq. 4.13) fournit une relation entre L_{crit} et θ^{av}, alors que θ^{av} peut être relié à $\mathcal{P}_f$ par l'équation 4.20. En faisant varier θ^{av} de $\pi/6$ à $\pi/3$, on obtient les courbes $L_{crit} - \mathcal{P}_f$ des diagrammes de la figure 4.8 : le diagramme (a) correspond à la première bifurcation et le (b) à la deuxième jonction. Les valeurs du coefficient de Tanner $k_T = (6\Gamma)^{1/3}$ sont respectivement prises égales à 4.9 et 3.5, soit $\Gamma = 20$ et $\Gamma = 10$. Avec ces valeurs, les frontières théoriques permettent de séparer raisonnablement les cas de l'éclatement et de la division.

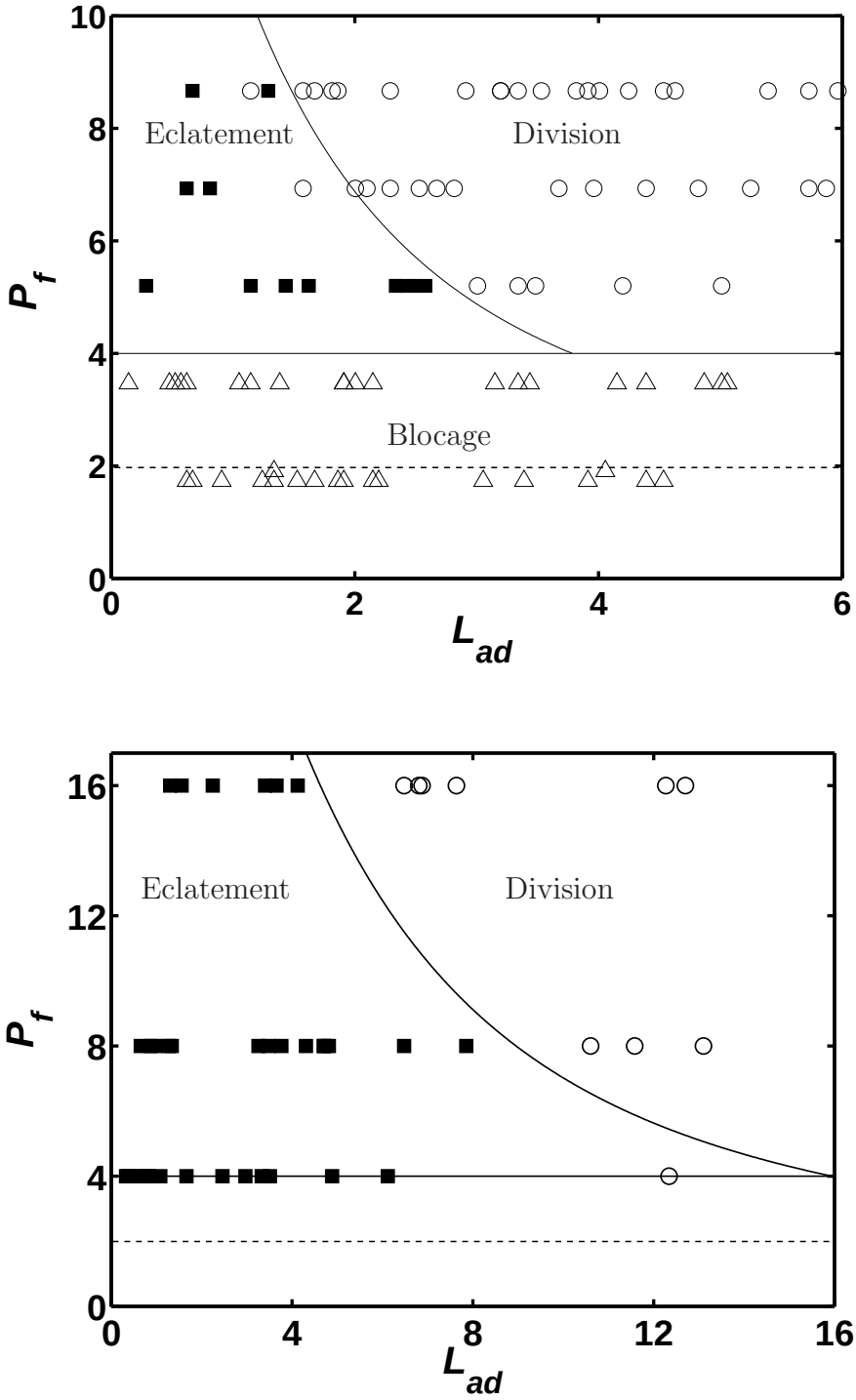


FIG. 4.8: Transitions théoriques et comparaison avec les résultats expérimentaux (**a**- Bifurcation 1. **b**- Bifurcation 2). Pour la pression de blocage, les lignes horizontales continues sont calculées à partir de l'Eq. 4.5. Les lignes en trait discontinu correspondent au modèle de Glière & Delattre (2006), discuté dans la section 4.3.2.

Discussion

Les valeurs des angles utilisées pour calculer les courbes théoriques, ainsi que celles du coefficient Γ semblent acceptables. La valeur $k_T = 4.9$ est voisine de celle obtenue lors du calcul des termes capillaires dans la géométrie droite : on avait pour le canal 1, $k = 16.2$, soit $k_T \simeq 5$. Le coefficient de Tanner utilisé dans la deuxième géométrie est plus faible mais reste proche des valeurs généralement admises dans la littérature pour les tubes circulaires millimétriques ($k_T = 4 - 5$). De plus, il est légèrement supérieur à une valeur obtenue en tube rectangulaire par Coney & Masica (1969) et qui vaut $k_T = 3.4$ (Chebbi, 2003).

On discute dans les paragraphes suivants les hypothèses qui ont permis d'élaborer le modèle pour la frontière entre l'éclatement et la division : la forme des interfaces et l'application de la loi de Tanner pour calculer la vitesse au point E.

Forme des interfaces Les interfaces avant et arrière, vues du dessus, ont été approchées par des arcs de cercle dans le calcul de la longueur critique. Cela suppose que la courbure dans la largeur est constante, et que l'écoulement ne déforme pas la forme de l'interface, tout du moins "loin de la paroi". L'observation des images de la figure 2.23 montre en effet que, peu avant que les deux interfaces se rencontrent, celles-ci sont peu déformées localement sur l'axe du canal d'entrée. La tension de surface semble donc dominer au milieu de la bifurcation et les dissipations visqueuses y restent faibles. Sur les photos de la figure 4.9, on a tracé des arcs de cercle approchant au mieux les interfaces avant. Pour la première bifurcation, notre hypothèse semble raisonnable. Par contre, l'approximation par un arc de cercle est discutable avec la deuxième jonction : la courbure n'est pas constante et elle est plus faible près des parois latérales du canal de sortie situées du côté du canal d'entrée. La forme de l'interface arrière reste néanmoins circulaire dans les deux géométries.

Loi de Tanner Comme pour la dynamique des bouchons en microcanal droit, on a supposé que l'angle de contact au point E était le même dans la largeur que l'épaisseur. L'application de la loi de Tanner lors du passage de la bifurcation peut paraître inopportune car cette loi est issue d'un calcul bidimensionnel. On peut penser qu'elle peut cependant permettre de donner un ordre de grandeur de la dissipation occasionnée par les recirculations secondaires dans la moitié du champignon, les dissipations principales dans l'épaisseur étant contenues dans le terme visqueux $\mathcal{P}_{visc}$. Des mesures supplémentaires sont nécessaires afin de connaître les relations entre l'angle de contact observé et la vitesse au point E.

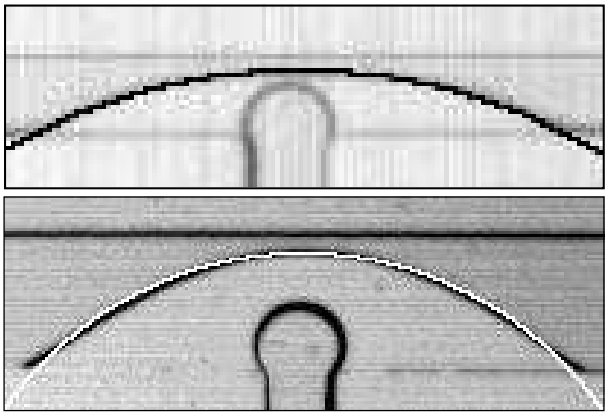


FIG. 4.9: Forme des interfaces et approximation par des arcs de cercle des interfaces avant. **a**- Bifurcation 1. **a**- Bifurcation 2.

4.3.2 La pression de blocage

Résultats

En raison de la faible erreur entre le calcul numérique et le calcul analytique (environ 5% sur le calcul de la courbure de l'interface avant), on considère le résultat analytique dans la suite. Comme pour la frontière éclatement-division, la pression de blocage est adimensionnalisée par γ/w, et on obtient finalement une pression de blocage adimensionnelle de 4. Les lignes horizontales correspondantes sont tracées en trait continu sur les deux diagrammes de la figure 4.8, bien que le blocage ne soit pas observé pour la deuxième jonction. Pour la première bifurcation, la prédiction théorique donne une valeur cohérente avec les observations expérimentales. Pour la seconde bifurcation, elle correspond à la plus faible pression de forçage appliquée.

Discussion

Le phénomène de blocage à la première bifurcation rappelle à la fois les blocages rencontrés lors du déplacement de gouttes non mouillantes dans des géométries comportant des réductions de section (Legait, 1981; Jensen *et al.*, 2004), et ceux observés par Glière & Delattre (2006) lorsqu'un ménisque de liquide partiellement mouillant parvient à la sortie d'un microcanal terminé par une chambre de collecte. Dans cette dernière situation, les dimensions de la chambre sont supérieures à celle du microcanal.

Pour chacun des cas précédents, des modèles théoriques ont été développés. Lorsqu'une goutte non mouillante ($\theta_e = \pi$) traverse un col (réduction de section), son interface avant voit son rayon de courbure diminuer progressivement. La pression maximale nécessaire pour contrecarrer le saut de pression capillaire

correspondant, se calcule à partir du rayon de courbure minimal (Jensen *et al.*, 2004). Dans le cas du ménisque de liquide partiellement mouillant ($\theta_e < \pi$) parvenant à l'entrée d'une chambre (évasement), celui-ci reste accroché aux bords de la sortie du microcanal, et sa courbure varie avec la pression de forçage. Le modèle retenu par Glière & Delattre (2006) considère également la courbure maximale admissible par l'interface, mais prend en compte par ailleurs l'angle de contact statique d'avancée du liquide : pour des valeurs inférieures à l'angle de contact statique, l'angle peut prendre différentes valeurs sur le bord de la jonction (phénomène de canthotaxie, Bico (2000)) ; lorsque celui-ci est atteint à l'entrée de la chambre, la ligne de contact peut se décrocher. Ce dernier critère peut donner une valeur de pression seuil inférieure à celle obtenue à partir de la courbure maximale.

Le modèle présenté dans la section 4.1 peut être vu comme le cas inverse de celui de Jensen *et al.* (2004). Dans notre situation, le bouchon est mouillant et la bifurcation constitue un évasement. Néanmoins, pour calculer le rayon de courbure minimal, on a par ailleurs considéré que l'interface avant était accrochée par les bords de la bifurcation. Cette hypothèse est discutable pour un liquide mouillant puisqu'un tel liquide tend à s'étaler spontanément sur un substrat plan et dans les coins d'un microcanal. Son angle statique d'avancée est nul, et dans une situation plane, ou axisymétrique, l'interface avant pourrait sortir du canal d'entrée dès que l'interface est plane, comme pour la situation de la figure 4.10. La pression de blocage adimensionnelle correspondante vaudrait 2, et serait inférieure à celle de notre modèle.

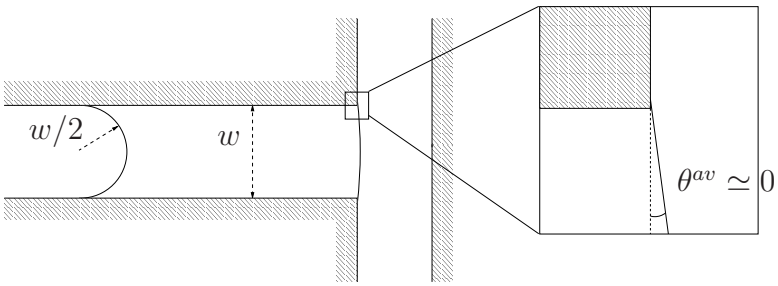


FIG. 4.10: Condition de déblocage du bouchon dans une géométrie plane ou axisymétrique selon le modèle de Glière & Delattre (2006). L'angle de contact θ^{av} doit dépasser sa valeur statique d'avancée, ici 0 car le liquide est mouillant. La pression de blocage adimensionnelle correspondante vaut 2 dans le cas plan (4 en géométrie axissymétrique).

En conclusion, la situation rencontrée dans nos expériences est assez particulière puisque les dimensions varient uniquement dans une direction, la largeur, l'épaisseur du canal restant constante. Les lignes de contact sont libres d'avancer sur les parois inférieure et supérieure tandis que les lignes de contact latérales rencontrent un changement de géométrie abrupt lorsqu'elles parviennent à la bi-

furcation. Notre modèle donne une borne supérieure à la pression requise pour faire pénétrer le bouchon dans la bifurcation (lignes horizontales en trait continu sur les diagrammes de la figure 4.8). Le modèle de Glière & Delattre (2006) présenté sur la figure 4.10 et adapté à notre géométrie donne quant à lui une limite inférieure (lignes horizontales en trait discontinu). Bien que nos prédictions théoriques donnent des valeurs satisfaisantes, il sera nécessaire de procéder à des expériences supplémentaires pour connaître exactement l'origine de la pression de blocage, et plus particulièrement, les raisons de l'accrochage de l'interface avant sur les coins de la jonction. La visualisation de l'interface et des lignes de contact permettrait de fournir des renseignements précieux, la simulation numérique ne permettant pas à l'heure actuelle de simuler toute la traversée de la bifurcation.

4.4 Conclusion

Le franchissement d'une bifurcation est un problème instationnaire complexe : l'écoulement est tridimensionnel et, les interfaces constituent des surfaces libres soumises aux lignes de contact à des phénomènes de mouillage dynamique. En attendant des études numériques adaptées (Reddy *et al.*, 2005; Tartakovsky & Meakin, 2005), les modèles présentés dans ce chapitre permettent d'appréhender correctement les transitions observées expérimentalement. Les phénomènes physiques en jeu semblent donc être pris en compte mais la précision des modèles reste à être confirmée dans d'autres expériences. Le passage d'un bouchon de liquide partiellement mouillant dans une bifurcation reste également une question en suspens.

Chapitre 5

Conclusion et perspectives

Des expériences de transport de bouchons à pression constante ont été réalisées dans deux géométries microfluidiques : un canal droit et une bifurcation. La section des microcanaux est rectangulaire.

Pour la géométrie droite, un régime stationnaire a pu être observé pour des liquides mouillant et partiellement mouillants. En mouillage partiel, le régime stationnaire n'est atteint que lorsque la pression de forçage est supérieure à une pression seuil liée à l'hystérésis des angles. Pour les deux types de liquide, le régime visco-capillaire est régi par deux dissipations : la première a lieu dans le volume du bouchon, et l'autre est localisée aux interfaces de celui-ci. Le calcul de la dissipation visqueuse dans le volume du bouchon a permis de déduire les dissipations aux interfaces, et d'obtenir des lois de puissance en fonction du nombre capillaire Ca. Le modèle visco-capillaire a finalement abouti aux lois de propagation d'un bouchon dans un microcanal (Chap. 3) :

- $P_f = a_v Ca + a_m Ca^{b_m}$ pour un liquide mouillant,
- $P_f - P_s = a_v Ca + a_{pm} Ca^{b_{pm}}$ pour un liquide partiellement mouillant.

Dans le cas mouillant, un modèle théorique basé sur des considérations hydrodynamiques (dissipations visqueuses entre les parois du canal et les interfaces du bouchon) et adapté de Bico & Quéré (2001) a permis de prédire les exposants déterminés expérimentalement pour la dissipation ayant lieu aux interfaces. Pour le cas partiellement mouillant, les résultats ont été présentés en termes de coefficients de friction mais l'origine de la dissipation reste indéterminée. Pour les deux situations de mouillage, les termes capillaires obtenus montrent, comme pour le terme visqueux, des similarités avec les expériences réalisées avec des tubes circulaires. Enfin, l'observation des interfaces pendant le transport des bouchons a mis en relief la diversité des phénomènes ayant lieu aux interfaces (dépôt de film, angle de contact dynamique, accrochage, hystérésis, démouillage).

Grâce aux expériences sur les jonctions en T, trois comportements différents ont été mis en évidence lorsqu'un bouchon de liquide mouillant parvient à une bifurcation : le blocage, l'éclatement ou la division. Un modèle géométrique basé sur la stabilité de l'interface avant lors de son accrochage en sortie de bifurcation a été proposé pour déterminer la pression de (dé)blocage. Un outil numérique permettant d'affiner ce modèle a été implémenté et il devrait permettre d'autres calculs de formes statiques d'interfaces. De même, pour le critère division-éclatement, un modèle basé sur une hypothèse géométrique et faisant appel au régime viscocapillaire précédent a été proposé. Les deux modèles donnent des prédictions en accord avec les résultats expérimentaux mais devront être confirmés dans des géométries différentes. Le franchissement de la bifurcation a également été abordé.

Ce travail permet d'envisager plusieurs perspectives. Dans le but de modéliser le transport de bouchons dans un réseau, tel que les bronchioles pulmonaires par exemple, l'extrapolation de la loi de propagation dans un canal droit à plusieurs bouchons de liquide mouillant, Eq. 3.22, devra être expérimentalement vérifiée. On devra prendre en considération le film déposé à l'arrière des bouchons et mesurer son effet sur l'écoulement diphasique global. Il serait intéressant de se focaliser sur les coefficients des lois de puissance en $Ca^{2/3}$ afin de mettre en évidence de nouveaux régimes, ou de comprendre l'évolution de ces coefficients, lorsque, par exemple, l'épaisseur du film de liquide entre les bouchons augmente. Les rôles du facteur de forme et des coins pourraient être importants dans la compréhension de ces coefficients. Ensuite, les lois de propagation dans un tube droit et la "fonction de transfert" obtenue à la bifurcation pourront être combinées afin de modéliser un tel réseau, à la façon de l'étude de Stark & Manga (2000) pour les milieux poreux. D'autre part, il serait sans doute pertinent de caractériser les dissipations capillaires pour des liquides moins partiellement mouillants que ceux étudiés ici. Si des mécanismes différents régissent le comportement des interfaces, les théories hydrodynamiques ayant été validées pour des liquides peu partiellement mouillants (Fermigier & Jenfer, 1991), la méthode utilisée ici pourrait être utile pour détecter d'éventuelles transitions. En géométrie carrée, les liquides dont l'angle de contact est proche de $\pi/4$ requièrent par ailleurs une attention particulière.

Finalement, les canaux microfluidiques constituent un outil simple à mettre en oeuvre pour tenter de répondre à ces questions. Cependant, les différentes études expérimentales de la littérature montrent que les conditions expérimentales sont déterminantes, et on a ainsi pu noter quelques précautions prises par certains auteurs : le contrôle précis de la température et de l'humidité ainsi que la géométrie de forme et de surface des microcanaux. Les propriétés des trois phases liquide-solide-gaz ainsi maîtrisées, les microcanaux amèneront à des résultats plus fins, en précision mais aussi en échelle.

Bibliographie

Ajaev, V. & Homsy, G. 2006 Modeling shapes and dynamics of confined bubbles. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **38** (1), 277–307.

Anduze, M. 2000 Etude expérimentale et numérique de microécoulements liquides dans les microsystèmes fluidiques. PhD thesis, INSA Toulouse.

Bico, J. 2000 Mécanismes d'imprégnation : Surfaces texturées, bigouttes, poreux. PhD thesis, Université de Paris 06.

Bico, J. & Quéré, D. 2001 Falling slugs. *J. Colloid Interface Sci.* **243**, 262–264.

Bico, J. & Quéré, D. 2002*a* Rise of liquids and bubbles in angular capillary tubes. *J. Colloid Interface Sci.* **247**, 162–166.

Bico, J. & Quéré, D. 2002*b* Self-propelling slugs. *J. Fluid Mech.* **467**, 101–127.

Bretherton, F. 1961 The motion of long bubbles in tubes. *J. Fluid Mech.* **10**, 166.

Brody, J., Yager, P., Goldstein, R. & Austin, R. 1996 Biotechnology at low reynolds numbers. *Biophys. J.* **71**, 3430–3441.

Cassidy, K., Gavriely, N. & Grotberg, J. 2001 Liquid plug flow in straight and bifurcating tubes. *J. Biomech. Eng.* **123**, 580–90.

Chebbi, R. 2003 Deformation of advancing gas-liquid interfaces in capillary tubes. *J. Colloid Interface Sci.* **265**, 166–173.

Choi, C., Koh, S., Chang, Y. & Park, W. 2003 Effects of perfluorocarbon associated high frequency oscillatory ventilation on hemodynamics and gas exchange in the newborn piglets with respiratory distress. *J. Korean Med. Sci.* **18** (5), 663–668.

Cliffe, K., Tavener, S. & Wheeler, A. 1992 An orthogonal mapping technique for the computation of a viscous free-surface flow. *Int. J. Numer. Methods Fluids* **15** (11), 1243–1258.

Colin, S. 2003 La physique des microécoulements. *Pour la Science* **306**.

Colin, S., ed. 2004 *Microfluidique*. Hermes.

Concus, P. & Finn, R. 1974 On the capillary free surfaces in the absence of gravity. *Acta Math.* **132**, 177–198.

Coney, T. & Masica, W. 1969 Effect of flow rate on the dynamic contact angle. NASA TN D-5115.

Cox, R. 1986 The dynamics of spreading of liquids on a solid surface. *J. Fluid Mech.* **168**, 195.

Cubaud, T. & Ho, C.-M. 2004 Transport of bubbles in square microchannels. *Phys. Fluids* **16** (12), 4575–4585.

Darhuber, A. & Troian, S. 2005 Principles of microfluidic actuation by modulation of surface stresses. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **37**, 425–455.

Dong, M. & Chatzis, I. 1995 The imbibition and flow of a wetting liquid along the corners of a square capillary tube. *J. Colloid Interface Sci.* **172**, 278–288.

Dussan, E. B. 1979 On the spreading of liquids on solid surfaces : Static and dynamic contact lines. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **11** (1), 371–400.

Fermigier, M. & Jenfer, P. 1991 An experimental investigation of the dynamic contact angle in liquid-liquid systems. *J. Colloid Interface Sci.* **146** (1), 226–241.

Gad-el-Hak, M. 1999 The fluid mechanics of microdevices - The Freeman Scholar Lecture. *J. Fluids Eng.* **121**, 5–33.

Garstecki, P., Gañán Calvo, A. & Whitesides, G. 2005 Formation of bubbles and droplets in microfluidic systems. *Bull. Pol. Ac. : Tech.* **53** (4), 361–372.

de Gennes, P. 1985 Wetting : statics and dynamics. *Rev. Mod. Phys.* **57** (3), 827–863.

de Gennes, P. 1998 The dynamics of reactive wetting on solid surfaces. *Phys. A* **249**, 196–205.

de Gennes, P., Brochard-Wyart, F. & Quéré, D. 2004 *Capillarity and Wetting Phenomena*. Springer.

Geoffroy, S., Plouraboué, F., Amyot, O. & Prat, M. 2006 Quasi-static liquid-air drainage in narrow channels with variations in the gap. *J. Colloid Interface Sci.* **294**, 165.

Ginn, B. & Steinbock, O. 2003 Polymer surface modification using microwave-oven-generated plasma. *Langmuir* **19**, 8117–8118.

Glière, A. & Delattre, C. 2006 Modeling and fabrication of capillary stop valves for planar microfluidic systems. *Sens. actuators, A Phys.* **130** (31), 601–608.

Golestanian, R. 2004 Moving contact lines on heterogeneous substrates. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **362**, 1613–1623.

Grotberg, J. 2001 Respiratory fluid mechanics and transport processes. *Annu. Rev. Biomed. Eng.* **3**, 421–57.

Grotberg, J. & Jensen, O. 2004 Biofluid mechanics in flexible tubes. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **36**, 121–47.

Günther, A., Jhunjhunwala, M., Thalmann, M., Schmidt, M. & Jensen, K. 2005 Micromixing of miscible liquids in segmented gas-liquid flow. *Langmuir* **21** (4), 1547–55.

Hagg, M.-B. 2000 Membrane purification of Cl2 gas - Part I. permeabilities as a function of temperature for Cl2, O2, N2, H2 in two types of PDMS membranes. *J. Membr. Sc.* **170**, 173–190.

Handbook of Chemistry and Physics 2008 *Handbook of Chemistry and Physics*.

Handique, K., Burke, D., Mastrangelo, C. & Burns, M. 2001 On-chip thermopneumatic pressure for discrete drop pumping. *Anal. Chem.* **73** (8), 1831–1838.

He, B., Patankar, N. & Lee, J. 2003 Multiple equilibrium droplet shapes and design criterion for rough hydrophobic surfaces. *Langmuir* **19**, 4999–5003.

Heil, M. 1999 Minimal liquid bridges in non-axisymmetrically buckled elastic tubes. *J. Fluid Mech.* **380**, 309–337.

Heil, M. & Hazel, A. 2006 `oomph-lib` - An Object-Oriented Multi-Physics Finite-Element Library. In *Fluid-Structure Interaction* (ed. M. Schafer & H.-J. Bungartz), pp. 19–49. Springer.

Hoffman, R. 1975 A study of the advancing interface. *J. Colloid Interface Sci.* **50**, 228–241.

http ://www.dowcorning.com 2007 *Viscosity of Aqueous Glycerine Solutions*.

http ://www.oomph-lib.org 2007 *`oomph-lib` web site*.

http ://www.surfacetension.de 2007 *Surface tension values of some common test liquids for surface energy analysis*.

Ichikawa, N., Hosokawa, K. & Maeda, R. 2004 Interface motion of capillary-driven flow in rectangular microchannel. *J. Colloid Interface Sci.* **280**, 155–164.

Jensen, M., Goranovic, G. & Bruus, H. 2004 The clogging pressure of bubbles in hydrophilic microchannel contractions. *J. Micromech. Microeng.* **14**, 876–883.

Joanny, J. & Robbins, M. 1990 Motion of a contact line on a heterogeneous surface. *J. Chem. Phys.* **92** (5), 3206–3212.

Joseph, P. & Tabeling, P. 2005 Direct measurement of the apparent slip length. *Phys. Rev. E.* **71** (3), 035303.

Kistler, S. & Scriven, L. 1983 *Computational analysis of polymer processing.*, chap. Coating flows. Applied Science Publishers, London.

Lee, C., Homma, H. & Izumi, K. 2002 Surface properties of polidimethylsiloxame/poly(trifluoropropylmethylvinylsiloxane) blend for outdoor insulator. *Trans. Inst. El. Eng. Jap.* **122-A** (1), 112–117.

Lee, J., Park, C. & Whitesides, G. 2003 Solvent compatibility of poly(dimethylsiloxane)-based microfluidic devices. *Anal. Chem.* **75**, 6544–54.

Legait, B. 1981 Influence des forces d'inertie et de viscosité sur la différence de pression nécessaire au passage d'une goutte, immiscible avec le fluide en place, à travers un col. *C.R. Acad. Sc. Paris, Série II* **292**, 1111–1114.

Legait, B., Sourieau, P. & Combarnous, M. 1983 Inertia, viscosity, and capillary forces during two-phase flow in a constricted capillary tube. *J. Colloid Interface Sci.* **91** (2), 400–411.

Lenormand, R. 1983 Mechanisms of the displacement of one fluid by another in a network of capillary ducts. *J. Fluid Mech.* **135**, 337–353.

Lenormand, R. & Zarcone, C. 1984 Role of roughness and edges during imbibition in square capillaries. *SPE Proceedings* (13264).

Link, D., Anna, S., Weitz, D. & Stone, H. 2004 Geometrically mediated breakup of drops in microfluidic devices. *Phys. Rev. Lett.* **92** (5), 054503.

Manuel de Gnuplot 2007 *Gnuplot Manual*.

Marsh, J., Garoff, S. & Dussan V., E. 1993 Dynamic contact angles and hydrodynamics near a moving contact line. *Phys. Rev. Lett.* **70** (18), 2778–2781.

Morra, M., Occhiello, E., Marola, R., Garbasi, F., Humphrey, P. & Johnson, D. 1990 On the aging of oxygen plasma-treated polydimethylsiloxane. *J. Colloid Interface Sci.* **137** (1), 11–24.

Prat, M. 2007 On the influence of pore shape, contact angle and film flows on drying of capillary porous media. *Int. J. of Heat and Mass Tr.* **50**, 1455–1468.

Prevost, A., Rolley, E. & Guthmann, C. 1999 Thermally activated motion of the contact line of a liquid ^4He meniscus on a cesium substrate. *Phys. Rev. Lett.* **83** (2), 348–351.

Quake, S. & Scherer, A. 2000 From micro- to nano-fabrication with soft materials. *Science* **290** (5496), 1536–1540.

Quéré, D. 1991 Sur la vitesse minimale d'étalement en mouillage partiel. *C.R. Acad. Sc. Paris, Série II* **313**, 313–318.

Quéré, D. 1999 Fluid coating on a fiber. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **31**, 347–84.

Raphael, E. & de Gennes, P. 1989 Dynamics of wetting with nonideal surfaces. The single defect problem. *J. Chem. Phys.* **90** (12), 7577–7584.

Reddy, S., Schunk, P. R. & Bonnecaze, R. T. 2005 Dynamics of low capillary number interfaces moving through sharp features. *Phys. Fluids* **17** (12), 122104.

Redon, C., Brochard-Wyart, F. & Rondelez, F. 1991 Dynamics of dewetting. *Phys. Rev. Lett.* **66** (6), 715–719.

Rolley, E. & Guthmann, C. 2007 Dynamics and hysteresis of the contact line between liquid hydrogen and cesium substrates. *Phys. Rev. Lett.* **98** (16), 166105.

Sahimi, M. 1993 Flow phenomena in rocks : from continuum models to fractals, percolation, cellular automata, and simulated annealing. *Rev. Mod. Phys.* **65** (4), 1393–1534.

Serizawa, A., Feng, Z. & Kawara, Z. 2002 Two-phase flow in microchannels. *Exp. Therm. Fl. Sc.* **26** (6-7), 703–714.

Song, H., Tice, J. & Ismagilov, R. 2003 A microfluidic system for controlling reaction networks in time. *Angew. Chem. Int. Ed.* **42** (7), 768–772.

Squires, T. & Quake, S. 2005 Microfluidics : Fluid physics at the nanoliter scale. *Rev. Mod. Phys.* **77**, 977–1026.

Stark, J. & Manga, M. 2000 The motion of long bubbles in a network of tubes. *Transp. Porous Media* **40**, 201–218.

Stokes, J., Higgins, M., Kushnick & Bhattacharya, S. 1990 Harmonic generation as a probe of dissipation at a moving contact line. *Phys. Rev. Lett.* **65** (15), 1885–1888.

Stone, H., Stroock, A. & Ajdari, A. 2004 Engineering flows in small devices : Microfluidics toward a lab-on-a-chip. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **36**, 381–411.

Suresh, V. & Grotberg, J. 2005 The effect of gravity on liquid plug propagation in a two-dimensional channel. *Phys. Fluids* **17**, 031507.

Tabeling, P. 2003 *Introduction à la microfluidique*. Belin.

Tanner, H. 1979 The spreading of silicone oil drops on horizontal surfaces. *J. Phys. D : Appl. Phys.* **12**, 1473–1484.

Tartakovsky, A. & Meakin, P. 2005 Modeling of surface tension and contact angles with smoothed particle hydrodynamics. *Phys. Rev. E.* **72** (026301).

Tretheway, D. C. & Meinhart, C. D. 2002 Apparent fluid slip at hydrophobic microchannel walls. *Phys. Fluids* **14** (3), 9–12.

Triplett, K., Ghiaasiaan, S., Abdel-Khalik, S. & Sadowski, D. 1999 Gas-liquid two-phase flow in microchannels - Part I : two-phase flow patterns. *Int. J. Mult. Flow* **25** (3), 377–394.

Verneuil, E. 2005 Propriétés d'adhésion et de mouillage de substrats microstructurés. PhD thesis, Université Paris 6.

Wong, H., Radke, C. & Morris, S. 1995 The motion of long bubbles in polygonal capillaries. Part I. thin films. *J. Fluid Mech.* **292**, 71–94.

Xia, Y. & Whitesides, G. 1998 Soft lithography. *Angew. Chem. Int. Ed.* **37** (5), 550–575.

Zheng, Y., Anderson, J., Suresh, V. & Grotberg, J. 2005 Effect of gravity on liquid plug transport through an airway bifurcation model. *J. Biomech. Eng.* **127**, 798–806.

Zhou, M.-Y. & Sheng, P. 1990 Dynamics of immiscible-fluid displacement in a capillary tube. *Phys. Rev. Lett.* **64** (8), 882–885.

Zienkiewicz, O. & Zhu, J. 1992 The superconvergent patch recovery and a posteriori error estimates. *Int. J. Numer. Methods Eng.* **33** (7), 1331.

Annexe A

Les microcanaux

A.1 Composition

Les microcanaux sont fabriqués à partir d'un polymère. Le polymère utilisé au laboratoire est le polydiméthysiloxane (PDMS, Sylgard 184), dont la formule chimique est

$$(H_3C)[SiO(CH_3)_2]_nSi(CH_3)_3. \tag{A.1}$$

Le polymère est liquide et doit être mélangé avec un réticulant pour acquérir une rigidité : la réticulation du polymère, qui consiste à établir des liaisons covalentes entre les chaînes du polymère, s'effectue lors de la cuisson de dernier dans un four. Le mélange s'effectue suivant des proportions données, précisées par la suite.

A.2 Fabrication

Principe La technique utilisée pour concevoir et fabriquer les microcanaux, la photolithographie, est issue de l'industrie microélectronique. La photolithographie s'inspire de la lithographie, technique d'impression du 18ème siècle qui permettait d'imprimer plusieurs copies d'un motif en pressant des feuilles de papier contre une pierre calcaire. Sur cette dernière, des motifs d'impression avaient été préalablement tracés à l'encre ou à l'aide d'un crayon gras. Les étapes de la fabrication des microcanaux sont assez similaires à celle de la lithographie. Elles sont présentées sur la figure A.1 et sont décrites dans les paragraphes suivants. Notons que notre procédé ne comprend pas l'étape de lithographie souple, qui consiste à mouler à partir des structures en PDMS (microcanaux ou autre type de forme) de nouvelles pièces en polymère, d'où la qualification souple de ce procédé (Xia & Whitesides, 1998).

Conception des masques Tout d'abord, les formes 2D du microcanal sont dessinées en blanc sur un fond noir à l'aide d'un logiciel de dessin et imprimées

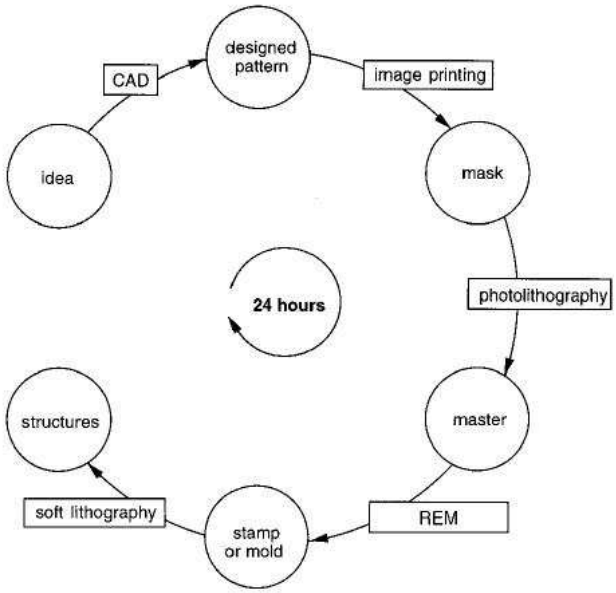


FIG. A.1: Principe de la lithographie souple (Xia & Whitesides, 1998). REM est l'abbréviation de Replica Molding, copie par moulage.

sur une feuille transparente pour donner un masque. Un exemple typique de masques est illustré sur la figure A.2-a.

Fabrication des moules Ensuite, ce masque est posé sur une plaque de silicium recouverte de résine photosensible précuite (Fig. A.2-b). La résine a été étalée préalablement sur un tour dont la vitesse de rotation fixe l'épaisseur de la résine. La résine est ensuite cuite au four. La résine utilisée est la SU8-2035 (35 pour 35 microns à 3000 tours par minute). Les détails techniques (temps, température) de cette étape, et des suivantes, sont donnés par le fabricant de la résine. L'exposition aux rayons ultra-violets entraîne la solidification des parties exposées et l'utilisation d'un solvant permet de dissoudre les parties non exposées (phase de développement) pour obtenir les structures tridimensionnelles sur lesquelles le PDMS sera versé. Entre l'exposition et le développement, la résine subit une deuxième étape de cuisson. Il est alors possible de mouler plusieurs canaux identiques à partir du motif structuré obtenu.

Le moulage et la réticulation du PDMS Le polymère est mélangé à son réticulant pendant cinq minutes suivant une proportion 5 :1. La partie supérieure des puces microfluidiques s'obtient en versant le mélange polymère-réticulant sur le moule comportant les structures 3D en résine (Fig. A.3-a). La réticulation du polymère, qui consiste à établir des liaisons covalentes entre les chaînes du polymère, s'effectue lors de la cuisson du polymère dans un four (45 minutes,

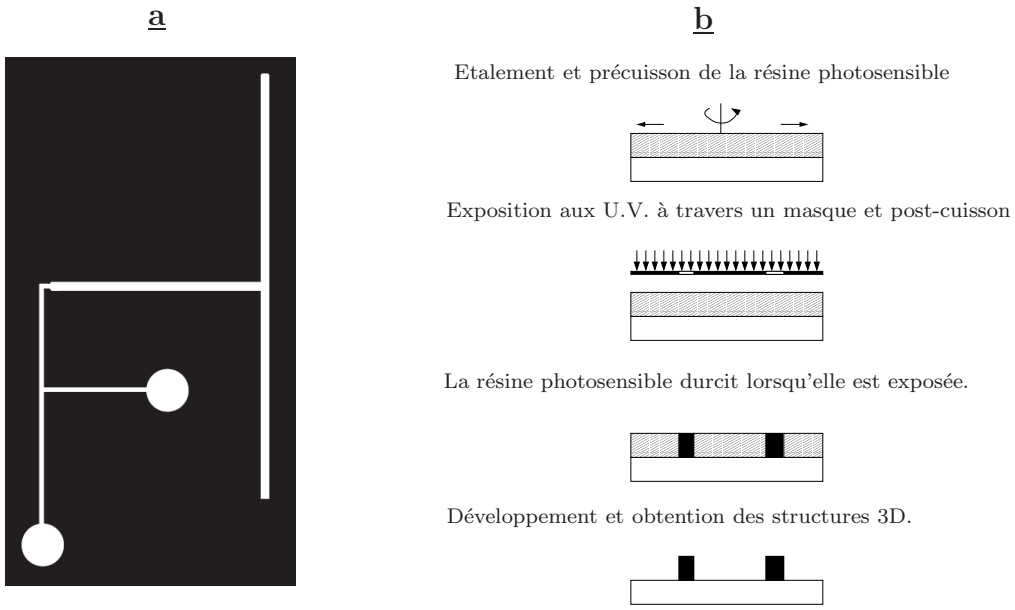


FIG. A.2: Masques (**a**) et fabrication des moules (**b**)

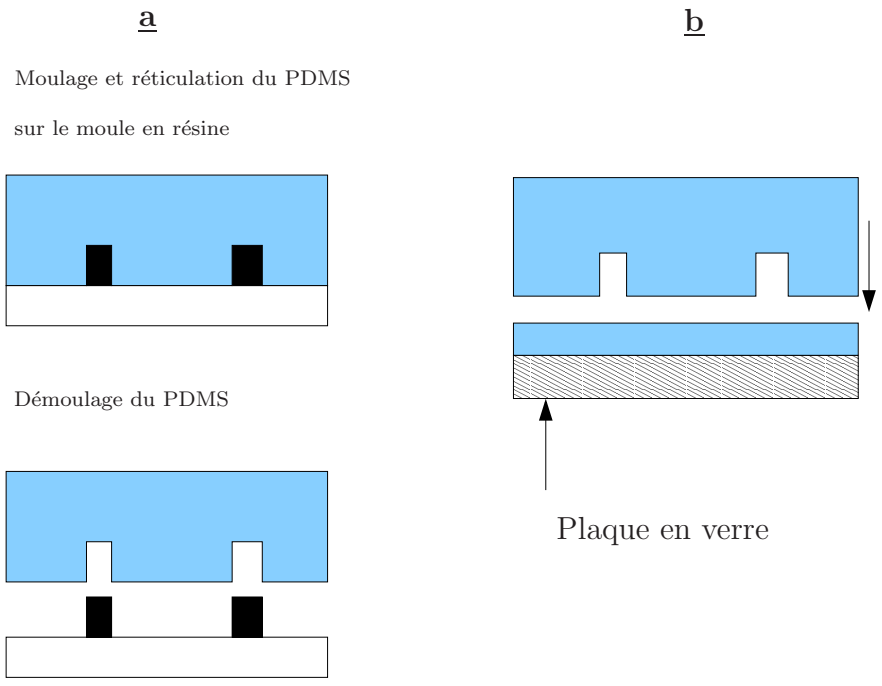


FIG. A.3: **a**- Moulage, réticulation et pelage du PDMS. **b**-Assemblage et obtention de la puce microfluidique. D'après Verneuil (2005).

75 ℃). Le polymère solidifié est finalement démoulé et des trous sont percés dans le but de connecter ultérieurement les tubes servant à l'introduction des fluides (calibres 22 ou 23).

Assemblage de la puce microfluidique Les puces microfluidiques (Fig. A.3-b) sont les pièces dans lesquelles les microcanaux sont intégrés. Elles sont composées d'une partie supérieure en polymère réticulé et d'une partie inférieure, une plaque de verre pour microscope. Le microcanal a été préalablement moulé dans la partie supérieure, sur laquelle la plaque de verre est ensuite collée pour fermer le canal par le dessous. Afin que les quatre faces du microcanal aient les mêmes propriétés de mouillage, un mélange polymère-réticulant (10 :1) est préalablement étalé et cuit sur la plaque en verre (15 minutes, 77 ℃). La différence de concentrations entre les deux parties assure une meilleure cohésion en favorisant la migration des molécules.

A.3 Dimensions et forme

Les dimensions d'un microcanal sont définies dans l'étape de conception et de fabrication des moules. La déformabilité du PDMS permet un contact conformal aux structures et les différences entre les dimensions du moule et celles du microcanal sont inférieures au micron (Xia & Whitesides, 1998). La hauteur des structures du moule est fixée par l'épaisseur de résine étalée sur le support en silicium. Dans la gamme d'épaisseurs fixée par le type de résine utilisé, l'ajustement précis de l'épaisseur de la couche de résine se fait par la sélection de la vitesse d'étalement de la résine. Les formes et les dimensions (largeur et longueur) des futurs microcanaux sont quant à elles définies pendant la conception assistée par ordinateur des masques. La transcription de ces dimensions aux structures en résine, ainsi que la forme de la section, est très sensible à la bonne réalisation des différentes étapes du procédé, notamment celles de l'exposition aux ultraviolets et du développement de la résine cuite (Verneuil, 2005). La phase de la photolithographie est celle qui demande le plus de précision.

La mesure du profil des structures 3D est réalisée sur un profilomètre[1]. La figure A.4 montre deux exemples de mesures. Malgré nos précautions dans les différentes étapes de fabrication, des déviations par rapport aux dimensions prescrites existent et peuvent être importantes. Tout d'abord, la section des structures n'est pas rectangulaire mais trapézoïdale. Le trapèze obtenu peut ne pas être symétrique, l'angle inférieur pouvant atteindre des valeurs voisines de 45°. De plus, le dessus de la structure n'est pas parfaitement plat et des déviations sur la hauteur et la largeur existent. Leur valeur dépasse celle d'une éventuelle rugosité. Mesurée à différentes positions axiales de la structure (dans le sens de la longueur), l'épaisseur moyenne n'est pas la même partout. Malgré ces déviations, on considérera les mcirocanaux rectangulaires et les dimensions moyennes, largeur

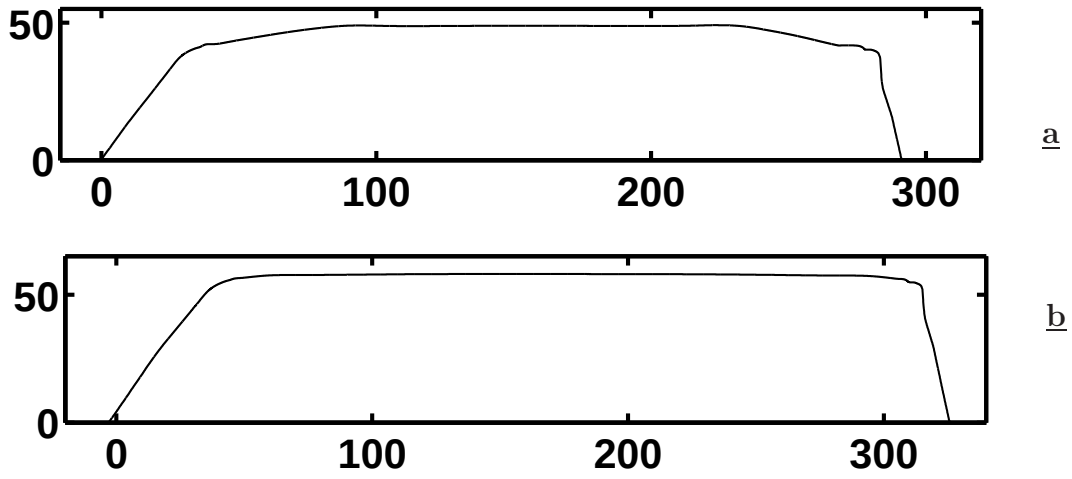


FIG. A.4: Exemples de mesures de canaux. Les dimensions sont indiquées en microns.

et hauteur, seront calculées à partir des mesures des profils.

A.4 Perméabilité du PDMS aux gaz

Le polymère est perméable au gaz (Verneuil, 2005; Hagg, 2000). Cet effet peut être très visible lorsque des membranes de quelques microns en PDMS sont utilisées. Pour des épaisseurs plus importantes (l'épaisseur minimale de nos puces est de 0.5 centimètre), le débit d'air s'écoulant à travers la puce en PDMS est faible et peut être négligé. Afin de s'en rendre compte, nous considérons les données suivantes : l'épaisseur de la couche de PDMS au dessus du microcanal est $e = 0.5$ cm, le canal a pour dimensions $w = 200$ μm et $h = 50$ μm de longueur $l = 2$ cm. La pression de travail considérée est de 2 bars. A cette pression, la perméabilité du PDMS à l'oxygène (celle de l'azote est plus faible) est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-6}$ m^3 m/m^2 h bar (Hagg, 2000). Le flux correspondant vaut $J = P\Delta p/e \simeq 8 \cdot 10^{-4}$ m^3/m^2 h. La surface totale de l'intérieur du microcanal, $S = 2(w + h)l$, permet de calculer le débit d'air sortant du microcanal $Q = J * S/3600 \simeq 2 \cdot 10^{-13}$ m^3/s. Les vitesses les plus faibles rencontrées dans les expériences sont de l'ordre de $10-100$ μm/s et les débits correspondants sont de l'ordre $10^{-5} \cdot 10^{-8} \simeq 10^{-13}$ m^3/s.

Pour ces pressions appliquées, les débits d'air dans le canal et à travers le PDMS sont donc comparables, et il serait nécessaire de prendre en compte la perméabilité. Néanmoins, les vitesses considérées dans le calcul des débits expérimentaux sont obtenues pour les plus faibles pressions de forçage, inférieures ou égales à 2000 Pa. Notre calcul précédent a été fait pour une pression de 2 bar,

[1]Ces mesures ont pu être réalisées sur le profilomètre du LMM à l'ESPCI. D'autres mesures ont été réalisées au PMC de l'Ecole Polytechnique.

100 fois supérieure. Le flux sera par conséquent inférieur à celui précédemment estimé, et ce résultat ajouté au fait que la perméabilité dépend elle même de la pression (on peut s'attendre que la perméabilité soit plus faible quand on diminue la pression, Hagg (2000)) nous amène à supposer que la perméabilité à l'air du PDMS est négligeable pour nos expériences.

Annexe B

Détermination de la température dans le microcanal

La détermination de la température peut être critique pour la connaissance des propriétés des liquides et donc, pour la pertinence des résultats expérimentaux. Cependant, la température n'est pas contrôlée dans les expériences et les récents travaux microfluidiques semblent porter moins d'attention à ce paramètre que des études plus "anciennes" sur des écoulements diphasiques similaires dans des tubes capillaires. On peut par exemple trouver la mise en place d'enceintes contrôlées en température dans les travaux de Legait *et al.* (1983). L'humidité qui, comme la température, peut jouer sur les caractéristiques des fluides et notamment les propriétés de mouillage (Marsh *et al.*, 1993), n'est pas contrôlée non plus.

Lors des expériences, le liquide servant à former les bouchons est en attente dans une des branches de la jonction en Y (cf section 2.1.3). Le microcanal est quant à lui disposé sur la platine du microscope, et est chauffé par la lampe d'éclairage située sous cette platine. La mesure de la température sur la platine indique une température d'environ 32 ℃. La lampe est allumée quelques minutes avant le début des expériences afin que le canal atteigne une température stationnaire voisine de celle de la platine. Le liquide dans la branche en Y atteint quant à lui rapidement la température du microcanal car le rapport volume de liquide sur surface d'échange étant petit, les transferts thermiques ont lieu rapidement (Colin, 2003). On peut estimer le temps caractéristique de transfert thermique en prenant le coefficient de diffusion thermique de l'eau ($D \simeq 1.7 \cdot 10^{-7}$ m^2/s), soit $\tau \simeq h^2/D \simeq 20$ ms, où h est la hauteur du microcanal et est prise égale à 50 μm (Tabeling, 2003). Le liquide servant à former les bouchons prend donc rapidement la température du microcanal et on peut raisonnablement considérer que la température dans les bouchons formés est voisine de 30 ℃.

La méthode de calcul des termes capillaires présentée dans la section 3.1.4 permet de calculer indirectement la température du liquide dans les bouchons. En effet, la prise en compte des propriétés des liquides à 25 ℃, notamment la viscosité, dans le calcul des termes visqueux, conduit aux termes capillaires présentés sur les graphiques de gauche de la figure B.1 (liquides partiellement mouillants). A droite, les termes capillaires sont calculés à partir des propriétés des liquides à 30 ℃. La solution de glycérine exhibe deux comportements distints : sur la figure de gauche, on obtient un nuage de points, alors que sur celle de droite, les points expérimentaux montrent une certaine tendance. Cette dernière est cohérente avec le fait que les termes capillaires, issus de dissipations aux interfaces, sont indépendants de la longueur des bouchons. Pour ce liquide, les figures 3.6 et 3.10 -a montrent les points obtenus pour les pressions intermédiaires ($P_2, P_4, \ldots$). Pour l'eau, cette tendance est moins visible car il y a un problème avec les points correspondant aux pressions P_3 et P_4. Les points obtenus pour des pressions supérieures ont néanmoins une allure proche de celle de la solution de glycérine.

Ainsi, les propriétés des liquides partiellement mouillants sont influencées par la température de la lampe du microscope. Pour le liquide mouillant, le terme capillaire obtenu pour T=25 ℃ est indépendant de la longueur des bouchons : il semble que la viscosité de la perfluorodécaline soit moins sensible à la température.

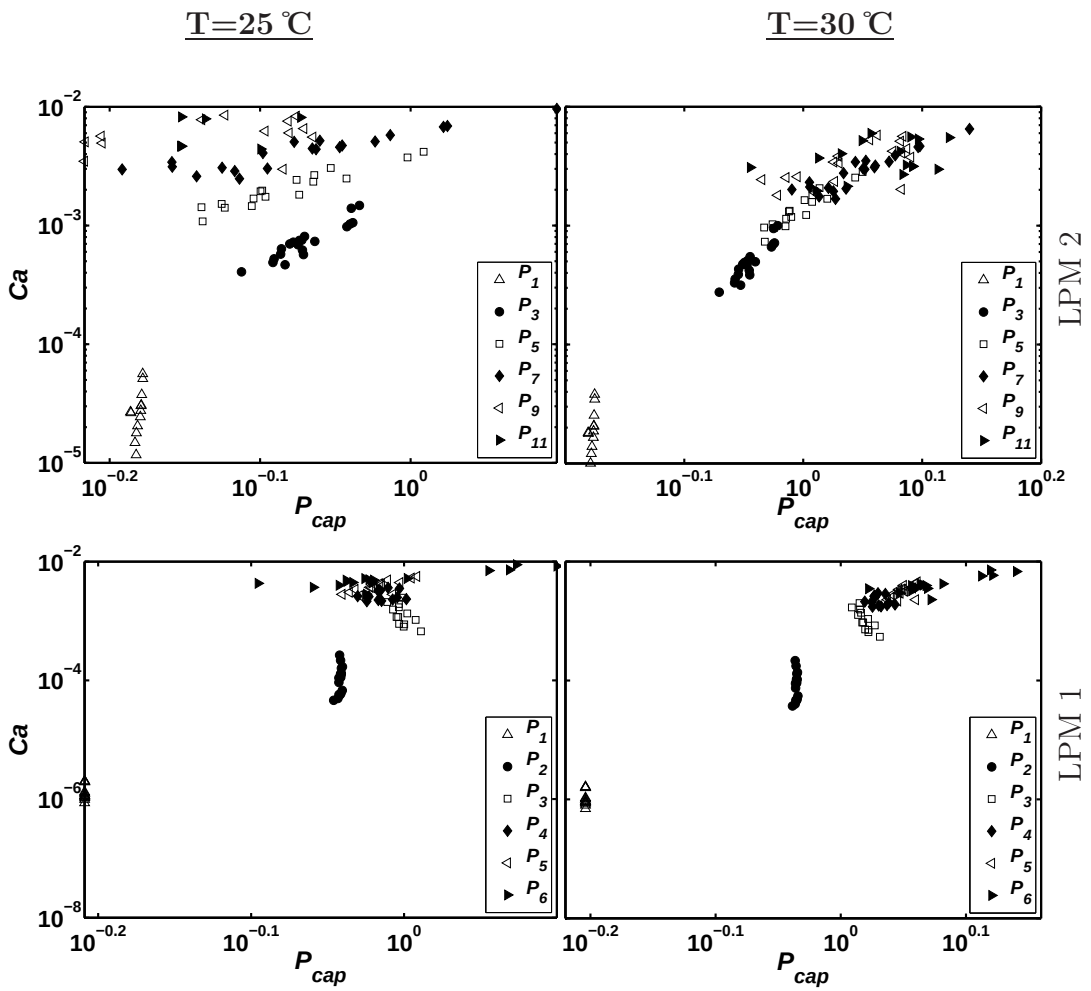


FIG. B.1: Termes capillaires pour les liquides partiellement mouillants, obtenus pour deux températures différentes : à gauche T=25 ℃, à droite T=30 ℃. Les graphiques du dessus correspondent à la solution aqueuse de glycérol (LPM 2), et ceux du dessous à l'eau (LPM 1). Les pressions sont les mêmes que celles des courbes de la figure 2.11.

Annexe C

Calcul numérique de la forme de l'interface avant en blocage

On développe ici la méthode numérique utilisée pour calculer la courbure maximale supportée par l'interface avant d'un bouchon de liquide mouillant bloqué à l'entrée de la bifurcation (blocage, Section 2.3.2). Ce travail, qui a été réalisé avec Matthias Heil, du Department of Mathematics de l'Université de Manchester, est rédigé en anglais. Cette coopération s'inscrit dans le cadre prévu par la bourse Gaspard Monge de l'Ecole Polytechnique. Le code implémenté sera intégré à la prochaine version de la librairie numérique multiphysique, `oomph-lib` (http ://www.oomph-lib.org, 2007), développée par Matthias Heil et Andrew Hazel.

Introduction Our concern here is the study of the shape of the static front interface of a plug of wetting liquid, which is blocked at the entrance of a T-shaped microfluidic junction, as observed in the Section 2.3.2. In these situations, the free surface is assumed to be pinned along the edges of the bifurcation but free to move on the top and bottom walls of the microchannel.

The mean curvature of the interface depends on the position of its apex, and its value is bounded by an upper bound. This is also the case when one inflates a droplet or a bubble at the end of a cylindrical tube : as the droplet gets bigger, the radius of curvature of the droplet disminishes down to the radius of the tube and then starts to increase again (Section 4.1.2). By computing the curvature of the free surface for different positions of the apex, one can then derive the upper bound value. This is the method we use here.

In order to obtain the curvature, the whole shape of the interface has to be computed. Due to the geometry of the bifurcation and the shape of the meniscus at large apex positions, the use of the cartesian formulation of the Young-Laplace equation is not possible. The problem needs to be formulated in an equivalent

variational formulation, which is presented in Section C.3. Mixed boundary conditions (B.C.) are used : pinned or Dirichlet B.C. are imposed along the edges of the bifurcation and Neuman B.C. are considered along the contact lines on the top and bottom walls (Section C.1). Moreover, the free surface is described using the method of "spines" (Section C.2). The problem is then be solved by a finite elements technique, with the help of the `oomph-lib` library, which is an objected-oriented open-source finite-element library, for the simulation of multi- (and single-)physics problems (Heil & Hazel, 2006; http ://www.oomph-lib.org, 2007). Some aspects of the numerical procedure are developed in Section C.4. In the following, microchannels are assumed to be rectangular and their walls perfectly smooth, and the corners of the junction are right angles.

C.1 The problem

Notations A typical meniscus is shown on the figure C.1-a. We parametrise the meniscus by two intrinsic coordinates as $\mathbf{R}(\zeta_1, \zeta_2) \in \mathbb{R}^3$, where $(\zeta_1, \zeta_2) \in D \in \mathbb{R}^2$. Furthermore, we parametrise the domain boundary, ∂D, by a scalar coordinate ξ so that,

$$\partial D = \left\{ (\zeta_1, \zeta_2) \;\middle|\; (\zeta_1, \zeta_2) = \left(\zeta_1^{[\partial D]}(\xi),\ \zeta_2^{[\partial D]}(\xi) \right) \right\}, \tag{C.1}$$

and we have $\partial D = \partial D_{\text{pinned}} \cup \partial D_{\text{angle}}$.

The normal to the meniscus is given by

$$\mathbf{N} = \frac{\mathbf{R}_{,1} \times \mathbf{R}_{,2}}{\mathcal{A}^{1/2}}, \tag{C.2}$$

where $\mathcal{A}^{1/2} = |\mathbf{R}_{,1} \times \mathbf{R}_{,2}|$ is the square root of the metric tensor. We define along the contact line the two unit vectors $\mathbf{T}_t$ and $\mathbf{T}_n$, which are both tangential to the meniscus : $\mathbf{T}_t$ is tangent to the contact line ; $\mathbf{T}_n$ is normal to it and points away from the meniscus. The vectors $\mathbf{N}$, $\mathbf{T}_t$ and $\mathbf{T}_n$ are shown on the figure C.1-b.

Boundary Conditions On $\partial D_{\text{pinned}}$, the meniscus is pinned :

$$\mathbf{R}|_{\partial D_{\text{pinned}}} = \mathbf{R}_{\text{pinned}}(\xi), \tag{C.3}$$

where $\mathbf{R}_{\text{pinned}}$ is given. On $\partial D_{\text{angle}}$, the meniscus meets the wall at a prescribed contact angle θ_e, so that

$$((\mathbf{T}_t \times \mathbf{N}_{\text{wall}}) \cdot \mathbf{T}_n)|_{\partial D_{angle}} = \cos\theta_e, \tag{C.4}$$

where $\mathbf{N}_{\text{wall}}$ is the outer unit normal to the wall (see Fig. C.1-b).

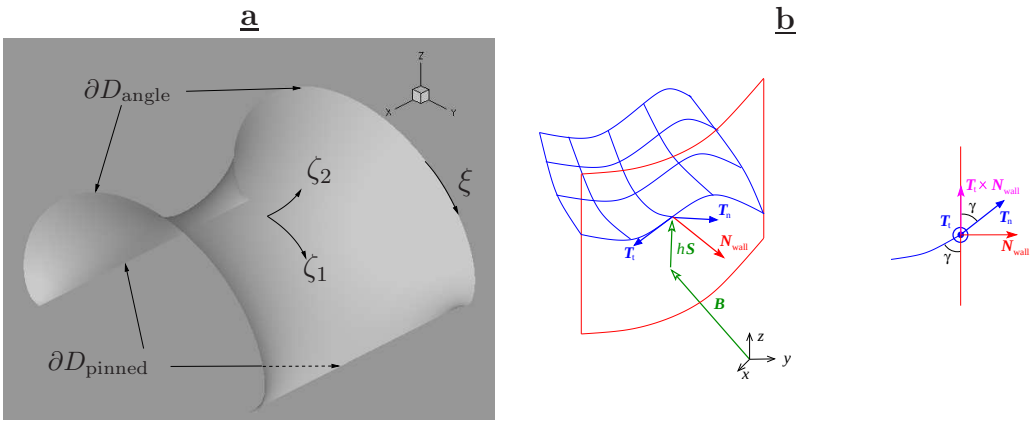


FIG. C.1: **a**- A typical meniscus and the parametrisation. **b**- Vectorial notations.

C.2 Spine-based representation of the meniscus

Decomposition of the position vector Following an approach commonly used in the computation of free surfaces (Kistler & Scriven, 1983; Heil, 1999; Cliffe *et al.*, 1992), the interface is represented here with spines. The vector $\mathbf{R}$ pointing at some point of the meniscus is written in two parts as

$$\mathbf{R}(\zeta_1, \zeta_2) = \mathbf{B}(\zeta_1, \zeta_2) + u(\zeta_1, \zeta_2)\ \mathbf{S}(\zeta_1, \zeta_2). \tag{C.5}$$

The spine basis $\mathbf{B}(\zeta_1, \zeta_2)$ and the spine $\mathbf{S}(\zeta_1, \zeta_2)$ are pre-determined vector fields. Therefore, the heights u along the spines $\mathbf{S}$ are unknowns of the problem (see Fig. C.1-b).

Choice of spine basis and spine vector fields We choose the vector fields $\mathbf{B}$ and $\mathbf{S}$ such that the mapping from (ζ_1, ζ_2) to $\mathbf{R}(\zeta_1, \zeta_2)$ is one-to-one, at least for the meniscus shapes of interest. Along the parts of the boundary where the contact line is pinned, we set

$$\mathbf{B}|_{\partial D_{\text{pinned}}} = \mathbf{R}_{\text{pinned}}. \tag{C.6}$$

Along the parts of boundary where the contact angle is prescribed, $\mathbf{S}$ is tangential to the wall,

$$(\mathbf{S} \cdot \mathbf{N}_{\text{wall}})|_{\partial D_{\text{angle}}} = 0. \tag{C.7}$$

With this choice, since $\mathbf{T}_t$ is also tangential to the wall ($\mathbf{T}_t \cdot \mathbf{N}_{\text{wall}} = 0$), the spines $\mathbf{S}$ may be written as $\mathbf{S} = S_{\mathbf{T}_t}\mathbf{T}_t + S_{\mathbf{T}_t \times \mathbf{N}_{\text{wall}}}\mathbf{T}_t \times \mathbf{N}_{\text{wall}}$. Therefore, the contact angle can be related to the scalar product $\mathbf{T}_n \cdot \mathbf{S}$ by

$$\cos\theta_e = \mathbf{T}_n \cdot \mathbf{S}. \tag{C.8}$$

C.3 The variational meniscus shape equation

We use the principle of virtual displacements to write a variational formulation of the Young-Laplace equation (Heil, 1999).

We denote $\delta\mathbf{R}$ the virtual displacement of a point of the interface. During this virtual displacement, the variation of the energy of the free surface equals the work of the pressure augmented by the work exerted by the interfacial tensions on the contact line. In other words, the internal energy of the surface is changed in a same amount by the external work provided to the surface and its boundaries. Therefore, by expressing and balancing the different works, the equation governing the meniscus shape reads

$$\delta\left(\iint_{\mathcal{S}}\gamma \quad ds\right) = \iint_{\mathcal{S}}\mathcal{P}_f \;\; \mathbf{N}\cdot\delta\mathbf{R} \;\; ds + \oint_{\mathcal{L}}\gamma \;\; \mathbf{T_n}\cdot\delta\mathbf{R} \;\; dl. \tag{C.9}$$

The left hand side term represents the variation in surface energy during the virtual displacement. Here, γ is the surface tension and ds is an infinitesimal element of the meniscus surface. The whole area of the meniscus is denoted $\mathcal{S}$. The first right hand side term holds for the work done by the forces of pressure during the displacement. The last term of the equation represents the work done by the surface tension at the moving contact line. Here, dl is the length of an element of length belonging to the contact line of length $\mathcal{L}$. Using differential geometry, the area and length of elementary elements read

$$ds = \mathcal{A}^{1/2}\, d\zeta_1\, d\zeta_2 \;\text{ and }\; dl = \left|\frac{d\mathbf{R}(\xi)}{d\xi}\right| d\xi \tag{C.10}$$

By using the Laplace's law, $\mathcal{P}_f = \gamma\kappa$, and the previous equations, one can write the work balance as

$$\boxed{\iint_{\mathcal{S}}\left(\frac{\delta\mathcal{A}^{1/2}}{\mathcal{A}^{1/2}} - \kappa\;\mathbf{N}\cdot\delta\mathbf{R}\;\right)\mathcal{A}^{1/2}\, d\zeta_1\, d\zeta_2 = \oint_{\mathcal{L}}\mathbf{T}_n\cdot\delta\mathbf{R}\left|\frac{d\mathbf{R}(\xi)}{d\xi}\right| d\xi.} \tag{C.11}$$

The term $\delta\mathcal{A}^{1/2}$ is obtained as $\delta\mathcal{A}^{1/2} = \mathbf{F_1}\cdot\delta\mathbf{R}_{,\mathbf{1}} + \mathbf{F_2}\cdot\delta\mathbf{R}_{,\mathbf{2}}$, where

$$\mathbf{F_1} = \frac{|\mathbf{R}_{,2}|^{\mathbf{2}}\;\mathbf{R}_{,1} - \mathbf{R}_{,1}\cdot\mathbf{R}_{,2}\;\mathbf{R}_{,2}}{\mathcal{A}^{\mathbf{1/2}}}, \;\text{ and }\; \mathbf{F_2} = \frac{|\mathbf{R}_{,1}|^{\mathbf{2}}\;\mathbf{R}_{,2} - \mathbf{R}_{,1}\cdot\mathbf{R}_{,2}\;\;\mathbf{R}_{,1}}{\mathcal{A}^{\mathbf{1/2}}}. \tag{C.12}$$

Using the spine representation , the derivatives of the position vector $\mathbf{R}$ are computed according to

$$\mathbf{R}_{,\alpha} = \mathbf{B}_{,\alpha} + (u\;\mathbf{S})_{,\alpha}, \tag{C.13}$$

and applying virtual displacements rules, the virtual displacement and its derivatives read respectively

$$\delta\mathbf{R} = \delta u\ \mathbf{S}, \quad \text{and} \quad \delta\mathbf{R}_{,\alpha} = (\delta u\ \mathbf{S})_{,\alpha}. \tag{C.14}$$

Equation C.11 can thus be expressed in terms of δu and is valid for every value of δu : it constitutes directly a variational form required for the finite elements computation of the shape of the meniscus.

The boundary conditions are prescribed within the term corresponding to work done at the contact line : when the latter is pinned, the work is nil since displacement is not allowed ; when the contact line is free to move, the right hand side term of Equation C.11 is equivalent to apply the contact angle boundary condition, as shown by Equations C.8 and C.14.

C.4 Numerical approach

We use a finite elements method implemented with the Oomph Lib C++ Library to solve the equation C.11. The curvature of the interface κ may be prescribed, or determined as an unknown of the problem. In this case, it is required to provide another equation to close the problem and the position of a selected point on the interface (here, the apex) is imposed. It is necesary to use this method for convergence reasons : when varying the curvature, one gets two possible positions for the apex ; when varying the apex position, only one curvature can be found. Therefore, we prescribe the height of the apex and consider κ as an additional unknown of the problem.

We represent the displacement field in terms of piecewise bi-quadratic finite element shape functions. The rectangular domain is discretised into quadrangular elements. All integration operations are performed by means of Gauss quadratures. The nonlinear system is solved by a Newton-Raphson method. The first initial guess corresponds to a flat profile, thus $u = 0$ for all points. Thereby, we can solve the problem for different heights of a controlled point by incrementing slowly the height at each calculation. The singularities at the corners lead us to perform adaptive mesh refinement in these areas by an automatic procedure, implemented in Oomph Lib., and based on Z2 error estimation (Zienkiewicz & Zhu, 1992).

Typical shapes. Figure C.2 show typical meniscii that were computed by the numerical method. They are obtained for $\theta_e = \pi/4$ and correspond to different positions of the apex.

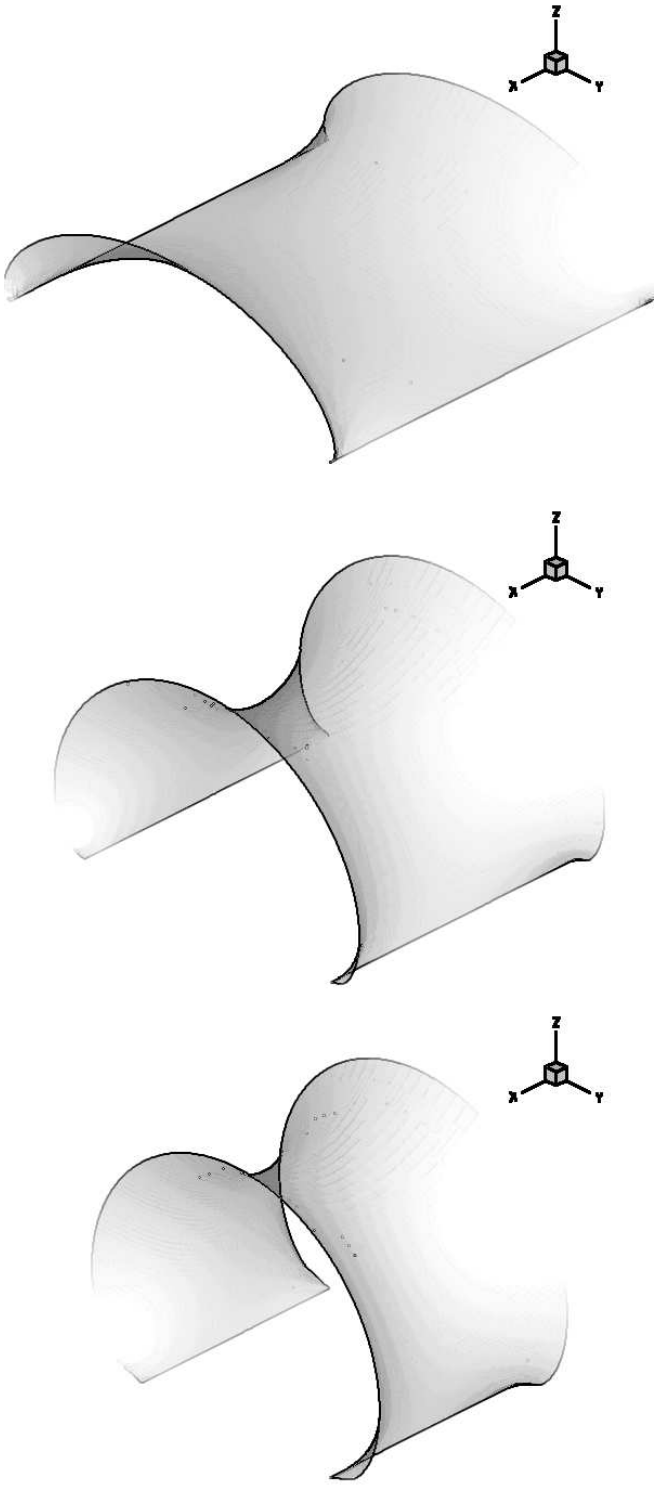


FIG. C.2: Typical shapes of meniscii obtained for different apex positions.

Convergence and error tests. The figure C.3 shows typical results (continuous lines) obtained for $\theta_e = \pi/2$ and $\theta_e = \pi/4$. The size of the domain is 1×1. For $\theta_e = \pi/2$, the numerical results are compared with the analytical expression of the curvature (discontinuous lines, Eq. 4.2, Section 4.1.2). The two methods give similar results, except for the largest apex positions. For $\theta_e = \pi/4$, the numerical results are computed for two different levels of refinement, showing the convergence of the method. The curve corresponding to the lower level of refinement is plotted with a discontinuous line. The convergence is observed for smaller values of the position of the apex.

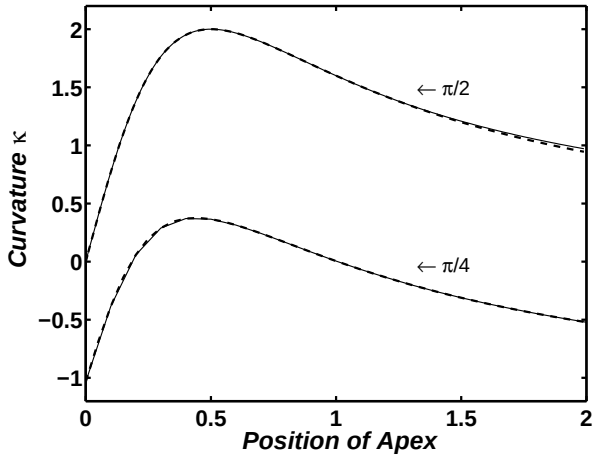


FIG. C.3: Accuracy and convergence. Numerical results are plotted with continuous lines. For $\theta_e = \pi/2$, the discontinuous line is analytic, whereas for $\theta_e = \pi/4$, the discontinuous line is obtained with numerics on a coarser mesh.

C.5 Results : maximal curvatures

Effect of the contact angle. The curvature is computed for different contact angles varying from $\pi/48$ to $\pi/2$. The size of the domain is 1×1. The results are plotted on the figure C.4-a. For the smallest values of the contact angle, the computed curvatures are negative. The effect of the contact angle on the maximal curvature is shown on the figure C.4-b. Maximal curvature are computed from the curves of the figure C.4-a and plotted against the contact angle. The maximal curvature increases as the contact angle gets bigger.

Effect of the ratio w/h. We now study the effect of the ratio of the dimensions of the domain on the maximal mean curvature. The ratio λ is obtained as $\lambda = w/h$, w being the the width of the channel, and h its height (See Chapter 2). The height is kept equal to 1 during the computation so results may be seen as non-dimensionalised as well. The results are plotted on the figure C.5-a, which

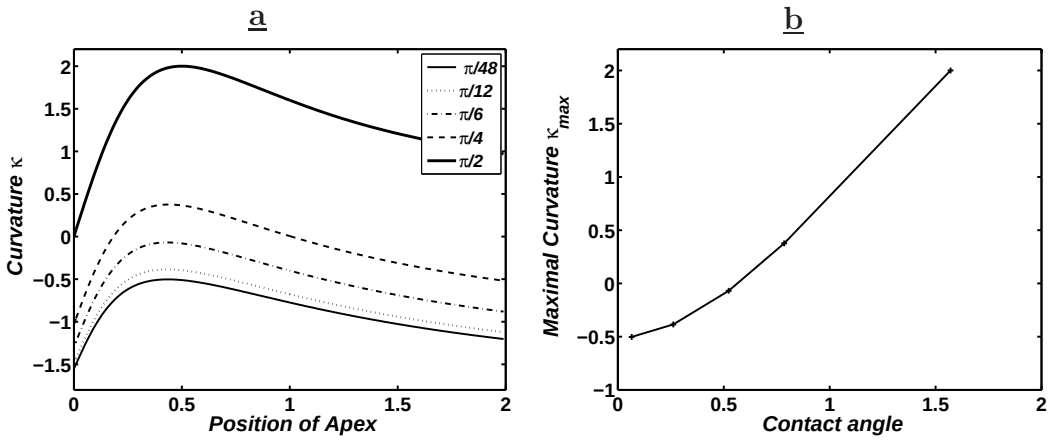


FIG. C.4: Effect of the contact angle on the curvature.

shows that the curvature decreases as the ratio is increased. For a contact angle of $\pi/2$, the curvature decreases and tends to zero as the aspect ratio is increased : the corresponding pressure jump at the interface disminishes and the interface gets flatter. For smaller values of the contact angle, this is not the case as the maximal curvature increases in absolute value : the pressure jump gets bigger.

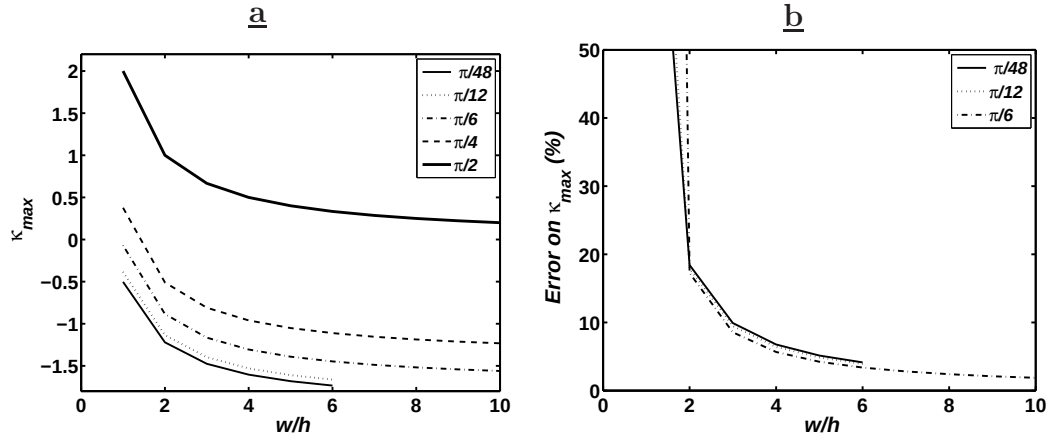


FIG. C.5: **a**- Maximal curvatures as a function of the angles and the ratio. **b**- Erros between the analytical (Eq. 4.2 and numerical methods).

Error between the numerical and analytical curves. Finally, analytical results are compared with the numerical results by computing the errors between the two calculations. They are plotted on the figure C.5-b. It is clearly shown that increasing the aspect ratio leads to smaller errors. For the channels used in the experiments ($w/h = 6$), the analytical expression gives a good estimation and the error is less than 5%. However, the use of the numerical method is necesary for lower ratios, in particular, squared microchannels.

Annexe D

Communications

Transport of wetting plugs in bifurcating microfluidic channels.

C. Ody, C. Baroud et E. de Langre
Journal of Colloid and Interface Science, 2007, **308**, 231-238.

Transport de gouttes de liquide mouillant dans des microcanaux en T.

C. Ody, C. Baroud et E. de Langre
Congrès français de Mécanique - Grenoble 2007 - Communication n° 760.

Modélisation en microfluidique du transport de ponts liquides dans l'arbre pulmomaire.

C. Ody et C. Baroud
Congrès français de Mécanique - Troyes 2005 - Communication n° 868.