

Imprégnation forcée de fluides dans des milieux poreux

Aline Delbos

▶ **To cite this version:**

Aline Delbos. Imprégnation forcée de fluides dans des milieux poreux. Autre [cond-mat.other]. Université Paris-Est, 2010. Français. NNT : 2010PEST1056 . tel-00542832v2

HAL Id: tel-00542832

https://pastel.hal.science/tel-00542832v2

Submitted on 31 Mar 2011

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

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

THÈSE
présentée à
l'Université Paris-Est Marne-la-Vallée
École doctorale
Sciences, Ingénierie et Environnement

par
Aline Delbos
pour obtenir le grade de docteur
Spécialité : Physique

Imprégnation forcée de fluides dans des milieux poreux

Soutenue le 21 octobre 2010

Membres du jury :

Mme Isabelle Cantat	Rapporteur
M. Jean-Marc DiMeglio	Rapporteur
M. Dominique Salin	Président du jury
M. Laurent Limat	
M. Cyrille Raquin	
Mme Michèle Adler	Directrice de thèse
M. Olivier Pitois	Co-Directeur de thèse
Mme Elise Lorenceau	

Remerciements

Mes remerciements vout tout d'abord à Michèle Adler, ma directrice de thèse et directrice du LPMDI à mon arrivée. Je remercie aussi Yamine Leprince, la directrice actuelle du laboratoire. Je remercie les membres de mon jury, Isabelle Cantat et Jean-Marc Dimeglio pour avoir rapporté ce travail, Dominique Salin d'avoir présidé ce jury, Laurent Limat et Cyrille Raquin pour y avoir participé.

Merci à l'Institut Navier d'avoir prêté en catastrophe une salle pour ma soutenance de thèse, celle prévue initialement étant bloquée pour cause de grève d'étudiants !

Un grand merci à mes encadrants, Elise Lorenceau et Olivier Pitois. Vous m'avez fait découvrir le monde de la recherche et m'avez tant appris. Merci pour votre disponibilité, vos encouragements et votre patience !

Merci à Florence Rouyer, qui m'a donné mon premier cours à l'Université Marne la Vallée, et avec qui j'ai eu beaucoup l'occasion de discuter (de science ou non) au cours de ma thèse. Merci à Anne-Laure Biance sans qui la partie sur la rupture de film ne serait pas là.

Cette thèse a été financée en partie par une ANR sécurité (PROTER) à laquelle participait l'IRFAQ, à qui je dois toutes les mesures de dosage du salicylate de méthyle.

Mais cette thèse n'aurait pas été aussi agréable à vivre sans la présence tout d'abord de mes deux grands frères Nicolas et Rémi, mais aussi de Kevin, Yann, Pr Kapil Krishan, Julie, Carole (trop peu souvent parmis nous !), Guillaume et Séverine (bonne chance pour la suite).

Et bien entendu, merci à ma famille pour m'avoir toujours soutenue.

Table des matières

1 Impacts **7**

1.1 Introduction 7

1.1.1 L'impact 10

1.1.2 L'imbibition 13

1.1.3 Poreux modèle 15

1.2 Montage expérimental 16

1.2.1 Mouillabilité des pores 16

1.2.2 Liquides utilisés 20

1.3 Observations : les différents régimes d'imprégnation 20

1.3.1 Cas non mouillant 20

1.3.2 Cas mouillant 22

1.4 Résultats et discussion 24

1.4.1 Volume d'un index 24

1.4.2 Seuils comportementaux 26

1.4.3 Position du front de liquide 37

1.5 Aux très grandes vitesses 45

1.6 Conclusion sur les impacts 46

2 Imprégnation forcée de mousse dans un pore **48**

2.1 Généralités sur les mousses 48

2.1.1 Géométrie 49

2.1.2 Stabilité des mousses 52

2.1.3 Perméabilité 54

2.1.4 Seuil d'écoulement, T1 58

2.2 Montage expérimental 62

2.2.1 Mousse stationnaire 63

2.2.2 L'aspiration 68

2.3 Résultats et discussions 68
2.3.1 Régime « mousse » 69
2.3.2 Régime « liquide » 78
2.3.3 Régime « gaz » 83
2.4 Conclusion 89

3 Aspiration d'huile par une mousse **91**
3.1 Introduction 91
3.2 Expériences d'imprégnation 95
3.2.1 Montage 97
3.2.2 Solutions utilisées 97
3.2.3 Résultats 99
3.3 Mousse en contact avec l'entrée d'un tube rempli d'huile 102
3.4 Application : décontamination d'un tissu 108
3.4.1 Cas de référence : le verre 108
3.4.2 Sur un tissu 109
3.5 Conclusion 113

A Projection des forces capillaires **115**
A.1 Cas non mouillant 115
A.2 Cas mouillant 116

B Filtre en mousse aqueuse **117**
B.1 Capture de particules 117
B.2 Fabrication du filtre 119
B.3 Observations 120

Introduction

Le passage d'interfaces à travers une porosité est un phénomène complexe mettant en jeu l'affinité du liquide avec le solide, mais aussi la capacité de l'interface à se déformer. Pour qu'une interface puisse entrer spontanément dans une porosité, il faut que les forces de tension de surface y soient favorables. Dans le cas contraire, il faut apporter de l'énergie par ailleurs pour forcer son passage.

C'est ce que nous allons étudier ici, à partir d'un problème posé par un projet de décontamination de tissu. Un tissu (qui est un milieux poreux, puisque constitué de fibres solides entre lesquelles peut circuler un liquide) est pollué par un liquide (une huile) dispersé sous forme de gouttelettes et nous voudrions pouvoir l'extraire de la porosité. Pour cela, nous comptons sur la capacité qu'ont les solutions tensioactives d'émulsionner ou de solubiliser les huiles dans les micelles. Pour limiter l'imbibition du tissu par le liquide, nous choisissons d'utiliser une mousse de cette solution pour décontaminer. Cette dernière est une assemblée de bulles de gaz dispersées dans du liquide moussant et peut elle aussi être considérée comme un milieu poreux (le liquide pouvant circuler entre les bulles).

Ce problème nous permet de dégager trois axes d'étude. Nous étudierons dans un premier temps le passage forcé de liquide dans un poreux simple, dans le cadre de l'impact d'une goutte dans des pores dont la surface est soit hydrophobe, soit hydrophile. Dans ce premier cas, l'imprégnation n'est pas spontanée et nous espérons avec l'impact apporter l'énergie nécessaire pour forcer le passage de l'interface, et au moins d'une partie du liquide de la goutte. Dans le second cas, l'imbibition se fait spontanément, mais la vitesse d'imprégnation et la quantité de liquide entrée dépendent fortement des caractéristiques de l'impact.

Dans un second temps, le passage d'une mousse est forcé à travers un pore. La mousse étant constituée de deux fluides différents, ce sont des interfaces liquide - air qui doivent passer successivement. Nous nous plaçons dans le cas où le diamètre des bulles est supérieur ou égal au diamètre du pore. Nous verrons comment la mousse résiste à cette imprégnation forcée, et quels sont les mécanismes physiques qui déterminent la nature et la morphologie des phases qui pénètrent.

Enfin, nous nous intéressons à la capacité d'une mousse à extraire une huile piégée dans les pores d'un milieu poreux, d'abord un pore unique, puis dans un ordre plus appliqué, au cas d'un tissu.

Chapitre 1

Impacts

1.1 Introduction

Avant de pouvoir prétendre dépolluer un tissu, nous nous demandons où le polluant se situe, imprégné à l'intérieur ou seulement étalé en surface. S'il s'agit d'un liquide projeté sous forme de gouttelettes, nous voudrions savoir si le liquide peut se retrouver piégé dans la porosité du tissu, ou s'il reste en surface. En effet, pour des tissus comme le coton, nous nous attendons à ce que les gouttes pénètrent entièrement, alors que sur des GoreTex par exemple, les gouttes devraient s'écouler à la surface à cause du traitement qui donne ses propriétés hydrophobes à ce tissu. Nous nous demandons donc quels sont les phénomènes mis en jeu lors de l'impact de gouttes sur un milieu poreux.

Considérons un poreux minimaliste : un trou dans une surface très fine. Les expériences menées dans [1] nous apprennent qu'il existe une vitesse critique au delà de laquelle une partie de la goutte est éjectée au travers du trou. Cette vitesse dépend de la tension de surface de la goutte (qui a tendance à la maintenir sphérique), de la viscosité du liquide et de l'énergie cinétique (qui tend à séparer du reste de la goutte le liquide qui est passé à travers le trou). Les contributions de la viscosité et de la capillarité par rapport à l'inertie sont quantifiées par les nombres de Reynolds, $Re^* = \frac{\rho v_i r}{\eta}$ calculé à partir du rayon du trou r, de ρ la masse volumique du liquide, de η sa viscosité dynamique et v_i la vitesse d'impact et de Weber $We^* = \frac{\rho v_i^2 r}{\gamma}$ avec γ la tension de surface du liquide.

Ces deux nombres permettent de déterminer le seuil d'éjection d'une goutte au travers du trou comme l'équilibre entre l'inertie, la viscosité et la tension de surface. Les auteurs notent également que selon l'épaisseur de la plaque percée, la vitesse d'impact seuil permettant la formation d'une goutte est différente. Les résultats ne sont donc pas directement exploitables dans le cas d'un poreux réel, c'est à dire avec des parois.

La plupart des études menées sur les impacts sur des milieux poreux plus réalistes concernent les phénomènes ayant lieu à la surface du poreux. En effet, il est assez difficile de faire des mesures dans le volume du poreux qui est, le plus souvent opaque ou très fin (comme dans le cas du papier). Nous donnons ici une liste non exhaustive de certains de ces travaux. Kannangara et al. [2], Chandra et Avedisian [3] ont étudié les conséquences de l'imbibition sur la manière dont s'étale le liquide à la surface du poreux. Ils ont mesuré les diamètres de gouttes lors de l'étalement sur les surfaces des poreux, mais la très faible taille de la porosité par rapport à la taille de la goutte ne leur a pas permis d'étudier les phénomènes en volume.

Les phénomènes ayant lieu en volume ont été appréhendés numériquement. Ainsi, Hsu et Ashgriz [4] regardent ce qu'il se passe sur la première couche de poreux, en modélisant la porosité comme deux plaques parallèles horizontales séparées par de l'air et dont la plaque supérieure est percée d'un trou. Reis et al. [5] considèrent un empilement de sphères désordonnées comme un milieu poreux et ils comparent le volume finalement occupé par le liquide dans leurs simulations à celui obtenu expérimentalement grâce à l'imagerie RMN (figure 1.1). Ces simulations numériques leur permettent de prédire la profondeur de pénétration pour un empilement aléatoire de sphères mouillantes (ils n'observent pas de variation significative des résultats pour des angles de contact allant de 0° à 60°). Elle est, pour tous les poreux testés, systématiquement inférieure à un diamètre de goutte, alors que le diamètre maximal d'imbibition est quant à lui de deux à cinq fois le rayon de la goutte et est égal au diamètre maximal d'étalement de la goutte en surface. Les prédictions numériques donnent pour les plus grosses sphères, des profondeurs de pénétration et des étalements légèrement plus grands que ceux mesurés (cas a, c et d). En effet, comme les sphères sont plus grosses et que la taille de la goutte ne change pas, l'écoulement de liquide se fait sur un nombre moins important de sphères, donc moyenné sur un plus petit nombre de pores et est plus sensible à l'empilement idéal imposé dans les simulations. Cette étude présente l'état final du liquide dans le poreux, mais ne donne pas d'indication sur la présence ou non de liquide à l'extérieur du poreux. La dynamique de l'imprégnation est également étudiée dans [6] par les mêmes auteurs. Dans ce cas, la comparaison avec l'expérience n'a pu être faite. Dans les deux études de Reis et al [5], [6], les calculs sont faits à l'échelle du poreux, mais les auteurs ne donnent pas la dynamique d'imprégnation à l'échelle du pore.

Ces différents travaux montrent que l'impact sur les poreux mettent en jeu deux phénomènes couplés, l'imbibition du liquide en volume et son étalement en surface. Nous verrons donc dans la suite de cette introduction un état de l'art pour ces deux problèmes.

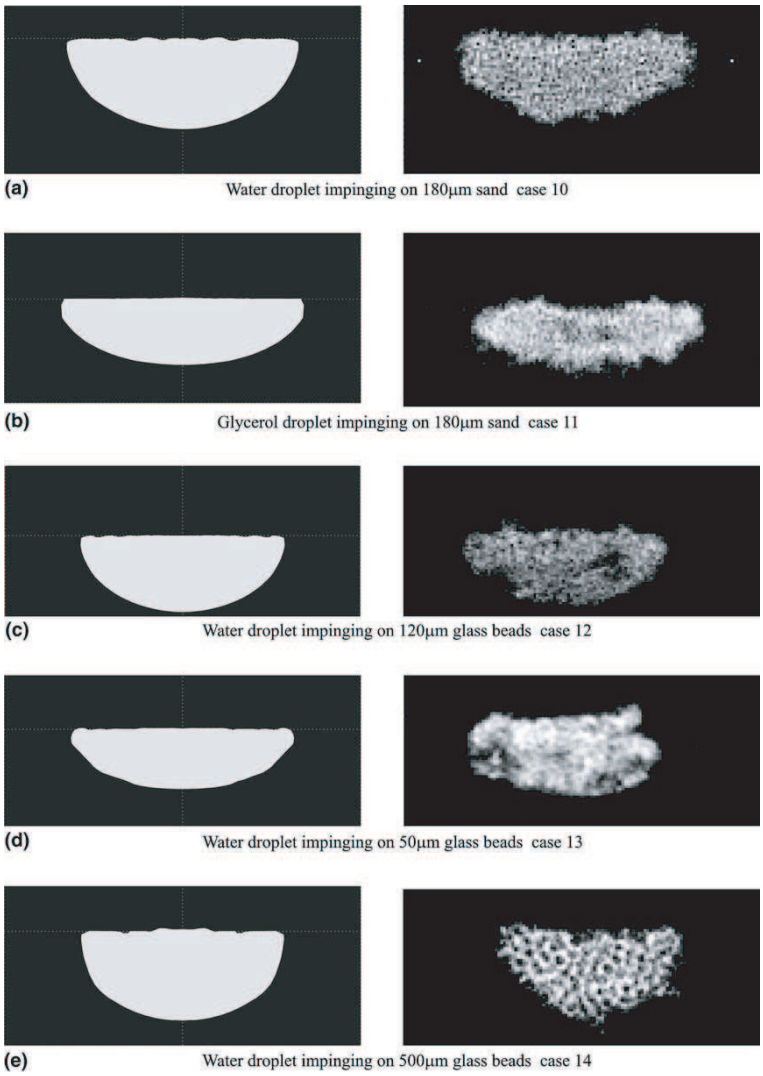


Fig. 1.1- Figure tirée de [5]. Profil de pénétration de liquide dans un milieu poreux : à gauche simulations numériques, à droite images IRM après l'impact à 0,52 m/s, pour des gouttes de diamètre 1,825 mm pour le cas 10, 1,715 mm pour le cas 11 et 1,660 mm pour les autres cas. Les simulations numériques permettent de donner la profondeur de pénétration du liquide et le diamètre d'étalement. Tout le liquide initialement dans la goutte imprègne le poreux ; la zone humide prend la forme d'une calotte sphérique, dont le diamètre maximal est le diamètre maximal d'étalement de la goutte et la profondeur atteinte est très inférieure au diamètre de la goutte. Elles sont en meilleur accord avec l'expérience pour les pores les plus petits que pour les plus grands, à cause du plus grand nombre de pores sur lesquels l'écoulement est moyenné, ce qui diminue la sensibilité de l'écoulement aux défauts l'empilement. La dynamique de pénétration est étudiée numériquement dans [6].

1.1.1 L'impact

Un très grand nombre d'études sont dévolues aux expériences d'impact de gouttes. Ceci est probablement dû au grand nombre d'applications industrielles, mais aussi à la simplicité de l'expérience elle même (le fait de lancer une goutte sur une surface). Pourtant, en dépit de cette simplicité, on observe toute une variété de comportements : les gouttes s'étalent simplement, rebondissent partiellement ou totalement, ou enfin se fragmentent en se rétractant ou non. Nous ne ferons pas ici de revue détaillée reprenant toutes les expériences ou simulations menées sur le sujet (Yarin [7] a fait une revue sur les impacts de liquides sur différentes surfaces), mais nous donnons ici quelques éléments permettant d'appréhender ce phénomène simplement.

L'étalement d'un liquide sur une surface plane et sèche au cours d'un impact est contrôlé par la compétition entre l'inertie apportée au liquide lors de sa chute, qui tend à aplatir la goutte sur la surface et à deux contributions qui tendent à empêcher le liquide de s'étaler, à savoir, la tension de surface (qui veut maintenir une goutte ronde) et la viscosité (qui s'oppose à l'écoulement du liquide, dans ce cas à l'étalement sur une surface).

Les nombres de Reynolds et de Weber sont cette fois-ci calculés à partir du diamètre initial de la goutte $2r_g$ (figure 1.2). Leurs expressions sont alors $Re = \frac{\rho v_i 2r_g}{\eta}$ et $We = \frac{\rho v_i^2 2r_g}{\gamma}$. Un des paramètres les plus simples à étudier est le diamètre d'étalement d, qui atteint au maximum de l'extension de la goutte la valeur D_{max}

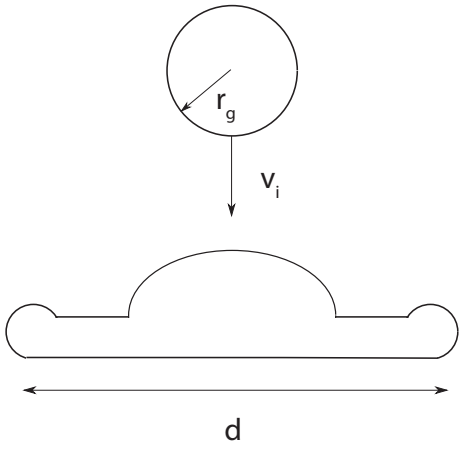


Fig. 1.2- Impact d'une goutte de rayon $2r_g$ sur une surface plane à la vitesse d'impact v_i. Le diamètre d'étalement de la goutte est noté d, il vaut D_{max} au maximum de son extension.

L'influence de la viscosité a été étudiée par différents auteurs, tels que Chandra et Avedisian [3] Šikalo et al. [8] et Marmaris et Thoroddsen [9]. Ils ont observé que le diamètre maximal d'étalement d'une goutte D_{max} dépend de la viscosité du liquide. Plus précisément, Chandra

et Avedisian [3] et Rein [10] ont montré que la dépendance de D_{max} avec la viscosité se fait en $Re^{1/5}$. L'énergie cinétique de la goutte $\rho(2r_g)^3 v_i^2$ est dissipée entièrement par la viscosité $\eta \frac{v_i}{h_{fin}} D_{max}^3$ dans un disque de diamètre D_{max} et d'épaisseur h_{fin} donné par la conservation du volume $h_{fin} D_{max}^2 \sim (2r_g)^3$. Ce régime est dit régime visqueux.

Clanet et al. [11] montrent que le diamètre maximal d'étalement $D_{max}/2r_g$ suit une loi en $We^{1/4}$ pour des gouttes d'eau impactant sur une surface super hydrophobe. Ils montrent que cette loi est valable pour pour les données des travaux de Stow et Hadfield [12] d'eau impactant sur une plaque d'aluminium lisse, celles de Marmanis et Thoroddsen [9] pour de l'eau impactant sur du papier. Il s'agit dans ce cas d'un régime « inertiel » dans lequel l'inertie est dissipée en partie par les forces capillaires et en partie par de la dissipation due à la recirculation de liquide dans la goutte déformée.

Ils ont de plus déterminé expérimentalement le passage du régime visqueux au régime capillaire, ce seuil est représenté sur la figure 1.3.

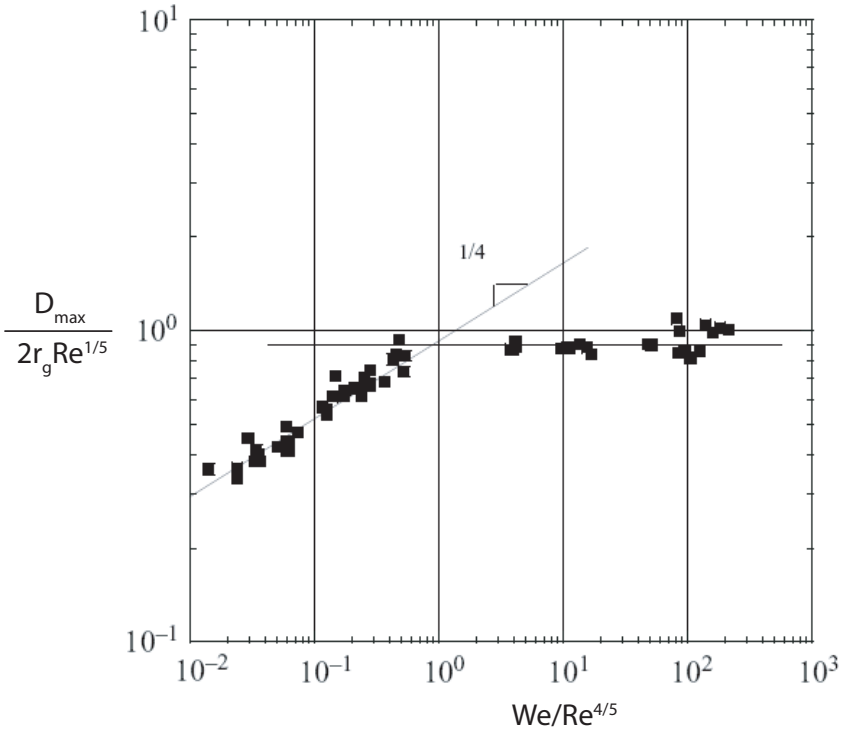


Fig. 1.3- Extrait de [11]. Diamètre maximal adimensionné en fonction du rapport $We/Re^{4/5}$. Le régime visqueux est donc le rapport $We/Re^{1/5} > 1$. Nos expériences seront menées dans le régime capillaire, pour $We/Re^{1/5} < 1$.

Dans toutes les expériences que nous mènerons, nous nous placerons dans le régime capillaire, c'est à dire pour $We/Re^{1/5} < 1$.

Intéressons nous à présent à l'évolution du diamètre d'étalement d au cours du temps.

Les expériences de Mourougou-Candoni et al. [13] consistent à faire impacter une goutte de 2 à 3 mm de diamètre, de différentes solutions de tensioactifs concentrées à 10 fois la concentration micellaire critique, leur tension de surface varie de 25 mN/m à 36,9 mN/m. Elles tombent toutes d'une hauteur de 70 cm de haut sur un substrat de verre recouvert d'acide stéarique, qui rend la surface hydrophobe. La figure 1.4 présente le diamètre d'étalement adimensionné $\beta = d/2r_g$ au cours du temps.

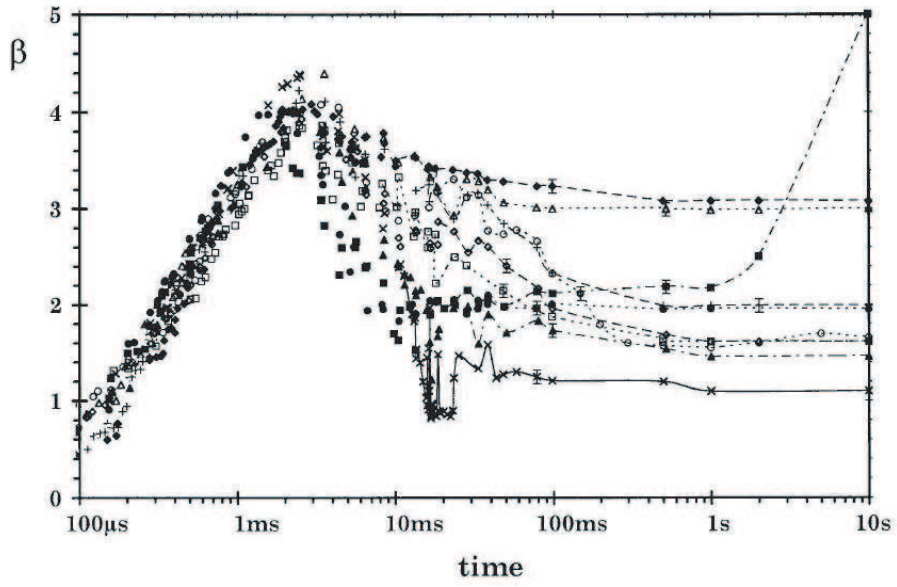


Fig. 1.4- Données de [13]. Diamètre d'étalement adimensionné $\beta = d/2r_g$ au cours du temps pour une goutte de 2-3 mm de diamètre impactant sur une surfaces de verre hydrophobe.

Pour toutes les solutions de tensioactifs testées, l'étalement de la goutte se fait en deux étapes. Tout d'abord, les liquides s'étalent tous de la même manière sur le substrat, quelle que soit leur tension de surface, jusqu'à ce que le diamètre maximal d'étalement D_{max} soit atteint. Celui ci devrait être différent selon les tensioactifs, mais la faible différence entre les tensions de surface ne nous permet pas de distinguer les différents comportements. Une fois D_{max} atteint, la goutte se rétracte et le comportement pour chaque liquide est alors différent.

L'étude de Šikalo et al. [8] concerne l'impact de différents liquides sur différentes surfaces, présentant une grande variabilité d'angles de contact (de 0° à 105°). La figure 1.5 présente leurs résultats. L'évolution du diamètre d'étalement d adimensionné par le diamètre de la goutte $2r_g$ est mesurée au cours du temps t adimensionné par $2r_g/v_i$ le temps que met la

goutte lancée à la vitesse v_i à se déplacer d'un diamètre. Pour toute la gamme d'angles de contact, le diamètre d'étalement suit la même variation au cours du temps pour les différentes surfaces, jusqu'à ce que le diamètre maximal d'étalement soit atteint. Ensuite, la rétraction de la goutte au cours du temps est différente pour chaque substrat.

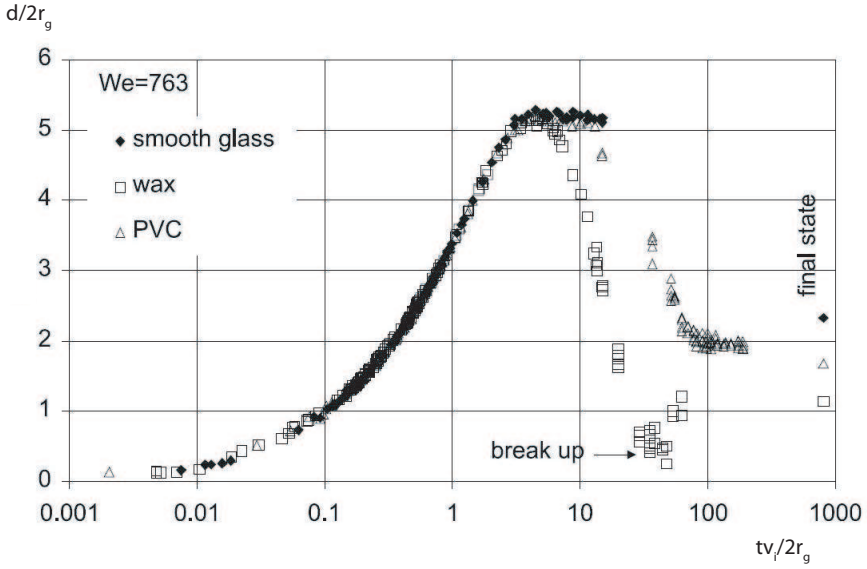


Fig. 1.5- Extrait de [8]. Diamètre d'étalement adimensionné au cours du temps d'une goutte de diamètre $2r_g$ =2,7 mm impactant à v_i =4,52 m/s sur différentes surfaces.

Dans la limite capillaire, le nombre de Weber We pilote l'étalement sur une surface plane dans le régime capillaire de l'étalement, mais qu'en est-il lorsque le liquide passe à travers et qu'il rencontre ensuite le volume du poreux ?

1.1.2 L'imbibition

Lorsqu'un milieu poreux est mis en contact avec un bain de liquide mouillant, nous pouvons observer un front de liquide monter dans le poreux. Cette ascension est due aux forces capillaires qui tirent le liquide vers le haut et lui permettent d'atteindre une certaine hauteur, équilibrée par le poids du liquide.

Pezron et al [14] ont déterminé que l'imbibition d'un tissu vertical mis en contact avec un bain de liquide comprend deux montées de liquide simultanées. L'une due à l'imbibition dans les plus gros trous, formés lors du tissage (entouré rouge sur la figure 1.6) ; l'autre due à l'imbibition dans les zones d'air entre les fibres constituant les fils (en noir sur la même figure).

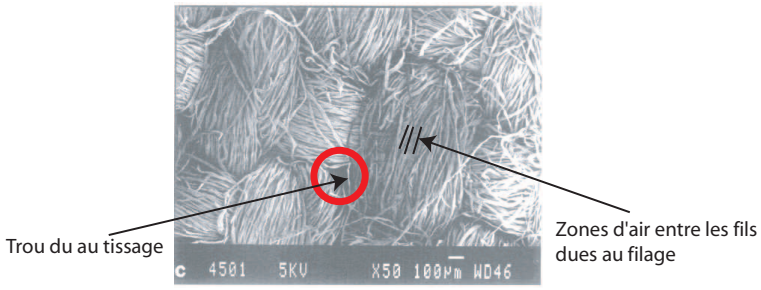


Fig. 1.6- Image de microscope tirée de [14], de quelques mailles de tissu.

Dans leur modèle, ils considèrent le tissu comme un faisceau de pores cylindriques de rayons constants, ce qui leur permet de prédire la hauteur de montée de liquide.

L'imprégnation dans des tubes capillaires est souvent utilisée comme modèle pour l'imprégnation dans des poreux. Elle a été étudiée par Jurin [15], qui présente la hauteur maximale que doit atteindre un liquide dans un tube capillaire. Elle est donnée par l'équilibre entre la dépression du liquide due au ménisque $P_\gamma = \frac{2\gamma cos\theta}{r_t}$ (avec θ l'angle de contact statique et r_t le rayon du tube) et la pression hydrostatique $P_{hydro} = \rho g H$ (avec g la gravité et H la hauteur de liquide montée dans le tube) comme sur la figure 1.7. Finalement, $H = \frac{2\gamma}{\rho g r_t} \cos\theta$

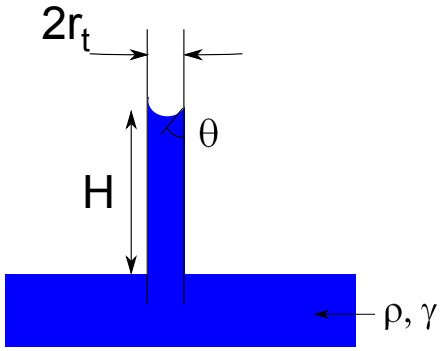


Fig. 1.7- Expérience d'imprégnation classique de montée d'eau dans un tube capillaire mouillant, telle que celle décrite par Jurin [15].

La dynamique de montée du liquide dans un tube capillaire a été étudiée par Washburn [16]. Les contributions au mouvement du liquide sont la tension de surface, le poids et les forces visqueuses. L'équilibre entre ces forces donne l'équation 1.1

$$\frac{d}{dt}(mv) = 2\pi r_t \gamma cos\theta - 8\pi\eta z v - mg \tag{1.1}$$

avec m la masse de liquide dans le tube, v sa vitesse, z la position de l'interface dans le tube, θ l'angle de contact et r_t le rayon du tube.

Lorsque l'influence du poids et de l'inertie sont négligés (aux instants courts, en-dessous de 0,01 s pour de l'eau montant dans un tube de rayon 0,1 mm), la position z est donnée par la relation :

$$z = \sqrt{\frac{\gamma r_t cos\theta}{2\eta} t} \tag{1.2}$$

Les forces visqueuses dans le tube ne se développent pas immédiatement dans le tube, il existe une longueur d'entrée sur laquelle l'écoulement de Poiseuille se met en place. Tant que l'interface n'a pas atteint cette longueur, il existe donc un régime où l'inertie ne peut pas être négligeable face aux forces visqueuses. Dans cette situation (étudiée par Quéré [17]), l'équilibre se fait entre l'inertie et les forces capillaires seules. L'équation 1.3 donne la position de l'interface au cours du temps dans ce régime :

$$z = \sqrt{\frac{2\gamma cos\theta}{\rho r_t} t} \tag{1.3}$$

Ces modèles permettent de décrire les phénomènes d'imprégnation dans les poreux les plus simples et d'estimer les dynamiques d'imprégnation dans les plus complexes comme dans le cas des tissus pour Pezron et al [14].

1.1.3 Poreux modèle

Pour tenter de comprendre la dynamique d'imprégnation d'un tissu lors de l'impact d'une goutte, nous considérons la structure microscopique dont un tissu est constitué.

Nous choisissons de regarder les phénomènes d'imprégnation à l'échelle d'un pore unique. Sur la figure 1.6, les plus gros pores apparaissent comme des trous d'air verticaux, dans un solide poreux constitué de fils. Lors d'un impact, ce sont ces plus gros trous qui peuvent laisser passer le plus de liquide et nous nous intéressons à l'impact de liquide sur des tubes capillaires verticaux, dont la paroi est en verre lisse (nous ne tenons pas compte de la seconde porosité). Le verre nous permet de pouvoir faire varier l'état de surface du pore et donc d'étudier le comportement du liquide au contact de surfaces mouillables ou non.

L'expérience d'imprégnation forcée considérée dans cette thèse propose deux modifications par rapport à l'expérience classique d'imbibition, puisque la goutte - le réservoir de liquide - est de volume fini et de surcroît possède une énergie cinétique [18].

1.2 Montage expérimental

Une goutte de liquide de diamètre $2r_g = 2,5$ mm est formée en poussant le liquide, à l'aide d'un un pousse-seringue, à travers une aiguille de diamètre 0,5 mm. Celle-ci tombe sur un tube capillaire vertical à une vitesse v_i comprise entre 0 et 3 m/s qui varie avec la hauteur de chute de la goutte (voir figure 1.8). Nous filmons l'impact à l'aide d'une caméra rapide à une vitesse typique de 7000 images par seconde. Nous vérifions le centrage *a posteriori* à l'aide de deux miroirs verticaux orientés à 45° l'un de l'autre. La vitesse est mesurée pour chaque expérience juste avant l'entrée dans le tube, à l'aide des images de la caméra.

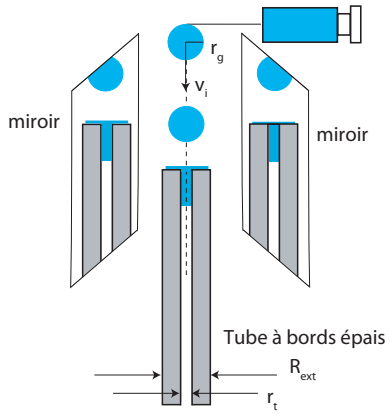


Fig. 1.8- Montage expérimental : une goutte de liquide tombe d'une seringue et entre dans le tube vertical. Les parois du tube sont larges devant l'ouverture du pore et le tube est ouvert aux deux extrémités. Le miroir permet de vérifier que le centre de la goutte est bien situé sur l'axe de symétrie du pore.

Nous utilisons des tubes capillaires en verre de 5 cm de long, ouverts aux deux extrémités. Nous choisissons des tubes à bord large (R_{ext} supérieur à 5 mm). Ainsi, lors de l'impact, le liquide éjecté ne retombe pas sur la paroi extérieure du tube, ce qui empêcherait de voir ce qui se passe dans celui-ci. Les rayons internes r_t sont de 0,10 mm, 0,22 mm, 0,30 mm, 0,40 mm et 0,50 mm.

1.2.1 Mouillabilité des pores

1.2.1.1 Traitement de surface

Nous traitons les surfaces des tubes de manière a obtenir deux mouillabilités : l'une plutôt hydrophile (l'angle de contact entre le liquide et le solide est inférieur à 90°) et l'autre plutôt hydrophobe (angle de contact supérieur à 90°). Les tubes en verre non traités présentent un angle de contact de l'ordre de 50°. Nous cherchons à le réduire pour améliorer l'hydrophi-

lie. Pour cela, nous plaçons les tubes au four à plasma pendant 20 minutes avant chaque expérience, ce qui a pour effet de détruire les impuretés organiques présentes à la surface du verre et ainsi d'avoir une surface de verre propre. L'angle de contact de l'eau sur ce verre propre est alors de 30° (le détail de la méthode de mesure des angles est donné plus loin).

Pour obtenir des surfaces hydrophobes, nous commençons par nettoyer les tubes dans un mélange de 1/3 H_2O_2 (Fulka), 1/3 H_2O (eau pure MiliQ), 1/3 H_2SO_4 (95%, Prolabo) pendant une heure. Cette étape permet de supprimer les impuretés qui peuvent se trouver sur le tube. Nous les plongeons ensuite dans une solution de 50 ml de toluène (Aldrich) et 10 μl de dichlorodimethylsilane (99.5% , Fulka) pendant environ 15 minutes. Les groupes SiOH qui sont présents à la surface du verre peut réagir avec les groupes -Cl du silane (figure 1.9). Les groupes méthyle se retrouvent alors à la surface du verre, ce qui lui confère un caractère hydrophobe [19].

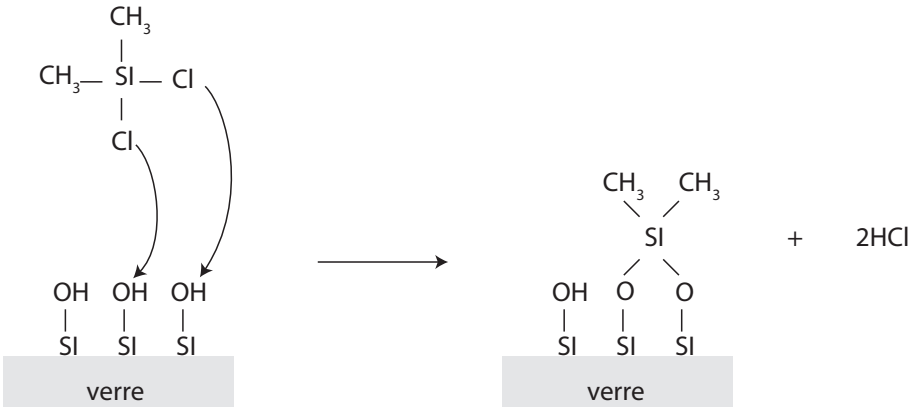


Fig. 1.9- Réaction entre le dichlorodiméthylsilane et la surface de verre. Ce sont les groupements méthyle qui donnent le caractère hydrophobe à la surface.

Pour obtenir le même angle de contact dans chaque tube, il a fallu faire varier le temps de réaction dans la solution de dichlorodimethylsilane. Plusieurs essais ont été nécessaires afin d'obtenir l'angle de 110°, qui semble être l'angle de contact maximum que nous pouvons obtenir avec ce réactif.

1.2.1.2 Angles de contact

Pour déterminer les angles de contact, nous mettons l'extrémité des tubes en contact avec un bain d'eau, nous mesurons la différence de hauteur H entre le liquide dans le bain et le liquide dans le tube (figure 1.10) et utilisons la loi de Jurin : $H = \frac{2\gamma cos\theta_e}{\rho g r_t}$. L'angle θ_e mesuré par cette technique est l'angle d'équilibre du ménisque.

Nous mesurons l'hystérésis des angles de contact en mesurant le poids de la plus grande

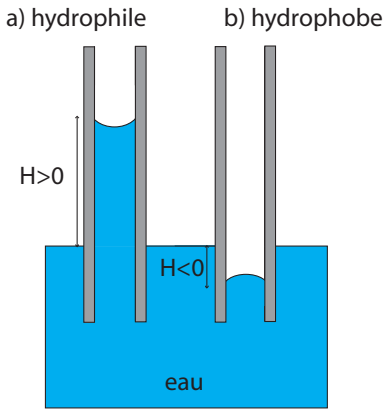


Fig. 1.10- Hauteur de liquide dans les tubes capillaires hydrophiles ou hydrophobes

colonne de liquide que peut supporter le ménisque. Pour cela, nous remplissons petit à petit un tube capillaire vertical avec de l'eau et notons le volume auquel la colonne de liquide se détache [20]. Nous comparons la pression hydrostatique $\rho g h$ à la différence de tension de surface $\frac{2\gamma}{r_t}(\cos\theta^r - \cos\theta^a)$, avec θ^r l'angle de reculée du ménisque et θ^a l'angle d'avancée (figure 1.11). Cela donne pour les tubes hydrophiles $\cos\theta^r - \cos\theta^a \simeq 0,3$ et pour les tubes hydrophobes $\cos\theta^r - \cos\theta^a \simeq 1,8$.

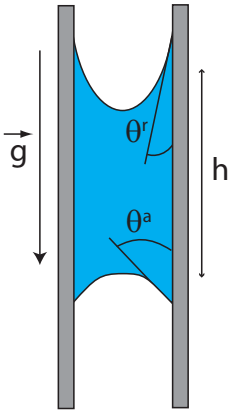


Fig. 1.11- Dans un tube vertical les deux angles de contact aux deux interfaces hautes et basses ne sont pas les mêmes. La figure illustre ce point pour une surface hydrophile. Dans le cas hydrophobe, les courbure sont inversées, l'angle d'avancée étant toujours plus grand que l'angle de reculée.

Nous pouvons être surpris par la grande valeur obtenue dans le cas hydrophobe, puisque 1,8 est proche de la valeur maximale pouvant être mesurée, à savoir 2. Johnson et Dettre [21] ont en effet montré que des rugosités faibles peuvent engendrer de grandes valeurs d'hystérésis

(comme sur la figure 1.12).

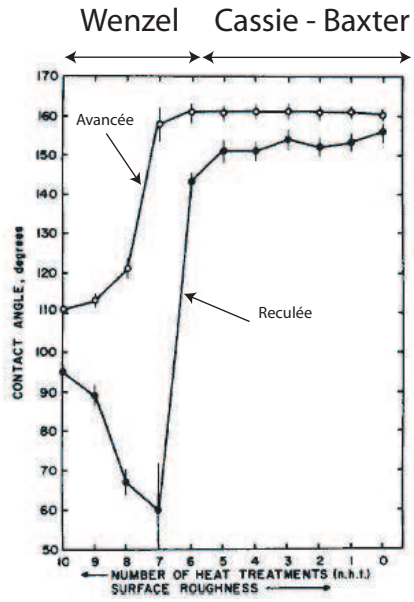


Fig. 1.12- Valeurs que peut prendre l'angle de contact en avancée et en reculée selon la rugosité du substrat (tiré de [21], pour une goutte d'eau sur des cires).

Les auteurs expliquent que dans la zone de grande hystérésis, la ligne de contact est piégée dans la rugosité et il lui est difficile de se déplacer (état « Wenzel » représenté sur la figure 1.13 a). L'hystérésis presque constante correspond à l'état où de l'air est emprisonné sous le liquide dans la rugosité (état « Cassie-Baxter » , figure 1.13 b), le liquide peut glisser sur la surface et la ligne de contact se déplace donc plus facilement.

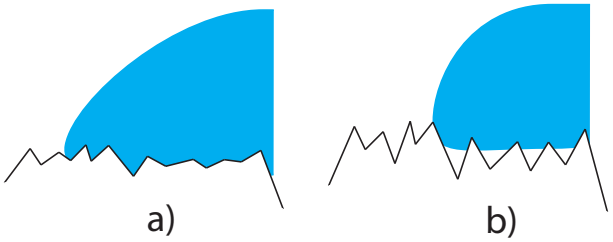


Fig. 1.13- a) Ligne de contact sur une faible rugosité, elle est bloquée dans la rugosité, l'hystérésis est grand, c'est l'état état Wenzel. b) État Cassie-Baxter : de l'air est piégé sous la goutte car la rugosité est trop grande pour que le liquide entre dans toute les aspérités. L'hystérésis est alors petit, puisque la ligne de contact peut glisser sur le substrat.

1.2.2 Liquides utilisés

Nous avons utilisé deux liquides pour faire nos gouttes : de l'eau ultra pure MilliQ dont la masse volumique ρ est 10^3 kg/m^3, la viscosité dynamique η de 1 mPa.s et la tension de surface γ de 72 mN/m. Nous avons de plus utilisé un mélange de 2/3 d'eau ultra pure et de 1/3 de glycérol (en masse) dont la masse volumique est $1,1.10^3$ kg/m^3, la viscosité 2,4 mPa.s et la tension de surface 60 mN/m.

1.3 Observations : les différents régimes d'imprégnation

Nous présentons à présent les différents régimes d'imprégnation du liquide dans le tube lors de l'impact d'une goutte d'eau. Nous avons fait varier la vitesse d'impact v_i et le rayon du tube r_t, pour chacun des deux états de surface.

1.3.1 Cas non mouillant

Dans le cas de l'imprégnation classique [15] d'un tube capillaire mis en contact avec un réservoir infini de liquide (figure 1.10), le liquide non mouillant ne peut pénétrer dans le tube. Nous allons voir si l'apport d'énergie cinétique au liquide peut permettre de forcer l'entrée dans le tube. Nous distinguons trois régimes caractéristiques présentés sur la figure 1.14.

Sur la figure 1.14 a), l'impact est fait à faible vitesse, sur un tube dont le rayon est petit. Nous observons que le liquide ne pénètre pas dans le tube et que la goutte forme une calotte sphérique sur la surface horizontale. Nous appelons cela le régime de non-imprégnation (NI).

Sur la figure 1.14 b), le rayon du tube est plus grand et la vitesse d'impact reste la même. Dans ce cas, une partie de la goutte pénètre dans le tube alors que le reste s'étale à l'extérieur. Á la fin de l'expérience, la goutte n'est que partiellement entrée dans le tube, sous la forme d'une colonne de liquide qui reste connectée à la goutte restant à l'extérieur. Cette situation est appelée imprégnation limitée (IL).

Sur la figure 1.14 c), à la fois le rayon du tube et la vitesse d'impact sont plus élevés. Nous constatons que le liquide qui entre dans le tube se déconnecte du liquide qui s'étale à l'extérieur. Un index de liquide se retrouve alors isolé dans le tube, alors que la goutte poursuit sa dynamique en surface. Finalement, du liquide se retrouve piégé, alors que le reste du liquide à l'extérieur forme une calotte sphérique posée sur la surface horizontale. Nous appelons ce régime d'étalement régime de formation d'index (FI).

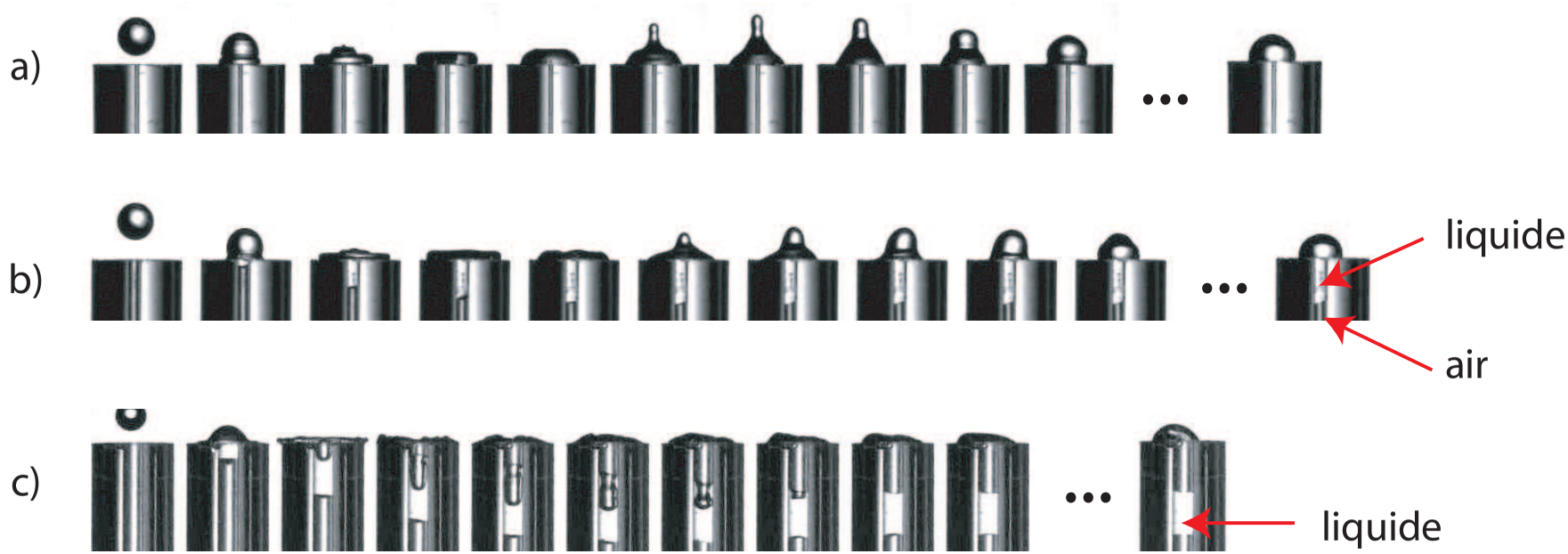


Fig. 1.14- Pour toutes les séries : 1/600 s entre deux images, la dernière image est à 300 s après le début de l'expérience. a) r_t= 0,10 mm, v_i=0,98 m/s. Il n'y a pas de liquide dans le tube (NI). b) r_t= 0,30 mm, v_i=0,98 m/s. Une colonne de liquide reste connectée au liquide à l'extérieur (IL). c) r_t= 0,50 mm, v_i=1,8 m/s. Un index de liquide se détache de la partie haute de la goutte (FI).

1.3.2 Cas mouillant

Nous nous intéressons à présent au cas mouillant. Dans le cadre d'une imprégnation classique d'eau dans un tube hydrophile, le liquide s'étale sur toutes les surfaces et monte dans le tube [15]. Notre expérience propose de regarder ce qui se passe pour un volume fini de liquide auquel nous imposons une vitesse initiale. Nous voudrions savoir si le tube aspire tout le liquide. Ici encore, nous distingons trois régimes caractéristiques présentés sur la figure 1.15.

Sur la figure 1.15 a), pour le plus petit rayon de tube et une faible vitesse d'impact, la goutte se vide totalement dans le tube. Nous appelons ce régime, régime d'imprégnation totale (IT). Nous retrouvons le comportement sans vitesse initiale prédit par l'imprégnation classique. Notons qu'une petite goutte de liquide est éjectée après l'impact, ce phénomène est dû à l'énergie cinétique de la goutte lors de sa rétractation. Le liquide qui s'était étalé revient, se soulève et peut libérer une goutte. Ce phénomène a été observé sur les surfaces hydrophobes, c'est à dire lorsque le diamètre maximal a été atteint, que l'énergie de surface a atteint son maximum et qu'elle est retransformée en énergie cinétique. Dans notre cas, si la goutte se rétracte, c'est à cause du rebond de la ligne de contact sur le rebord du tube, mais les conséquences sont les mêmes, à savoir l'éjection d'une goutte satellite.

Sur la figure 1.15 b), le rayon est plus grand et la vitesse aussi. Un index se détache et descend dans le tube, pendant que le reste de la goutte s'étale à la surface, rencontre les parois extérieures, rebondit et revient vers l'entrée du trou. Du liquide remplit à nouveau le tube, en enfermant l'air entré juste après l'index. C'est le régime de formation d'une bulle (B). Dans ce cas, comme dans le précédent, tout le liquide de la goutte se vide dans le tube, cette fois-ci en deux morceaux séparés par une bulle d'air.

Sur la figure 1.15 c), pour le plus grand rayon et la plus grande vitesse, la goutte est sectionnée en deux parties. Une partie s'étale sur la surface horizontale en haut du tube, pendant qu'un index se détache et descend dans le tube. C'est, comme dans le cas hydrophobe, le régime de formation d'index (FI). Cependant, à la différence de l'index hydrophobe, l'index hydrophile se retrouve au bas du tube car son poids l'a fait descendre.



Fig. 1.15- Pour toutes les séries, il y a 1/600 s entre deux images. a) r_t= 0,10 mm, v_i=0,15 m/s. La goutte remplit le tube, l'imprégnation est totale et il n'y a pas d'index (IT). b) r_t= 0,22 mm, v_i=1,00 m/s. Un index est formé, mais le liquide qui s'étalait sur le haut du tube revient et se vide dans le tube, piégeant une bulle (B). c) r_t= 0,50 mm, v_i=1,30 m/s. Un index de liquide déconnecté du reste de la goutte est formé (FI).

cas particulier du régime bulle (B) Nous pouvons remarquer que le régime bulle (B) est un cas particulier du régime de formation d'index (FI). Un index est formé dans un premier temps, de l'air entre à sa suite dans le tube, le temps que le reste de la goutte s'étale et revienne vers le trou. La bulle d'air est refermée par ce liquide qui descend à son tour dans le tube. Si les parois horizontales du tube étaient infinies, il n'y aurait pas de retour du liquide et donc pas de formation de bulle d'air, mais seulement un index. Ce régime est donc propre aux conditions limites de notre expérience.

Dans les deux cas de mouillabilité, les petites vitesses et / ou les petits rayons de tube donnent des comportements semblables à ce qui se passe dans le cas d'une imprégnation classique (volume infini et vitesse initiale nulle). De même, dans les deux cas, les grandes vitesses et / ou larges tubes conduisent à une séparation de la goutte en deux parties : une qui réussit à entrer alors que le reste s'étale à l'extérieur sur les parois horizontales.

Nous constatons donc que l'existence d'une vitesse d'impact initiale a des effets antagonistes selon la mouillabilité du substrat. Elle permet, dans le cas hydrophobe, de forcer une partie de la goutte à entrer dans le tube, alors que dans le cas hydrophile, au contraire, la vitesse initiale conduit à une limitation du volume entrant dans le tube.

1.4 Résultats et discussion

Nous nous intéressons dans un premier temps à la quantité de liquide contenue dans ces index, puis ensuite aux vitesses-seuil délimitant les comportements décrits plus haut, enfin la profondeur de pénétration du liquide sera étudiée.

1.4.1 Volume d'un index

Lors de l'impact sur des tubes de mouillabilitées différentes, le régime de formation d'index conduit une fraction Ω de la goutte à entrer dans le tube. Nous traçons sur la figure 1.16 le volume Ω en fonction des rayons des tubes et reportons, pour comparer, dans le cas hydrophile le volume entré dans le cas de l'imprégnation totale.

Nous constatons plusieurs choses sur la figure 1.16. Tout d'abord, plus le tube est grand, plus le volume de l'index est grand. De plus, pour une taille de tube donnée, le volume d'index est le même quelle que soit la vitesse d'impact. Ensuite, la viscosité du fluide ne semble pas jouer non plus sur la valeur du volume, puisque les points correspondant aux expériences faites avec un mélange eau - glycerol (en rouge) sur les figures sont confondus avec les points représentant les expériences faites avec l'eau (en bleu). Ces observations sont valables à la fois pour les tubes hydrophobes et hydrophiles et le volume des index semble suivre la même tendance dans les deux cas.

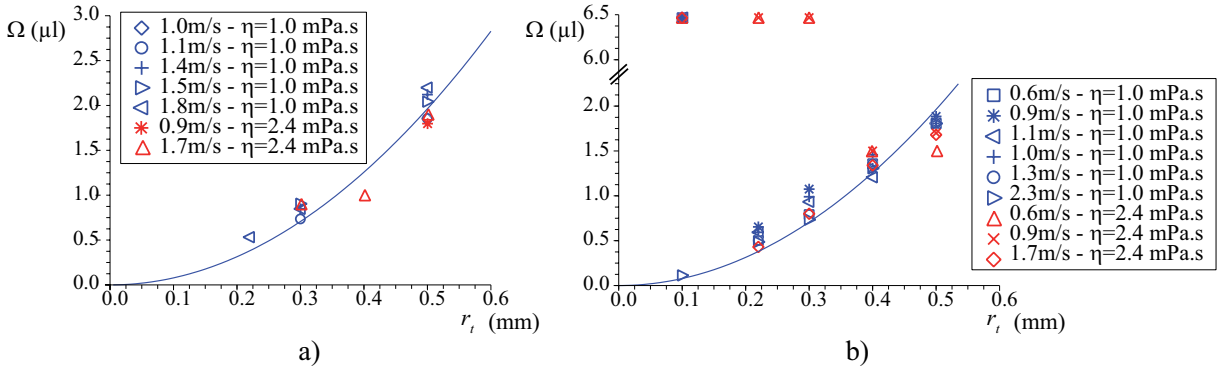


Fig. 1.16- Volume de liquide contenu dans l'index en fonction du rayon du tube. Les points bleus représentent des gouttes d'eau et les points rouges le mélange eau-glycérol. La ligne représente le volume $\Omega = \pi r_t^2 \times 2r_g$. a) cas hydrophobe et b) cas hydrophile.

Dans le cas du régime bulle, nous rappelons que l'entrée d'air est due au manque de liquide à la surface et que la fermeture de la bulle n'intervient que lorsque du liquide provenant des mouvements extérieurs revient remplir le tube. Nous avons donc dans le tube d'abord un index, puis une bulle et enfin le reste du liquide. Les index des régimes (B) et (FI) ont été tracés sur la même figure 1.16b), ils ont le même volume que les index seuls.

1.4.1.1 Interprétation géométrique

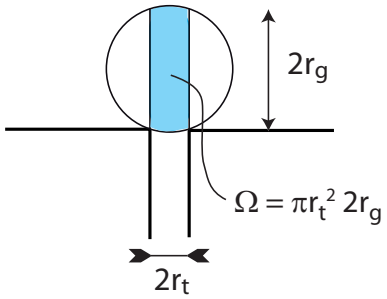


Fig. 1.17- Volume de liquide juste au dessus du trou.

Nous comparons les volumes mesurés au volume d'un cylindre de rayon r_t et de hauteur $2r_g$ qui correspond au volume de liquide directement au dessus du trou lorsque la goutte tombe (figure 1.17). Ce modèle géométrique décrit bien nos données (figure 1.16), sans paramètre ajustable. Lors de l'impact, la goutte est coupée en deux, la partie qui se trouve au dessus du trou entre alors que la partie qui se trouve au dessus du rebord du tube s'étale. Nous

établirons dans la suite quels sont les ingrédients physiques qui conduisent à ces ruptures de gouttes.

1.4.2 Seuils comportementaux

Nous représentons ces régimes selon la vitesse d'impact et le rayon du tube sur la figure 1.18 pour les hydrophobes et sur la figure 1.26 pour les hydrophiles. Nous cherchons ici à déterminer les limites des différents régimes observés.

1.4.2.1 Vitesses-seuil dans le cas hydrophobe

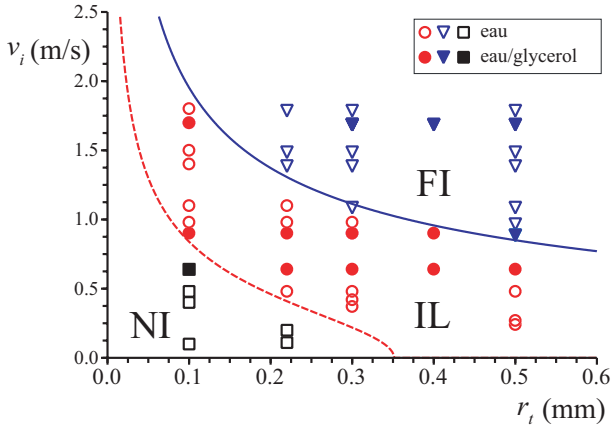


Fig. 1.18- Diagramme de phase dans le cas hydrophobe des différents régimes observés pour l'eau (symboles ouverts) et un mélange d'eau-glycérol (symboles pleins). Les carrés correspondent au régime de non imprégnation (Figure 1.14 a), les cercles au régime d'imprégnation limitée (Figure 1.14 b) et les triangles à la formation d'index (Figure 1.14 c). La ligne continue correspond à la vitesse-seuil v_2^{nm} (Equation 1.5) et la ligne pointillée à v_1^{nm} (Equation 1.4).

Selon les vitesses d'impact et diamètres de tubes, deux vitesses-seuil sont calculées pour donner les limites entre les régimes : celle séparant le régime de non imprégnation (NI) et d'imprégnation limitée (IL), elle est notée v_1^{nm}. Celle séparant l'imprégnation limitée (IL) de la formation d'index (FI) est notée v_2^{nm} (figure 1.19).

Nous nous intéressons à présent aux ingrédients physiques mis en jeu lors de l'impact. L'inertie et la gravité tendent à faire pénétrer le liquide dans le tube, alors que la viscosité et la tension de surface s'y opposent.

Nous comparons l'inertie et la gravité pour déterminer si l'une est prédominante devant l'autre dans la gamme de rayons et de vitesses étudiés. Le nombre de Froude est, pour un

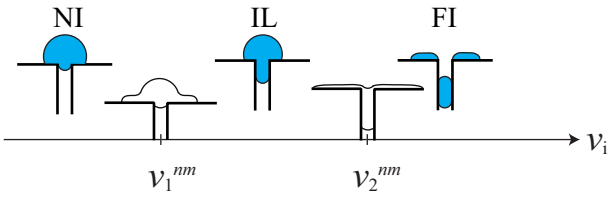


Fig. 1.19- Au delà de v_1^{nm} du liquide pénètre dans le tube. Au delà de v_2^{nm} un index se détache du reste de la goutte.

rayon de tube de l'ordre du millimètre et pour une vitesse d'impact de l'ordre de 1 m/s $Fr = \frac{v_i}{\sqrt{gr_g}} \simeq 10$. Nous pouvons donc négliger le poids.

De même, nous comparons les effets capillaires et visqueux en évaluant le nombre capillaire. $Ca = \frac{\eta v_i r_g}{\gamma r_t}$, calculé comme le rapport de la force visqueuse appliquée sur la longueur d'un index $8\pi\eta v_i r_g$ avec la force de tension de surface dans le tube $2\pi\gamma r_t$. La valeur de Ca est $\simeq 10^{-2}$, ce sont donc les forces de tension de surface qui dominent.

Les deux contributions majeures proviennent donc de l'inertie et de la tension de surface. La vitesse v_1^{nm} permettant une imprégnation limitée du tube est déterminée par l'écoulement de Bernoulli sur une ligne de courant (ligne rouge sur la figure 1.20). Au point A sur la figure 1.20 a), la pression dynamique $\frac{1}{2}\rho v_i^2$ et la pression de Laplace de la goutte $\frac{2\gamma}{r_g}$ poussent le liquide vers le bas. Au point B sur la même figure, la pression de Laplace dans le tube $-\frac{2\gamma cos\theta}{r_t}$ (voir l'annexe A) tend à faire remonter le liquide. Nous écrivons cette équation au seuil entre les deux régimes : la vitesse au point B est donc nulle alors que l'angle de contact vaut θ_e. Ainsi,

$$\frac{1}{2}\rho\,(v_1^{nm})^2 + \frac{2\gamma}{r_g} = -\frac{2\gamma cos\theta_e}{r_t} \tag{1.4}$$

La vitesse v_1^{nm} ainsi calculée est tracée en pointillés rouges sur la figure 1.18. Elle délimite très bien nos données, sans paramètre ajustable.

Nous devons faire remarquer que le terme de pression provenant de la goutte $\frac{2\gamma}{r_g}$ n'induit qu'une correction aux faibles vitesses. Ce terme donne un diamètre coupure au-dessus duquel on ne trouvera jamais de régime NI (figure 1.18). En effet, pour des tubes plus grands, le liquide peut entrer dans le tube, même à vitesse nulle. Cela a été montré par les travaux de Marmur [22] dans lesquels une goutte est mise en contact (sans vitesse) avec un tube capillaire de mouillabilité connue. Les auteurs ont observé qu'une partie de la goutte entre alors spontanément dans le tube, même si ce dernier est hydrophobe. Le gradient de pression vient ici de la dépression exercée par le ménisque du liquide dans le tube et de la surpression exercée par la courbure de la goutte. Si cette dernière est la plus grande, elle peut obliger le

liquide à pénétrer dans un tube en dépit des conditions de mouillage hydrophobe.

Nous pouvons calculer la valeur de r_t à la coupure : $\frac{-2\gamma cos\theta_e}{r_t^*} = \frac{2\gamma}{r_g}$. On obtient $r_t^* \simeq 0.43$ mm, qui est bien compris entre 0,22 mm et 0,5 mm les rayons de tube entre lesquels nous obtenons expérimentalement la coupure.

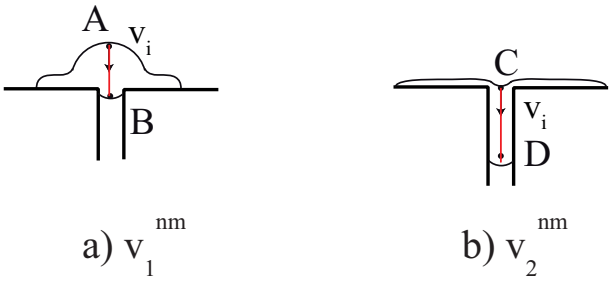


Fig. 1.20- a) Premier seuil : le liquide entre dans le tube si la pression en A est plus grande que la pression en B. b) Deuxième seuil : la seconde interface entre dans le tube et permet la formation d'un index si la pression en C est plus grande que la pression en D

La vitesse v_2^{nm} est elle aussi déterminée par un équilibre entre inertie et tension de surface. Au point C de la figure 1.20 b) nous retrouvons la pression dynamique $\frac{1}{2}\rho v_i^2$ et la tension de surface devient de l'ordre de $-\frac{2\gamma}{r_t}$. Au point D, la vitesse est nulle (au seuil de formation d'un index) et nous avons comme en B $-\frac{2\gamma cos\theta}{r_t}$.

$$\frac{1}{2}\rho v_i^2 - \frac{2\gamma}{r_t} = -\frac{2\gamma cos\theta_e}{r_t} \tag{1.5}$$

Les vitesses-seuils sont tracées figure 1.18. Ici encore, elles décrivent très bien nos données sans paramètre ajustable. Nous établissons donc la validité de l'approche inertielle utilisée ici par les équations 1.4 et 1.5.

1.4.2.2 Le régime intermédiaire IL

Les seuils que nous venons de calculer donnent les limites entre les différents régimes lors de l'entrée du liquide dans le tube, mais ne donnent pas d'indication sur l'état final de l'imprégnation. Dans le cas de non imprégnation (NI), si le liquide n'est pas entré dans le tube au moment de l'impact, il n'y entrera pas par la suite, donc l'état final est le même qu'au moment de l'impact. Pour le régime de formation d'index (FI), une fois que le l'index est déconnecté, il ne rentre pas plus de liquide dans le tube, seule la position de l'index dans le tube change entre l'impact et l'état final. Pour le régime intermédiaire par contre, le liquide prend une forme de « champignon » dont le pied est la colonne de liquide dans le tube et le chapeau est le liquide à l'extérieur qui prend une forme de calotte sphérique (figure 1.21). Le

couplage entre les écoulements de surface et de volume pourrait donc induire un mouvement de liquide dans le tube.



Fig. 1.21- Etat final du régime IL.

Pour étudier ce point, nous traçons la position de l'interface de liquide dans le tube en fonction du temps (figure 1.22 a)). Nous observons une oscillation de petite amplitude (∼0,1 mm) et de période d'environs 50 ms, avant l'arrêt. Cette oscillation est-elle la signature d'un mouvement de liquide dans le tube ?

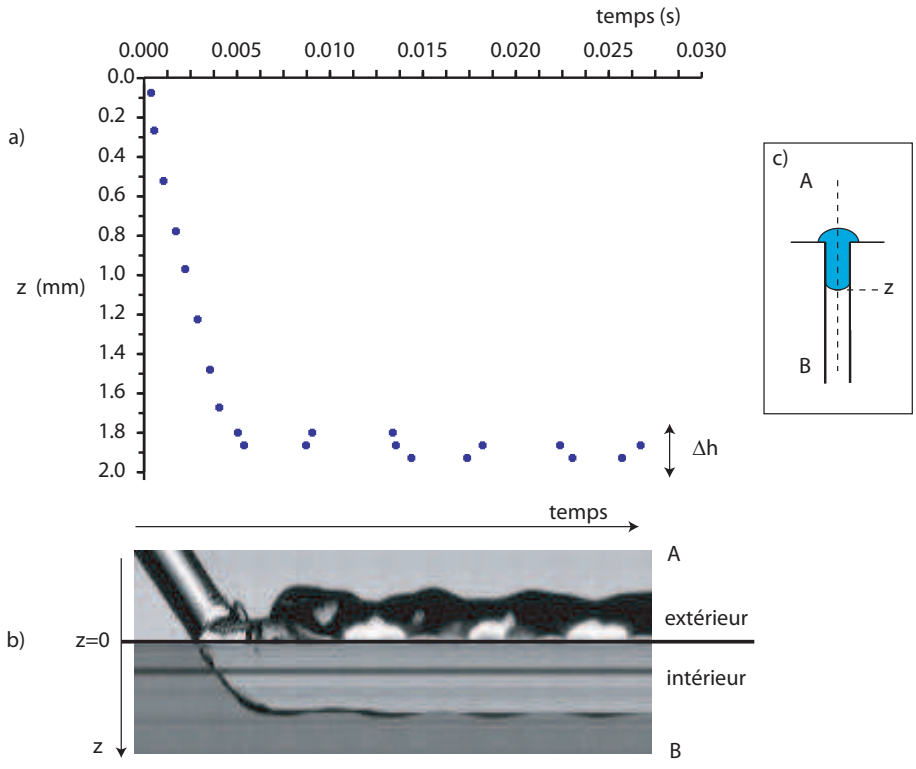


Fig. 1.22- a) Position de l'interface dans le tube pour un capillaire de 0,5 mm de rayon et pour une vitesse d'impact de 0.5 m/s. Les oscillations sont de l'ordre du dixième de mm. b) image spatiotemporelle de l'impact, prise sur la ligne pointillée AB du schéma c).

Sur l'image spatio-temporelle b) de la figure 1.22, nous pouvons voir que les oscillations sont en phase avec l'oscillation de la partie de la goutte restée en surface. En effet, après l'impact, le liquide s'étale sur la surface en même temps que le liquide au dessus du trou entre dans le tube. Une fois que le diamètre maximum d'étalement en surface est atteint, la couronne de liquide se rétracte, la goutte se regonfle et entraine le liquide vers le haut. La goutte se réétale ensuite, poussant à nouveau le liquide vers le fond. Nous pouvons estimer la hauteur de ménisque h selon l'angle de contact représenté sur la figure 1.23 a).

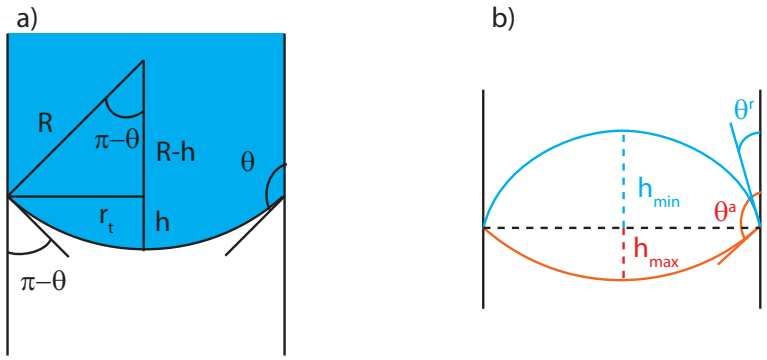


Fig. 1.23- a)Hauteur h du ménisque de rayon de courbure R dans le tube pour un angle de contact non mouillant θ. b) Le ménisque bleu présente la forme de l'interface pour un angle de reculée θ^r et le rouge pour un angle d'avancée θ^a.

La relation entre h, r_t et θ est donnée par les équations suivantes :

$$\begin{aligned} R &= \frac{r_t}{sin\,(\pi-\theta)} \\ (R-h)^2 &= R^2 - r_t^2 \end{aligned} \tag{1.6}$$

Comme $\sin(\pi-\theta) = \sin\theta$, il vient :

$$h = \frac{r_t}{sin\theta} - \sqrt{\left(\frac{r_t}{sin\theta}\right)^2 - r_t^2} \tag{1.7}$$

Comme $0^\circ < \theta < 180^\circ$, alors $\sin\theta > 0$:

$$h = \frac{r_t}{sin\theta}\left(1 - \sqrt{1 - sin^2\theta}\right) \tag{1.8}$$

Finalement :

$$h = \frac{r_t}{\sqrt{1 - cos^2\theta}}\left(1 - |cos\theta|\right) \tag{1.9}$$

L'amplitude de l'oscillation du ménisque est donnée par $\Delta h = h_{max} + h_{min}$, avec h_{min} et h_{max} les hauteurs minimales et maximales des calottes sphériques des ménisques calculées avec

les angles de reculée et d'avancée du ménisque, représentés qur la figure 1.23 b).En utilisant les mesures d'hystérésis d'angle de contact présentés dans la sections 1.2.1.2 qui donnaient $\cos\theta^r - \cos\theta^a = 1,8$, nous pouvons exprimer la différence Δh en fonction de $cos\theta^r$ et la traçons sur la figure 1.24. Pour toutes les valeurs de θ^r possibles, l'amplitude des oscillations est supérieure à 0,17 mm, ce qui est inférieur à la valeur minimale de Δh mesurée comme sur la figure 1.22. La colonne de liquide ne se déplace pas dans le tube : seule la courbure du ménisque qui change, puisque la ligne de contact est ancrée et ne se déplace pas.

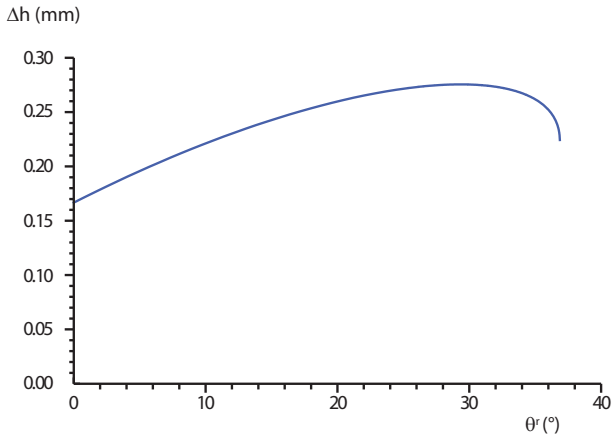


Fig. 1.24- Valeur de Δh en fonction de l'angle de reculée θ^r. La valeur de Δh est toujours supérieure à 0,16 mm et donc supérieure à l'amplitude des oscillations observées qui sont de l'ordre de 0,1 mm.

Lors de la rétraction du liquide à l'extérieur après l'impact, si l'angle de contact restait supérieur à 90° à l'intérieur du tube, nous pourrions observer une sortie de la colonne de liquide. Or à cause de l'hystérésis de l'angle de contact, le ménisque passe d'une forme convexe à une forme concave, inversant ainsi le sens de la force de tension de surface. Le mouvement ne peut donc pas être créé et le liquide ne peut plus bouger.

L'impact d'une goutte de liquide sur un poreux ne présentant pas d'hystérésis d'angle de contact a été étudié numériquement dans une géométrie de deux plaques horizontales dont celle du haut est percée par Hsu et Ashgriz [4]. Sur la figure 1.25 est présentée la simulation d'un impact sur un pore dont l'angle de contact est de 110°. Une partie du liquide s'étale à la surface, pendant que le reste entre dans le pore. Les deux parties de la goutte restent connectées. Lorsque le diamètre maximal d'étalement à l'extérieur est atteint, la goutte se rétracte, le liquide qui était à l'intérieur ressort de la porosité et la goutte prend la forme d'une sphère (comme sur la figure 1.25 h). Dans ces simulations, l'angle de contact est constant, la ligne de contact ne s'ancre pas sur la surface, le liquide ressort donc du pore lorsque la goutte se rétracte. Cela ne peut se produire dans notre cas.

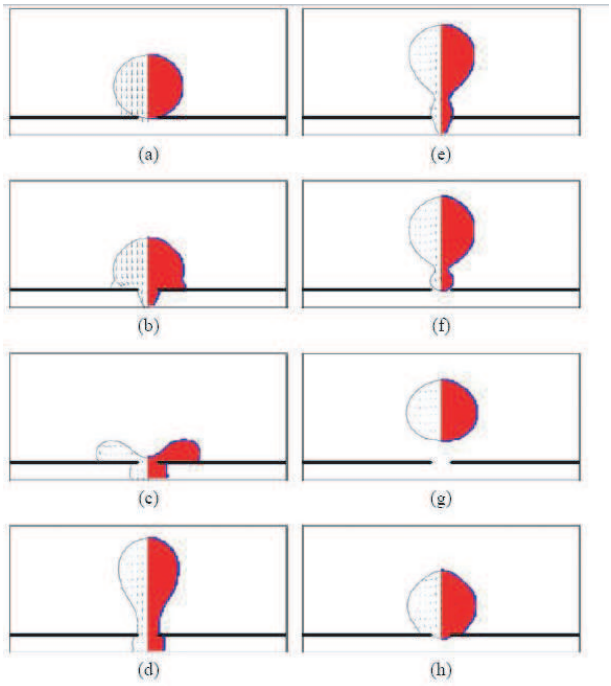


Fig. 1.25- Simulation numérique tirée de [4]. La vitesse d'impact de la goutte est de 0.8 m/s, son diamètre est de 2 mm. La distance entre les plaques est de 0,5 mm, tout comme le diamètre du trou. Les images a) à h) correspondent aux temps 0,0 ms, 0,5 ms, 3,0 ms, 12,0 ms, 15,0 ms, 16,0 ms, 25,0 ms et 50,0 ms. La goutte impacte sur la surface, une partie du liquide entre dans la porosité. Lorsque la goutte se rétracte, le liquide ressort du pore et la goutte est finalement posée sur la surface percée. Dans ce cas, il n'y a pas de liquide piégé dans le pore à l'état final.

C'est donc bien l'hystérésis de l'angle de contact qui bloque la ligne de contact dans le tube aux premiers instants de l'impact et l'empêche de se déplacer par la suite. Ceci permet à la goutte de garder sa forme de champignon à l'état final.

Lorsqu'une goutte tombe sur une surface hydrophobe, l'inertie est le moteur de l'entrée du liquide dans le tube, alors que la tension de surface s'y oppose. C'est l'équilibre entre ces deux effets qui impose les différents régimes d'imprégnation observés. Par ailleurs, nous avons montré que le volume de liquide entré Ω compris entre 0 et πr_t^2, est défini par les conditions imposées par l'inertie et la tension de surface au moment de l'impact. En effet, à cause de l'hystérésis d'angle de contact, ce volume ne varie plus jusqu'à ce que l'état final soit atteint.

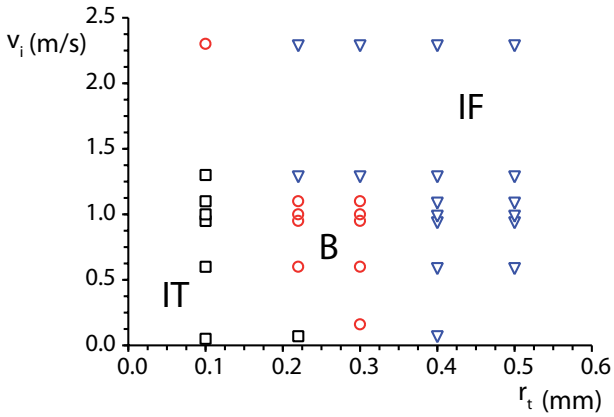


Fig. 1.26- Diagramme de phase des différents régimes observés pour des gouttes d'eau et de glycérol impactant sur un pore hydrophile. Les carrés correspondent à l'imprégnation totale (IT) de la goutte, figure 1.15 a), les cercles à la formation d'un index suivie par la formation d'une bulle (B), figure 1.15 b, les triangles représentent la formation d'un index (FI), figure 1.15 c).

1.4.2.3 vitesses-seuils dans le cas hydrophile

Sur la figure 1.26, est représenté le diagramme de phase des différents régimes d'impact dans le cas hydrophile. Nous rappelons (1.3.2) que le régime de formation d'une bulle (B) est un cas particulier du régime de formation d'index. Nous calculons dans un premier temps la vitesse-seuil v^m (figure 1.27), entre les régimes d'imprégnation totale (IT) d'une part et les régimes (B) et (FI) d'autre part. Nous décrirons ensuite les conditions de formation d'une bulle.

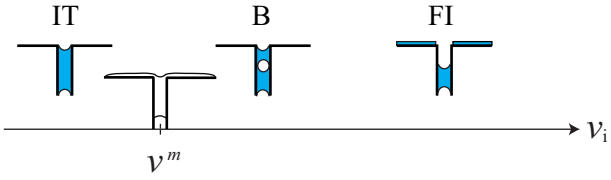


Fig. 1.27- Dans le cas mouillant, au-delà de v^m un index de liquide est formé.

Dans le cas du tube hydrophile, comme le liquide s'étale sur toutes les surfaces, le tube se remplit de liquide lorsqu'il est mis en contact avec un réservoir de liquide, que celui-ci soit fini, comme dans nos expériences où infini comme dans les expériences effectuées par Washburn [16]. Voyons à présent ce qui limite l'imbibition du tube et donc la formation d'un index. Pour celà, nous partons du problème d'imbibition classique.

Lorsque l'imprégnation est de type inertiel, comme décrite par l'équation 1.3, la viscosité

ne ralentit pas encore le liquide, ce qui donne une vitesse du liquide constante dans toute la section du capillaire, tant que l'écoulement de Poiseuille n'est pas établi dans le tube.

Ce régime disparaît lorsque la vitesse de montée de liquide dans le tube est donnée par l'équilibre entre la force de tension de surface et les forces visqueuses, c'est à dire lorsque le régime de Washburn est atteint et que la position de l'interface au cours du temps est donnée par l'équation 1.2 $z = \sqrt{\frac{\gamma r_t cos\theta}{2\eta}t}$.

Dans notre problème, on peut penser que si la vitesse d'impact est inférieure à la vitesse inertielle donnée par l'équation 1.3, le liquide qui entre dans le tube atteint cette vitesse sous l'action des forces de tension de surface. Par contre, si la vitesse d'impact est plus grande que cette vitesse de Washburn, le liquide se déplace à la vitesse v_i jusqu'à ce que la viscosité le freine. Nous évaluons le temps τ auquel le régime inertiel rejoint le régime de Washburn :

$$\left(\frac{2\gamma cos\theta}{\rho r_t}\right)^{\frac{1}{2}}\tau = \left(\frac{\gamma r_t cos\theta}{2\eta}\tau\right)^{\frac{1}{2}} \tag{1.10}$$

$$\tau = \frac{\rho r_t^2}{4\eta} \tag{1.11}$$

De la même manière, nous pouvons déterminer le temps nécessaire pour que les forces visqueuses freinent le liquide lancé initialement à la vitesse d'impact v_i. Pour cela, nous cherchons la distance à laquelle l'inertie du liquide est totalement dissipée par la viscosité en rappelant le calcul de Washburn :

$$\frac{1}{2}\rho v_i^2 \pi r_t^2 = 8\pi\eta z\dot{z} \tag{1.12}$$

D'où

$$z = \sqrt{\frac{\rho v_i^2 r_t^2}{8\eta}t} \tag{1.13}$$

Si cette distance est inférieure à un diamètre de goutte $2r_g$, alors aucun index ne peut être formé, la goutte n'est pas fragmentée. Si cette distance est supérieure à $2r_g$, un index entre dans le tube alors que les forces visqueuses ne se sont pas encore développées et un index est formé. Le temps nécessaire au développement des forces visqueuses est donc :

$$\tau_v = \frac{32\eta r_g^2}{\rho v_i^2 r_t^2} \tag{1.14}$$

Durant cette période, en haut du tube, la goutte est en train de s'étaler à la vitesse d'impact. Le temps d'entrée τ_e qu'il faut pour que l'interface haute atteigne l'entrée du tube (comme sur la figure 1.27 à la vitesse v^m) vaut $\tau_e = \frac{2r_g}{v_i}$.

Au seuil, τ_e est égal à τ_v. La vitesse-seuil de formation d'index est donc :

$$v^m = \frac{16\eta r_g}{\rho r_t^2} \tag{1.15}$$

Si la vitesse est plus grande que v^m, la viscosité ne se mettra en place qu'après que la goutte soit entrée d'un diamètre, le liquide se déplacera plus longtemps que τ_e à la vitesse v_i. Un index sera alors formé. Si la vitesse est plus petite que v_m, le liquide à l'intérieur est ralenti par la viscosité. Il ne se déconnecte alors pas du liquide qui s'étale à l'extérieur.

La figure 1.28 présente nos résultats de vitesse-seuil mesurée v_{mes}, comparées à la vitesse-seuil calculée par l'équation 1.15.

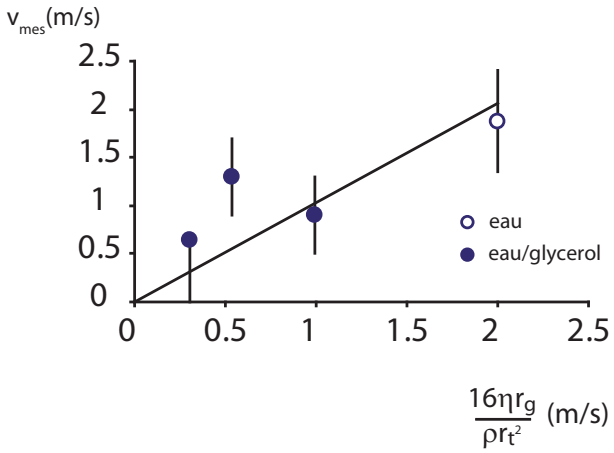


Fig. 1.28- vitesse-seuil mesurée v_{mes} en fonction de $\frac{16\eta r_g}{\rho r_t^2}$, pour différents rayons de tubes. L'eau est représentée par les symboles vides et le mélange eau-glycérol par les symboles pleins. La droite donne une pente 1.

La limite entre les régimes d'imprégnation totale (IT) et de formation d'index (B) et (FI) est donc due aux phénomènes ayant lieu aux premiers instants de l'impact (jusqu'à ce que $z = 2r_g$). La formation de la bulle se fait plus tard au cours du processus de rétraction, que nous décrivons maintenant.

1.4.2.4 Formation d'une bulle

La formation d'une bulle lors des impacts sur des surfaces planes (non percées) a été étudiée par Thoroddsen et al. [23]. Les auteurs montrent que lors de la rétractation de la goutte après son étalement dû à l'impact, une onde capillaire se déplace du bord de la goutte étalée vers le centre. Lorsque ces ondes se rencontrent au centre, elles peuvent capturer une bulle d'air, comme schématisé sur la figure 1.29.

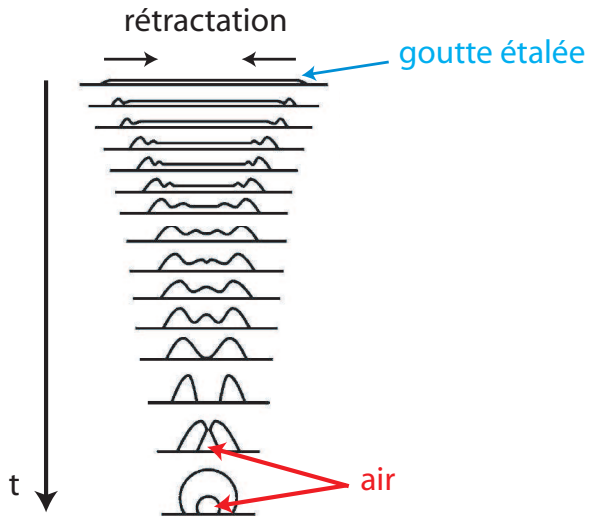


Fig. 1.29- Lors de la rétractation de la goutte, les ondes capillaires peuvent conduire à la capture d'une bulle d'air sous le liquide [23].

Dans nos expériences, la formation d'une bulle n'est pas liée au même phénomène. En effet, les bulles observées par Thoroddsen et al. sont de l'ordre de la dizaine de micromètres de diamètre, alors que nos bulles sont bien plus grosses, de l'ordre du millimètre.

L'apparition d'une bulle dans nos expériences est directement liée aux conditions de de notre expérience. En effet, après qu'un index est formé, le liquide qui s'étale sur la surface haute arrive aux bords du tube. Il rebondit sur les parois extérieures et revient remplir le tube. Nous avons utilisé plusieurs tailles de tubes et vérifié que le temps de fermeture de la bulle t_f est du même ordre de grandeur que le temps R_{ext}/v_i, comme présenté sur la figure 1.30. Les points au-dessus de la droite de pente 1 correspondent au cas où le liquide est ralenti par la viscosité. Lors de la rétractation pour les plus petites vitesses, le temps que met la bulle à se refermer est plus long.

Les bords du tube sont donc à l'origine de la formation d'une bulle, si nous avions utilisé des parois infinies, le liquide se serait étalé sur un diamètre plus grand, et la vitesse du bourlet se rétractant aurait alors été plus faible (il n'y aurait pas eu la composante de la vitesse due au rebond mais uniquement celle due à la tension de surface).

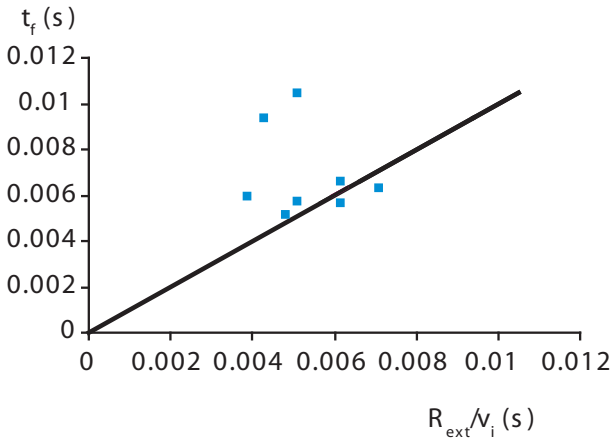


Fig. 1.30- Temps que met la bulle d'air à se refermer comparé à R_{ext}/v_i. La ligne noire est la droite de pente 1 (pour l'eau).

Nous avons vu que les régimes d'imprégnation totale (IT) et de formation d'index (B) et (FI) dans le cas hydrophile résultent d'un équilibre entre les forces inertielles et visqueuses, contrairement aux limites entre les régimes de non imprégnation (NI), d'imprégnation limitée (IL) d'une part et (IL) et formation d'index (FI) d'autre part pour les tubes hydrophobes, pour lesquels c'est la tension de surface qui empêche l'imprégnation. La formation d'un index de liquide dans les tubes est, pour les deux états de surface, due à la taille finie de la goutte. Cependant ce ne sont pas les mêmes ingrédients physiques qui pilotent le détachement, puisque la viscosité n'intervient que dans le cas hydrophile. De plus, les profondeurs atteintes par ces index sont différentes selon la mouillabilité. Nous allons à présent nous y intéresser.

1.4.3 Position du front de liquide

Selon la mouillabilité des tubes, la distance parcourue par le liquide n'est pas la même. En effet, pour les surfaces hydrophobes, l'interface, si elle peut entrer (dans les cas d'imprégnation limitée et de formation d'index), reste bloquée à une certaine profondeur dans le tube, alors que pour les surfaces hydrophiles, le liquide descend au fond du tube pour les différents régimes (imprégnation totale , formation de bulle et formation d'index).

1.4.3.1 Cas non mouillant

Le régime de formation d'index est, dans le cas hydrophobe, le régime qui permet de piéger un maximum de liquide dans le tube et c'est dans ce régime que le liquide pénètre le plus loin, à une distance au moins égale à $2r_g$, qui est la longueur d'un index.

La figure 1.31 représente la profondeur maximale atteinte par le liquide, pour les régimes

de formation d'index, pour deux tubes différents. Nous allons à présent chercher à déterminer cette profondeur.

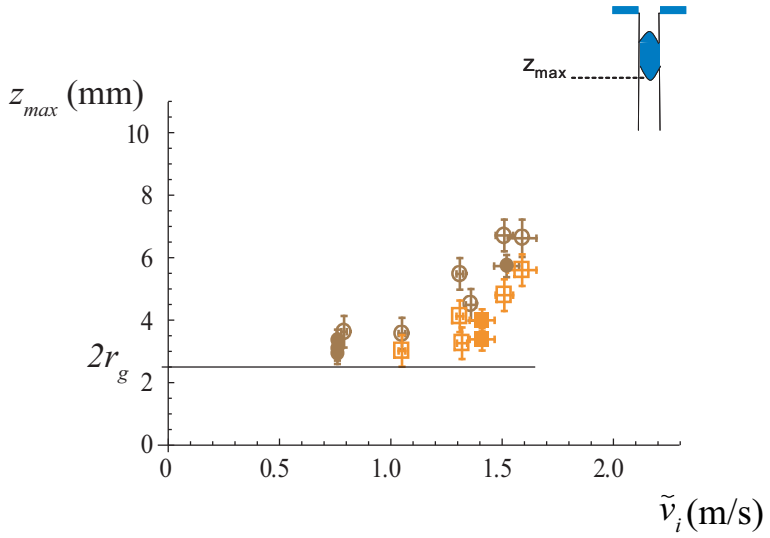


Fig. 1.31- Position finale de l'interface basse z_{max} en fonction de la vitesse d'entrée (définie plus loin), dans le cas d'une goutte d'eau (points vides) et d'une goutte d'eau - glycérol (points pleins).

a) Les forces mises en jeu : Notons z la position de l'interface au bas de la goutte (figure 1.32) et suivons son mouvement au cours du temps. Dans le cas de la formation d'un index, tant que seule la première interface est dans le tube (la colonne de liquide qui se trouve dans le tube est plus petite que $2r_g$), l'inertie domine le mouvement, comme nous l'avons vu dans la partie 1.4.2.3 et le liquide se déplace à la vitesse v_i. Cette situation est schématisée sur la figure 1.32. A partir du moment où la seconde interface entre dans le tube, les forces mises en jeu sont les suivantes :

- la force de tension de surface en bas de la colonne de liquide $F_{cap}(bas) = 2\pi r_t \gamma cos\theta_a$ (< 0)
- la force de tension de surface en haut de la colonne de liquide $F_{cap}(haut) = -2\pi r \gamma cos\theta_r$ (< 0). Ici, r est différent de r_t car un film de liquide, dont nous allons discuter l'épaisseur par la suite reste sur la paroi du tube (le film démouille plus tard).
- la force visqueuse $F_\eta = -8\pi\eta\dot{z}2r_g$
- le poids $P = \rho g \pi r_t^2 2r_g$

avec θ^r l'angle dynamique de reculée et θ^a l'angle dynamique d'avancée.

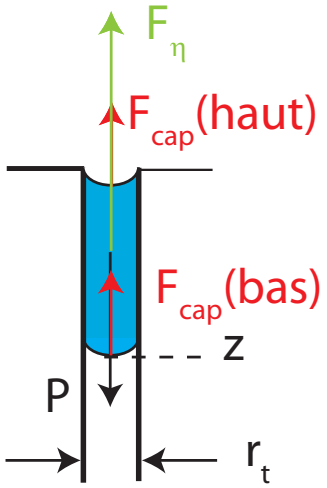


Fig. 1.32- Forces appliquées à un index qui vient juste d'être formé. z est la position de l'interface la plus basse. En $t = 0$, $z = 2r_g$.

Pour décrire la dynamique d'imprégnation, nous écrivons le bilan de quantité de mouvement sur un index de masse M.

$$\frac{d}{dt}\left(M\dot{z}\right) = -2\pi r\gamma cos\theta_r + 2\pi r_t\gamma cos\theta_a - 8\pi\eta\dot{z}2r_g + \rho g\pi r_t^2 2r_g \tag{1.16}$$

$M = \rho g\pi r_t^2 2r_g$, est la masse d'un cylindre de liquide de rayon r_t et de hauteur $2r_g$ et est donc constante (partie 1.4.1).

b) Les angles de contact : Le liquide dans le tube commence par avancer à la vitesse d'impact, puis ralentit pour finalement s'arrêter. Les angles d'avancée et de reculée changent donc au cours du temps. Pour évaluer ces variations d'angle de contact, nous proposons l'analyse ci dessous.

L'angle d'avancée : L'angle d'avancée dynamique est l'angle de contact lorsque le liquide est en mouvement. Il est différent de l'angle statique puisque le liquide en volume pousse sur l'interface liquide-air et la déforme, et dépend du nombre capillaire $Ca^* = \frac{\eta v}{\gamma}$, calculé comme le rapport des forces visqueuses appliquées sur une longueur de l'ordre d'un rayon de tube (qui donne l'ordre de grandeur du ménisque) $\eta v r_t$ sur la force de tension de surface γr_t. Plus Ca^* est grand, plus l'angle d'avancée est grand.

L'angle d'avancée est donné par la relation (de Gennes [24], Cox [25] et la revue de Cazabat [26]) :

$$\theta_a = (\theta_e^3 + 9A\frac{\eta}{\gamma}\frac{dz}{dt})^{1/3} \tag{1.17}$$

A est une constante sans dimension, est définie comme $A = ln(L/s)$ avec L la longueur caractéristique du système (nous prendrons 10^{-3} m) et s une longueur de coupure de l'ordre de 10^{-9} m, une longueur moléculaire.

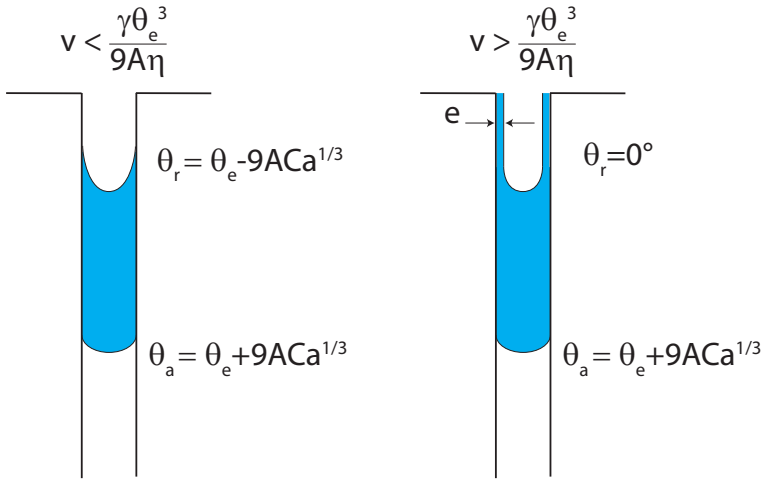


Fig. 1.33- Angles d'avancée et de reculée dynamiques pour les petites et grandes vitesses. Un film liquide reste sur la paroi du tube lorsque la vitesse d'impact est supérieure à $\frac{\gamma\theta_e^3}{9A\eta}$.

L'angle de reculée : De la même manière que l'angle de contact augmente avec la vitesse d'avancée, celui-ci diminue avec la vitesse de reculée. Dans notre cas, l'angle de contact vaut 110° à l'équilibre statique et est réduit avec la vitesse, selon la même variation que nous avions pour l'angle d'avancée, soit $\theta_r = (\theta_e^3 - 9A\frac{\eta}{\gamma}\frac{dz}{dt})^{1/3}$. Cependant, lorsque la vitesse atteint la valeur de $\frac{\gamma}{9A\eta}\theta_e^3$, l'angle θ_r atteint la valeur 0°. Au-delà de cette vitesse, un film de mouillage reste sur la paroi du tube comme montré sur la figure 1.33 et l'angle de reculée est 0°.

Nous pouvons récapituler à l'aide de la figure 1.33 et des équations 1.18 et 1.19 :

$$\theta_r = (\theta_e^3 - 9A\frac{\eta}{\gamma}\frac{dz}{dt})^{1/3} \quad \text{pour} \quad \frac{dz}{dt} < \frac{\gamma}{9A\eta}\theta_e^3 \tag{1.18}$$

$$\theta_r = 0 \quad \text{pour} \quad \frac{dz}{dt} > \frac{\gamma}{9A\eta}\theta^3 \tag{1.19}$$

c) Epaisseur du film à l'arrière de l'index : Nous discutons maintenant la force de tension de surface à l'arrière de l'index. Elle se trouve réduite lorsqu'un film de liquide se dépose sur la paroi [27]. En effet, la courbure du ménisque est diminuée par la présence du film, comme schématisé sur la figure 1.33 b). La pression du liquide sur l'interface devient alors $\frac{2\gamma cos\theta_r}{r_t - e}$, avec e l'épaisseur du film déposé (dans notre cas, $\cos\theta_r = 1$). Cette pression s'exerce sur la surface du tube πr_t^2.

La force de tension de surface devient donc $-2\pi\frac{r_t^2}{r_t - e}\gamma cos\theta_r$. Par ailleurs, l'épaisseur de ce film déposé augmente avec la vitesse et la viscosité du liquide. Comme la tension de surface tend à réduire la surface entre le liquide et l'air, plus γ est grand, moins de liquide est déposé, nous avons donc une dépendance de e en Ca. Nous prenons l'expression de l'épaisseur donnée par [28] :

$$e/r_t \simeq 2.9 e_\infty / r_t \simeq 3.88 \left(\frac{\eta}{\gamma}\frac{dz}{dt}\right)^{2/3} \tag{1.20}$$

avec e_∞ l'épaisseur du film à l'infini, donnée par la relation de Bretherton [29].

d) Conditions aux limites : La vitesse du liquide dans le tube au moment où l'interface la plus haute (l'interface A sur la figure 1.34) passe dans le tube, est différente de la vitesse d'impact. En effet,il y a inversion de courbure au moment du passage de cette interface dans le tube : la goutte étant sphérique, la courbure était dirigée vers le bas et elle change pour se diriger vers le haut une fois dans le tube, comme on peut le voir sur la figure 1.34.



Fig. 1.34- Série d'images à 7500 i/s. Le passage de l'interface haute (A) à travers l'entrée du tube ralentit le liquide.

Cette inversion marque le début du ralentissement de l'index. Nous prendrons donc comme vitesse initiale la tangente à la trajectoire de l'interface basse à l'entrée du tube, que nous notons $\tilde{v}_i$, au lieu de la vitesse d'impact. La vitesse $\tilde{v}_i$ est mesurée pour chaque expérience à l'aide d'images spatio-temporelles telles que celle présentée sur la figure 1.35. Notons que cette correction de la vitesse initiale serait négligeable pour les plus grandes vitesses, mais elle a une importance pour les vitesses les plus faibles.

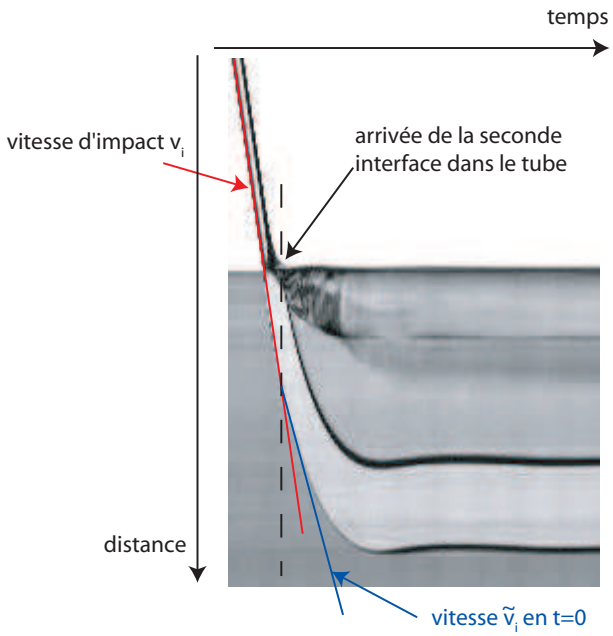


Fig. 1.35- La vitesse initiale est celle mesurée au moment où la seconde interface entre dans le tube.

e) Comparaison avec nos mesures : Sur la figure 1.36 nous traçons les valeurs de z_{max} mesurées lorsque l'index est arrêté et aux valeurs obtenues en résolvant numériquement l'équation 1.16.

Le modèle est en accord avec les expériences, même s'il semble les sous estimer systématiquement. Nous avons tenté de tenir compte de la perte de masse due au dépôt du film à l'arrière de la goutte en ne considérant pas la masse constante. Par ailleurs, lorsque le film déposé à l'arrière de l'index démouille et revient remplir l'index, la vitesse à laquelle ce liquide rejoint l'index peut avoir une influence sur la vitesse totale de l'index. Lex images obtenues ne nous permettent pas de mesurer le film de mouillage. Nous pouvons par ailleurs supposer que le mouillage n'est pas homogène sur toute la longueur du tube. En effet, s'il existe des zones où l'angle de contact est plus faible, le liquide pourraît alors descendre plus bas dans le tube, puisqu'il serait moins freiné par la force de tension de surface à l'avant.

1.4.3.2 Cas mouillant

Nous nous intéressons à présent à la dynamique d'imprégnation dans les tubes mouillants. Dans ce cas, les forces de tension de surface agissent dans le même sens que le poids, c'est la raison pour laquelle le liquide entré se retrouve toujours en bas du tube à l'état final.

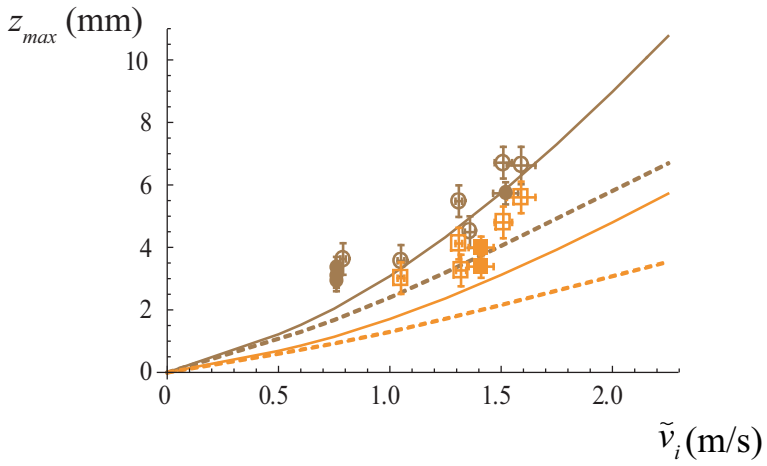


Fig. 1.36- Position finale de l'interface basse z_{max} en fonction de la vitesse d'entrée, dans le cas d'une goutte d'eau (points vides) et d'une goutte d'eau - glycérol (points pleins). Les lignes continues donnent le modèle de z_{max} calculé avec l'équation 1.16 pour l'eau et les lignes pointillées pour le mélange eau - glycérol. Couleurs : marron, tube de 0,5 mm ; orange, tube de 0,3 mm.

a) Régime de formation d'index (FI) : Tout d'abord, pour le régime de formation d'index dans le cas hydrophile, le mouvement du liquide est décrit par l'équation 1.16 utilisée pour les index dans les tubes hydrophobes. Comme précédemment, nous imposons comme vitesse initiale la vitesse du liquide au moment de la formation d'index (la droite bleue de la figure 1.35). Les angles de contact dynamiques sont aussi calculés de la même manière que pour le cas hydrophobe.

La position de l'interface basse d'un index se déplaçant dans un tube hydrophile est réprésentée sur la figure 1.37. A nos données expérimentales ont été superposées les courbes de z(t) calculées numériquement par l'équation 1.16.

Les index descendent dans le tube à des vitesses proches de la vitesse d'impact, ce qui leur permet d'atteindre très vite des profondeurs jusqu'à quatre fois le diamètre de goutte (pour 1,3 m/s par exemple sur la figure 1.37). Tant que la viscosité ne réussit pas à les freiner suffisament (partie 1.4.2.3) les index peuvent avancer. Ensuite, c'est la tension de surface et le poids qui prennent le relais et qui entraînent le liquide vers le fond du tube.

b) Régime d'imprégnation totale (IT) : Nous nous intéressons à présent à la dynamique du régime d'imprégnation totale. Cette fois-ci, le liquide n'est pas fractionné, la goutte se vide donc entièrement dans le tube.

Sur la figure 1.38, nous avons reporté la position de l'interface avant au cours du temps.

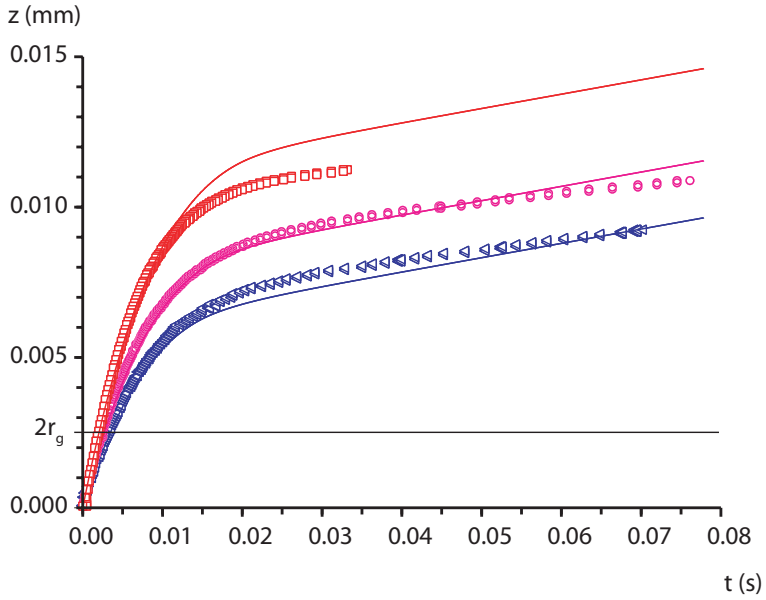


Fig. 1.37- Les symboles représentent la profondeur de liquide au cours du temps dans les tubes lorsqu'un index est formé. En triangle bleu 0,8 m/s, en ronds rose, 1,1 m/s, en carrés rouge 1,3 m/s. Les lignes correspondent à l'expression de $z(t)$ donnée par l'équation 1.16.

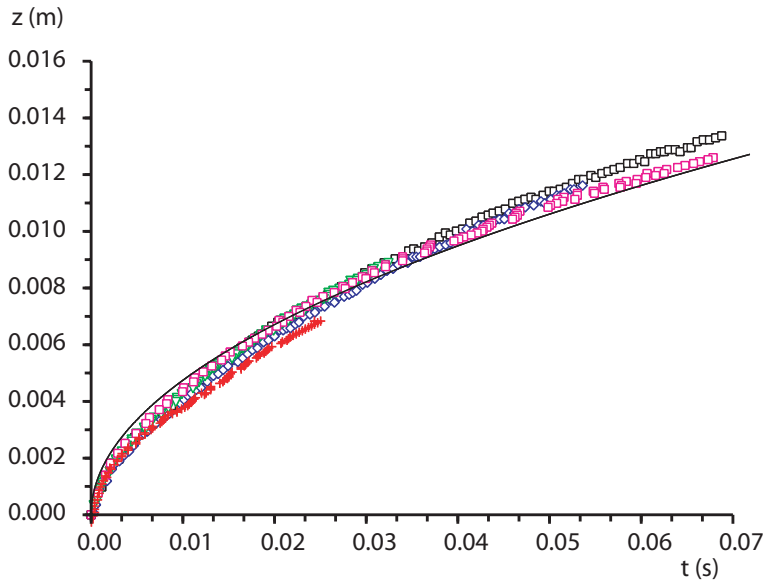


Fig. 1.38- Profondeur de pénétration en fonction du temps t pour différentes vitesses d'impact. La courbe noire correspond à la position donnée par l'équation 1.3.

Nous pouvons remarquer que dans ce régime d'imprégnation totale, le mouvement du liquide n'est pas très loin d'une expérience d'imprégnation classique. Nous comparons nos données à l'équation de Washburn [16] donnée en 1.2.

Dans cette expression, l'angle de contact θ est celui d'avancée. Nous l'évaluons à l'aide de la relation 1.17, pour un angle de contact statique de 30° et une vitesse d'avancée de 0,3 m/s qui est comprise entre la vitesse d'impact de l'ordre de 1 m/s et de la vitesse mesurée vers la fin de l'expérience qui est proche de 0,1 m/s. Nous obtenons finalement θ=50°.

La postition de l'interface donnée par Washburn (avec θ=50°) est représentée en noir sur la figure 1.38 et elle décrit très bien nos expériences pour toutes les vitesses d'impact. A ces échelles de temps, l'inertie semble donc être négligeable dans ce cas par rapport aux forces de tension de surface qui attirent le liquide dans le tube. Le liquide s'écoule donc dans le tube tant que la goutte ne s'est pas vidée entièrement.

Nous pensons que la vitesse d'impact peut jouer un rôle aux tous premiers instants de l'imprégnation, lorsque le liquide atteint un régime d'imprégnation linéaire (équation 1.3). Toutefois, ce régime n'intervient que pour des temps tels que $t < \rho r_t^2/\gamma$ soit 10^{-4} s. Cette gamme de temps ne nous est pas accessible.

Le fait de lancer une goutte sur un tube hydrophile ne permet pas toujours d'augmenter la vitesse à laquelle le liquide se déplace dans le tube : dans le cas d'imprégnation totale, la dynamique du liquide rejoint celle de Washburn, alors que dans le cas de formation d'index, lorsque l'inertie est grande devant les forces visqueuses alors que dans le cas contraire, on rejoint un régime d'imbibition de Washburn : le liquide entre plus rapidement dans le tube. De plus, l'impact limite la quantité de liquide entré à un volume d'index, soit $2\pi r_t^2 r_g$ contre $4/3\pi r_g^3$ pour l'imprégnation totale.

1.5 Aux très grandes vitesses

Lors de nos impacts, nous ne sommes pas allés au delà de 3 m/s. En effet, pour les très grandes vitesses, nous n'avons jamais réussi à obtenir des index de liquide bien formés, que ce soit pour les tubes hydrophobes ou hydrophiles. La figure 1.39 présente le comportement typique du liquide lancé à très grande vitesse. Le liquide semble s'écouler le long des parois, plutôt qu'en « bloc » comme précédemment, mais plutôt en « doigts ». Nous constatons également que le liquide qui entre de cette manière dans le tube va beaucoup plus loin. H. Ding and T. Theofanous [30] étudient numériquement le passage du régime index au régime doigts. Ce dernier régime leur semble se mettre en place lorsqu'une instabilité de l'interface pénétrant dans le tube se développe. Ils expliquent que cette instabilité serait liée à la résistance de l'air

qui est repoussé vers le bas du tube.



Fig. 1.39- Vitesse d'impact de 2,3 m/s pour un tube de 0,3 mm de rayon. Entre deux images il y a 0,53 ms et la dernière image est prise à la fin à 2,5 ms.

1.6 Conclusion sur les impacts

Lorsqu'une goutte est lancée sur un tube capillaire vertical, la quantité de liquide pénétrant dépend de l'équilibre entre l'inertie qui pousse le liquide, la tension de surface (pour les tubes non mouillants) et la viscosité (pour les tubes mouillants) qui freinent sa progression. La formation d'un index est établie par cet équilibre tant que la longueur de la colonne de liquide entrée dans le tube est encore inférieure à un diamètre de goutte. La dynamique du liquide dans le tube est quant à elle donnée par l'équilibre entre ces trois contributions, plus celle du poids dans le cas de la formation d'index, quel que soit l'état de surface.

Pour les plus petites vitesses d'impact, la goutte de liquide se comporte comme dans le cas d'une imbibition sans vitesse initiale : le liquide n'entre dans les tubes hydrophobes que si la pression de la goutte est supérieure à la pression donnée par la courbure de l'interface dans le tube. La goutte imbibe totalement les tubes hydrophiles en suivant la dynamique décrite par Washburn.

Cette étude a seulement porté sur l'impact de gouttes centrées sur l'axe du tube, mais nous pouvons imaginer que le décentrage des gouttes ne conduit pas à la même quantité de liquide dans le tube puisque la colonne de liquide en face du trou lors de l'impact est plus petite. Par ailleurs, introduire une tortuosité à notre problème nous permettrait aussi de nous rapprocher de l'impact sur un poreux réel. Nous ne pouvons plus par exemple casser la goutte en deux parties pour former un index selon le même critère géométrique (les lignes de courant sont déviées lorsqu'elles rencontrent un obstacle).

Par rapport au poreux réel, cette étude nous permet de dire que le liquide projeté sur les tissus peut passer à travers la porosité la plus large, même si les surfaces sont a priori non

mouillantes. Les études menées par Reis et al. [5], [6] à l'échelle d'un empilement de grains, et donc d'un grand nombre de pores, n'a pas révélé la présence de bulles d'air dans le poreux due à la déconnection du liquide en volume et du reste de la goutte en surface mise en évidence à l'échelle du pore unique que nous avons mis en évidence.

Chapitre 2

Imprégnation forcée de mousse dans un pore

2.1 Généralités sur les mousses

La mousse est un matériau constitué de bulles dispersées dans un liquide moussant. Selon les quantités respectives de liquide et de gaz qu'elle contient, ses propriétés physiques sont différentes, nous verrons par exemple plus loin qu'elle s'écoule d'autant plus facilement qu'elle contient plus de liquide. La mousse est par ailleurs toujours en évolution : les bulles changent de voisines (réarrangement), leur taille évolue, les petites bulles se vident dans les grosses (mûrissement), leur nombre diminue lorsqu'un film séparant deux bulles casse (coalescence) et le liquide s'écoule lorsqu'elle est soumise à la gravité (drainage). Le mûrissement, la coalescence et le drainage constituent ce qu'on appelle le vieillissement de la mousse, les échelles de temps sur lesquelles ils ont lieu peuvent être plus ou moins longues, et peuvent, dans une certaine mesure, être contrôlés.

Comme nous comptons utiliser la mousse pour décontaminer un tissu, nous allons nous intéresser à son comportement au contact avec un poreux modèle. En effet, nous avons vu précédemment que du liquide mis en contact avec un poreux l'imbibe lorsque les forces de tension de surface y sont favorables. Pour l'expérience de Washburn par exemple [16], lorsque du liquide entre en contact avec un tube capillaire mouillant, un ménisque se forme et fait monter une colonne de liquide dans le tube. Dans le cas d'une mousse, lorsque le liquide constituant la mousse entre en contact avec un pore, a-t-on le même mécanisme d'entrée de liquide ? Qu'en est-il des bulles, peuvent-elles pénétrer dans le pore ? Pour répondre à ces questions nous avons mis en place une expérience d'aspiration forcée de mousse à travers un tube capillaire en verre.

Nous allons dans un premier temps décrire quelques propriétés de la mousse afin de mieux comprendre plus tard quel est le lien entre les caractéristiques de la mousse et ce qui réussi à entrer dans le tube.

2.1.1 Géométrie

Localement, la géométrie des mousses change avec la quantité de liquide qu'elle contient, à savoir la fraction liquide ϵ qui est calculé comme le rapport du volume de liquide dans la mousse sur le volume total de mousse. Dans le cas des mousses monodisperses sèches, chaque bulle en volume peut être modélisée par une cellule de Kelvin (figure 2.1, extrait de [31], pour la mousse à $\epsilon = 1\%$). Plus ϵ est grand, plus la forme des bulles se rapproche de celle de la sphère ($\epsilon = 11\%$ figure 2.1).

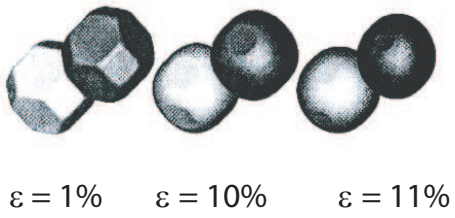


Fig. 2.1- Forme d'une bulle selon la fraction liquide [31] dans un empilement de type cubique centré (cellules de Kelvin).

Pour les mousses dont la fraction liquide est en dessous de 3 à 5%, il est possible de repérer trois zones distinctes où est contenu le liquide, comme schématisé sur la figure 2.2 : Les films, les bords de Plateau (à l'intersection de trois films) et les nœuds (lorsque quatre bords de Plateau se rencontrent).

La cellule de Kelvin ($\epsilon = 0$) est formée de 14 films dont 6 de forme carrée et 8 de forme hexagonale. Elle comprend 36 bords de Plareau et 24 nœuds, tous identiques.

La fraction liquide ϵ est le volume de liquide autour d'une bulle sur le volume total V (liquide +gaz). On calcule alors $\epsilon = \dfrac{V_f + V_{BdP} + V_n}{V}$ avec V_f le volume des films par bulle V_{BdP} le volume de bord de Plateau par bulle, et V_n le volume des nœuds par bulle.

Le volume d'un film est donné par le volume des 8 faces hexagonales et 6 faces carrées, chacune d'épaisseur e_f, partagée par deux bulles :

$$V_f = \left(8\frac{3\sqrt{3}}{4} + \frac{6}{2}\right) L^2 e_f \tag{2.1}$$

Le volume d'un bord de Plateau est donné (voir la figure 2.2) par l'intersection entre trois

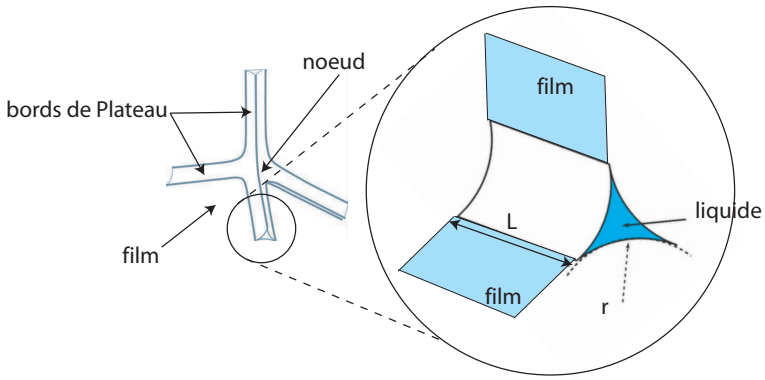


Fig. 2.2- Éléments du squelette liquide de la mousse pour ϵ autour de 1%. Dans l'encart : détail du bord de Plateau . La section d'un bord de Plateau (en bleu foncé) est décrite par trois arcs de cercle de rayon $r << R$.

arcs de cercles de rayons r sur une longueur L. A raison de 36/3 bords de Plateau par cellule, on trouve :

$$V_{BdP} = 12(\sqrt{3} - \frac{\pi}{2})r^2 L \tag{2.2}$$

Un calcul du volume des nœuds par bulle a été proposé par Koehler et al. [32] :

$$V_n = 6 \times 0,3r^3 \tag{2.3}$$

En considérant que le volume de gaz V_g est grand devant le volume du liquide, on obtient $V \simeq V_g = V_K = 8\sqrt{2}L^3$ avec V_K le volume d'une cellule de Kelvin , d'où le'expression de la fraction liquide :

$$\epsilon = 1,19\frac{e_f}{L} + 0,17\frac{r^2}{L^2} + 0,16\frac{r^3}{L^3} \tag{2.4}$$

Dans le cas des mousses millimétriques, dont la fraction liquide est de l'ordre de 3% à 5%, on a généralement les inégalités suivantes : $e_f << r << L$ si bien que ϵ est approché par la solution :

$$\epsilon \approx 0,17\frac{r^2}{L^2} \tag{2.5}$$

Le volume des bulles dans la colonne est le même en haut et en bas, que les bulles soient très facettées ou quasiment sphériques. Le volume d'une cellule de Kelvin V_K est donc le même que le volume d'une bulle sphérique. Nous pouvons donc écrire :

$$V_K = 8\sqrt{2}L^3 = 4/3\pi r_b^3 \tag{2.6}$$

Ce qui donne le rapport entre ϵ et r_b :

$$\epsilon \simeq 0,3 \left(\frac{r}{r_b}\right)^2 \tag{2.7}$$

Ce qui est décrit précédemment est valable pour des mousses sèches. Pour les mousses plus humides, nous représentons sur la figure 2.3 un bord de Plateau et deux nœuds. Le rayon de courbure r est le rayon de courbure minimal du bord de Plateau, le rayon de courbure longitudinal est noté R : il est considéré comme infini devant r dans la limite des mousses sèches. L est la longueur du bord de Plateau de nœud à nœud et $L_{BdP} = L + \xi r$ la longueur totale entre deux nœuds, c'est-à-dire celle du bord de Plateau et des portions de nœud lui étant attribuées.

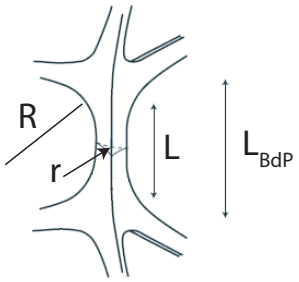


Fig. 2.3- Géométrie d'un bord de Plateau. Nous repérons le rayon de courbure du bord de Plateau transverse r, le rayon de courbure longitudinal R, la longueur de bord de Plateau sans les nœuds L et la longueur de nœud à nœud L_{BdP}.

Il existe plusieurs propositions pour exprimer ξ, nous choisissons celle présentée par [33] pour les valeurs de ϵ allant de 0 à 0,26 (fraction liquide d'un empilement compact de sphères dures au delà de laquelle les bulles ne sont plus en contact) :

$$L/L_{BdP} = \frac{0,99\epsilon^{-2/3} - 2,35}{13,9 - \epsilon^{-2/3}} \tag{2.8}$$

Cette relation est tracée sur la figure 2.4.

Cette relation est basée sur une interpolation entre les longueurs déterminées sur la structure cubique centrée (cellule de Kelvin) aux petites fractions (ϵ <0,06) et cubique faces centrées aux fractions plus élevées. Les rayons ont été mesurés directement sur les structures simulées avec le logiciel Surface Evolver. L'approche d'interpolation a été proposée initialement par Höhler et al. [35] pour décrire la variation de la pression osmotique dans des cristaux de bulles permettant une transition de structure entre cubique centré et cubique faces centrées autour de ϵ=0,63. Dans [34], il est montré que cette approche permet également de bien décrire

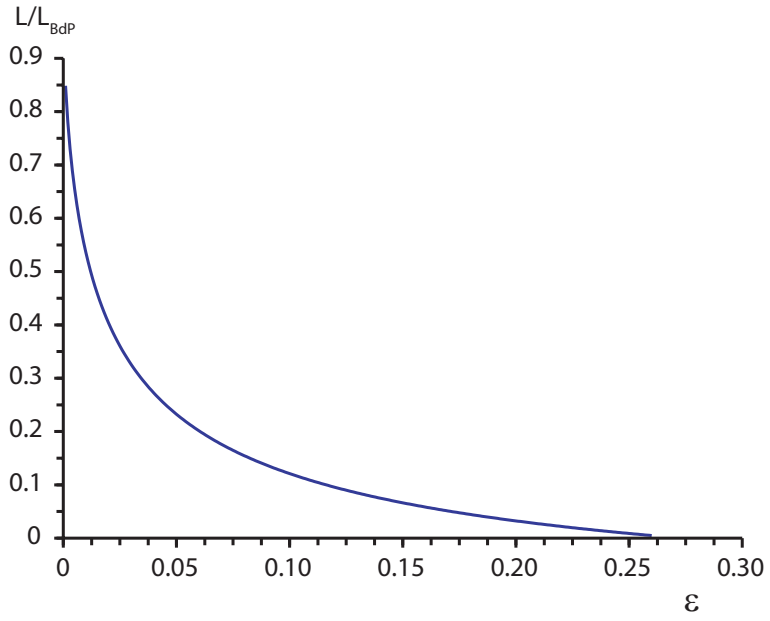


Fig. 2.4- Rapport L/L_{BdP} en fonction de ϵ obtenue par [34].

l'évolution du rayon de courbure des bords de Plateau r sur toute la gamme de fraction liquide, malgré l'absence visible de transition structurale. Cette approche permet dans cette même étude de bien décrire le changement du nombre de bords de Plateau et de nœuds par bulle lorsque ϵ augmente.

2.1.2 Stabilité des mousses

La pression des bulles de gaz dans la mousse est proche de la pression atmosphérique [36].

Aux faibles fractions liquides, la pression dans le liquide reliée au rayon de courbure des bords de Plateau est donnée par la loi de Laplace (schématisé sur l'encart de la figure 2.2) :

$$P_l = P_g - \frac{\gamma}{r} \tag{2.9}$$

Les films quant à eux, ont une courbure nulle, et le liquide qu'ils contiennent est donc soumis à la suction capillaire des bords de Plateau. Ils se videraient entièrement de leur liquide si d'autres forces n'intervenaient pas pour les stabiliser. En effet, lorsque l'épaisseur des films e approche les 100 nm (suite à l'écoulement du liquide vers les bords de Plateau), des forces d'interactions entre les deux interfaces apparaissent. La somme des forces d'interaction, par unité d'aire, représente ce que l'on nomme la pression de disjonction Π, elle dépend de la longueur d'interaction λ_0 à partir de laquelle la répulsion se fait sentir. Son expression est donnée par le modèle qui rend compte de la sensibilité des effets électrostatiques avec

la distance entre les deux surfaces. Plus celle ci est petite, plus les forces d'interaction sont importantes :

$$\Pi \simeq exp\left(-\frac{e}{\lambda_0}\right) \tag{2.10}$$

On constate donc que Π augmente lorsque l'épaisseur du film devient petite. Pour un film de savon, Π s'oppose à la succion capillaire (figure 2.5) et maintient le système à l'équilibre. On a alors :

$$\Pi = \frac{\gamma}{r} \tag{2.11}$$

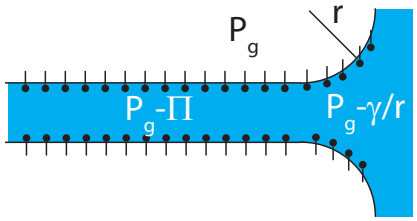


Fig. 2.5- La pression dans le liquide est partout la même. Dans le bord de Plateau, la dépression par rapport au gaz est fixée par la courbure des interfaces, dans le film par la pression de disjonction.

Dans la mousse, à l'équilibre, la pression du liquide est hydrostatique :

$$P_l = P_g - \rho g z \tag{2.12}$$

D'après les équations 2.11 et 2.12, on a l'égalité suivante reliant le rayon des bords de Plateau à la hauteur :

$$\frac{\gamma}{r} = \rho g z \tag{2.13}$$

Les relations 2.7 et 2.13 permettent de relier ϵ à z et ainsi obtenir le profil de fraction liquide :

$$\epsilon = 0,3\left(\frac{\gamma}{\rho g z r_b}\right)^2 \tag{2.14}$$

L'équation 2.14 est représentée sur la figure 2.6 b).

Cependant, la dépression dans les films ne peut dépasser une valeur limitée Π_c, fixée par les interactions entre les deux interfaces, au delà de laquelle les tensioactifs ne peuvent plus

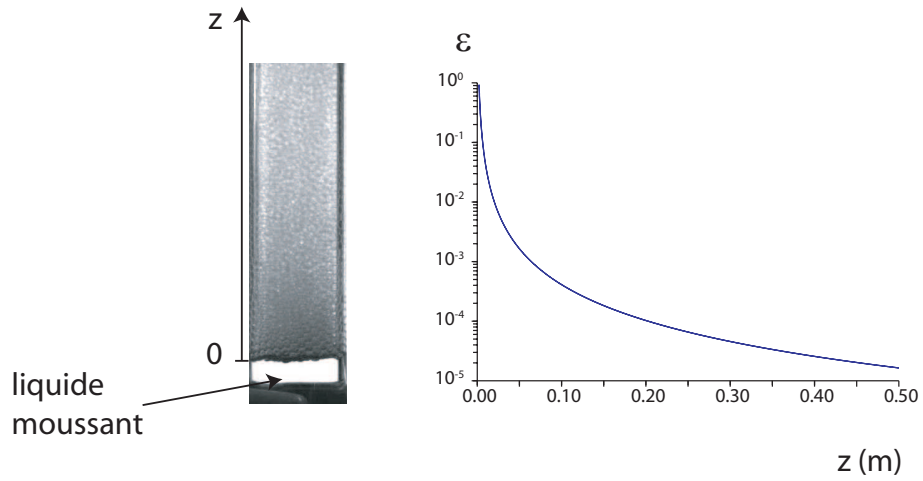


Fig. 2.6- a) Dans une colonne de mousse, la pression dans le liquide dépend de la hauteur dans la mousse et de la hauteur totale de mousse. b) Profil de fraction liquide dans la colonne à l'équilibre.

retenir le liquide dans le film, qui casse si $\frac{\gamma}{r} > \Pi_c$. Cela nous donne une hauteur limite que peut atteindre une colonne de mousse.

Bergeron [37] a mesuré la pression de disjonction d'un film en fonction de son épaisseur pour différents tensioactifs, comme présenté sur la figure 2.7. Pour le TTAB (que nous utiliserons pas la suite), λ_0=5 nm, à savoir une distance de l'ordre de grandeur de plusieurs longueurs de tensioactifs. Cela donne l'expression de e (en nm) en fonction de Π :

$$e \simeq 52 - 5\ ln\,(\Pi) \tag{2.15}$$

La rupture du film a lieu pour un film d'une quinzaine de nanomètres, pour une pression de 3.10^4 Pa, ce qui donne une hauteur de mousse de l'ordre de 3 m. Cette valeur est particulièrement élevée et dans la pratique il est très difficile de réaliser des colonnes de mousse atteignant cette hauteur. Carrier et Colin [38] ont d'ailleurs montré que la mousse casse alors que la pression dans les films est bien plus petite que la pression de disjonction critique. Ils ont mesuré une fraction liquide critique plutôt qu'une pression de disjonction critique conduisant à la rupture de la mousses. Nous proposerons plus loin dans ce manuscrit une expérience permettant d'expliquer pourquoi une mousse ne peut pas atteindre de telles hauteurs.

2.1.3 Perméabilité

La mousse peut être considérée comme un milieu poreux. En effet, du liquide peut s'écouler sous l'effet d'une pression dans le réseau de bords de Plateau de la même manière qu'il

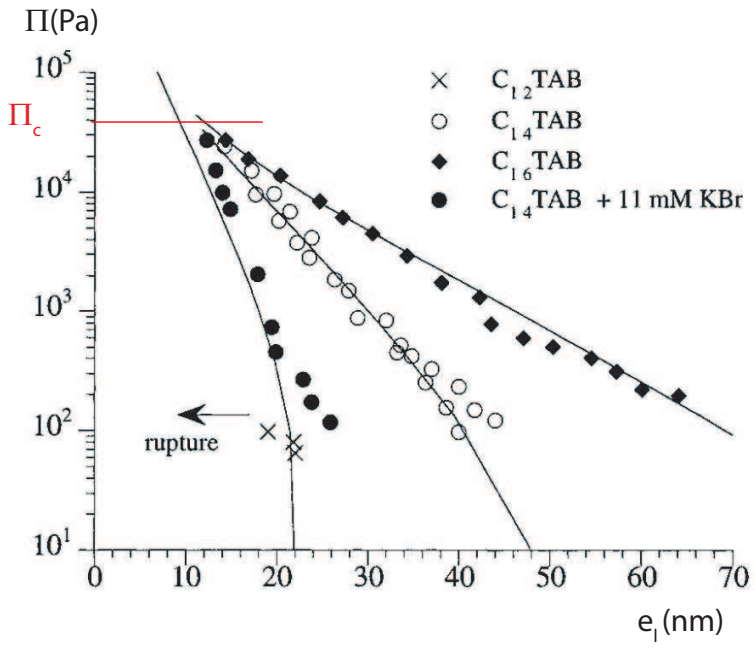


Fig. 2.7- Extrait de [37]. Pression de disjonction en fonction de l'épaisseur du liquide d'un film de savon pour différentes solutions moussantes. Le TTAB correspond aux cercles vides. e_l est l'épaisseur du liquide uniquement (pour obtenir l'épaisseur du film, il faut ajouter l'épaisseur de la couche de tensioactifs, qui est constante et de l'ordre de 2 nm). La pression de disjonction critique correspondant à l'épaisseur minimale que peut atteindre un film est $\Pi_c \simeq 3.10^4$ Pa.

s'écoulerait dans les pores d'un poreux solide. L'écoulement dans un poreux solide à travers une surface S est donné par la loi de Darcy :

$$v_d \vec{u} = -\frac{\kappa}{\eta}\left(\vec{\nabla} P - \rho \vec{g}\right) \tag{2.16}$$

avec $\vec{u}$ vecteur unitaire perpendiculaire à S, P la pression imposée au liquide et κ la perméabilité du poreux. La vitesse débitante v_d est la vitesse moyenne de l'écoulement dans la direction $\vec{u}$. Cette vitesse est reliée à la vitesse moyenne dans tous les pores $< v_p >$ par la relation :

$$v_d = \epsilon < v_p > \tag{2.17}$$

Dans le cas d'une mousse, la perméabilité est fixée par la taille des bulles, mais aussi par la fraction liquide et la nature des tensioactifs. En effet, les parois des pores de la mousse sont les interfaces liquide-air qui constituent le réseau des bords de Plateau. Or, ces parois sont fluides, se déforment et s'adaptent à la quantité de liquide dans les cannaux. Dans la limite des mousses sèches (lorsque $L >> r$), et pour des interfaces mobiles (lorsque la dissipation

visqueuse se fait principalement dans les nœuds du réseau, comme ce sera notre cas par la suite), la perméabilité d'une mousse est donnée par la relation [33] :

$$\kappa = 2,7.10^{-3}\epsilon^{3/2}r_b^2 \tag{2.18}$$

Pour les mousses plus humides, la perméabilité peut être mesurée grâce à une expérience de drainage libre : une colonne de mousse est formée et le liquide, sous l'action de la gravité s'écoule librement au débit Q_l vers le bas. Il est retenu par un gradient de forces capillaires (opposé à la gravité) dû à la différence de fraction liquide (et donc de rayon de courbure des bords de Plateau) entre le haut et le bas de la colonne. L'équation de conservation du liquide (imcompressible) est donc $\frac{d\epsilon}{dt} = \frac{dv_d}{dz}$. La loi de Darcy dans la direction verticale est donnée par la relation :

$$v_d = \frac{Q_l}{S_{colonne}} = \frac{\kappa}{\eta}G \tag{2.19}$$

avec $S_{colonne}$ l'aire de la section de la colonne de mousse, $G = \rho g - \frac{dP_l(z)}{dz}$ le gradient de pression dans la direction z. Nous avons vu plus haut (équation 2.9) que la pression dans le liquide dépend du rayon des bords de Plateau, qui dans le cas d'une mousse en drainage libre dépend de la hauteur dans le liquide, d'où $G = \rho g - \frac{d}{dz}\left(P_g - \frac{\gamma}{r(z)}\right)$. Comme $r(z)$ dépend de $\epsilon(z)$ (équations 2.4 et 2.6), l'équation du drainage ne dépend plus que de la perméabilité de la mousse pour décrire l'évolution de la fraction liquide au cours du temps pour chaque hauteur z. Le profil d'équilibre $\epsilon(z)$ a été donné précédemment sur la figure 2.6.

La variation de la perméabilité avec la taille des bulles et la fraction liquide a été déterminée par [33], [39], en menant des expériences de drainage forcé. Du liquide est versé en haut de colonne en continu au débit Q, ce qui crée un front entre la mousse initialement sèche et la mousse plus humide qui apparaît, et dans laquelle la fraction liquide la même partout, il n'y a alors plus de gradient de pression capillaire, et le liquide s'écoule uniquement à cause de la gravité. La loi de Darcy se simplifie alors en :

$$v_d = \frac{Q}{S_{colonne}} = \frac{\kappa}{\eta}\rho g \tag{2.20}$$

La vitesse débitante est la vitesse du liquide déversé au débit Q sur une mousse initialement sèche de section $S_{colonne}$ (figure 2.8).

En contrôlant le débit injecté et le diamètre de la colonne, nous fixons la perméabilité de la mousse sur toute sa hauteur. Lorenceau et al. [33] et Pitois et al. [40] proposent une expression de la perméabilité d'une mousse à partir d'une étude de l'écoulement à l'échelle d'un bord de Plateau et d'une mousse monodisperse. Rappelons que chaque nœud est partagé

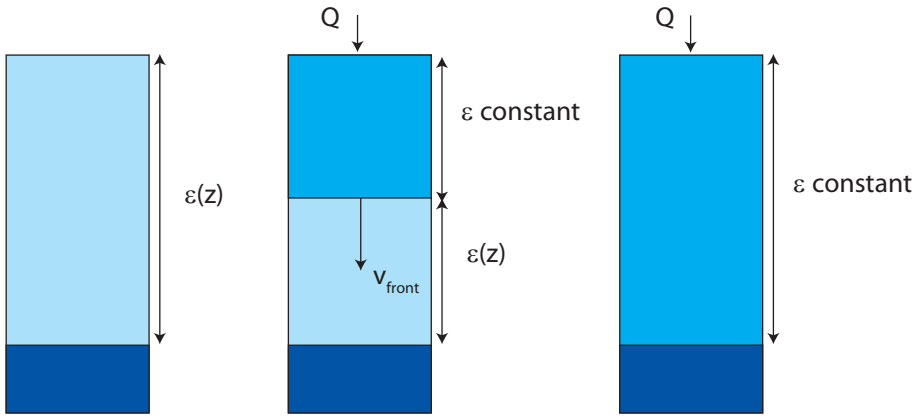


Fig. 2.8- Une colonne de mousse est formée et laissée drainer librement, ce qui crée un gradient de fraction liquide dans la colonne. Du liquide est ensuite versé en continu au débit Q en haut de colonne, ce qui fait apparaître un front de liquide s'écoulant à la vitesse v_{front} vers le bas sous l'action de la gravité. Lorsque le front a atteint le bas de la colonne, la fraction liquide est uniforme sur toute la colonne.

par 4 bords de Plateau, donc le liquide provient d'un quart de nœud au dessus du bord de Plateau, et s'écoule par le quart de nœud du dessous. La résistance d'un bord de Plateau en série avec un demi nœud est alors donnée par le rapport de la pression induisant l'écoulement sur le débit dans le bord de Plateau, soit l'expression suivante :

$$\frac{\Delta P}{A_{BdP} v^i_{BdP}} = C_c + C_n/2 \tag{2.21}$$

avec A_{BdP} l'aire d'un bord de Plateau, v_{BdP} la vitesse moyenne du liquide dans un bord de Plateau selon la direction i et C_c et C_n les résistances dans les bords de Plateau et dans les nœuds. Cela conduit au gradient de pression moyen :

$$\frac{\Delta P}{L} = \left(C_c + \frac{C_n}{2} \right) \frac{A_{BdP} v^i_{BdP}}{L} \tag{2.22}$$

Avec l'équation 2.19 et 2.17, on trouve l'expression de la perméabilité d'une mousse, moyennée sur toutes les orientations des bords de Plateau :

$$\kappa = \frac{\epsilon \eta L}{3 A_{BdP} \dfrac{v_{BdP}}{v_p} \left(C_c + \dfrac{C_n}{2} \right)} \tag{2.23}$$

Les vitesses v_{BdP} et v_p correspondent aux vitesses moyennes dans un bord de Plateau proprement dit et dans les « pores » de la mousse, la moyenne se calculant sur toute la porosité. Elles sont égales pour les mousses les plus sèches, lorsque les nœuds sont petits et que l'écoulement se fait principalement dans les bords de Plateau, mais deviennent

différentes quand la fraction liquide augmente. v_{BdP}/v_p est donné par [40], et s'exprime comme $\dfrac{\epsilon}{\epsilon_p + \epsilon_n \dfrac{A_{BdP}}{A_n}}$, avec ϵ_p la fraction liquide attribuée à un bord de Plateau : $\epsilon_p = 0,171(r/L)^2 \dfrac{L-2r}{L}$. ϵ_n la fraction liquide attribuée à un noeud : $\epsilon_n = 0,54(r/L)^3$. Le rapport $\dfrac{A_{BdP}}{A_n}$ est le rapport de l'aire d'un bord de Plateau sur l'aire d'un nœud, et vaut 0,42.

La résistance des bords de Plateau et des nœuds dépend de la mobilité des interfaces, elle a été étudiée par Pitois et al. [41], [42]. Il s'agit de la capacité des interfaces à s'écouler sous l'effet de l'écoulement de volume. Nous ne nous intéressons qu'au cas où ces interfaces sont « mobiles », qui correspond aux interfaces obtenues avec la solution de TTAB que nous utiliserons par la suite. La résistance d'un bord de Plateau est l'expression donnée par [43] et vaut

$$C_c = \frac{\eta \kappa_0 L}{A_{BdP} r^2} \tag{2.24}$$

avec $\kappa_0 = \dfrac{0,00655 Bo^{-1/2}}{0,209 + Bo^{0,628}} + 0.02$, la perméabilité du canal, le rapport $Bo = \dfrac{\mu_s}{\eta r}$ est le nombre de Boussinesq (avec η la viscosité du liquide et μ_s la viscosité des interfaces, il rend compte de l'importance relative de la dissipassion visqueuse en volume et en surface.

La figure 2.9 extraite de [34] représente la perméabilité adimensionnée (équation 2.23) en fonction de ϵ dans le cas d'une solution de TTAB à 3 g/l. Cette figure permet de comparer les expériences menées avec le modèle donné par l'équation 2.23.

Les paramètres ajustables sont la résistance des nœuds, et la mobilité de surface μ_s. Ils montrent que le fait de fixer le nombre de Boussinesq, c'est-à-dire de supposer que l'effet de la dissipation visqueuse de surface dépend du rayon de courbure des bords de Plateau (et donc de la fraction liquide dans la mousse) permet de mieux décrire leurs données.

2.1.4 Seuil d'écoulement, T1

Nous avons vu comment se déroulent les écoulements de liquide dans le réseau des bords de Plateau, alors que les bulles de la mousse sont censées être à des positions fixes. Nous allons maintenant nous intéresser à l'écoulement de la mousse à l'échelle macroscopique. Selon la fraction liquide qu'elle contient, la mousse ne s'écoule pas de la même manière. La mousse est un fluide à seuil, c'est-à-dire qu'il faut la contraindre suffisament pour qu'elle commence à s'écouler. De plus, le seuil dépend de la fraction liquide de la mousse et de la pression du liquide $\dfrac{\gamma}{r}$. Par ailleurs, plus la mousse est sèche, plus il est difficile de déplacer les bulles les unes par rapport aux autres. Le seuil de contrainte à appliquer à la mousse pour provoquer l'écoulement peut s'exprimer de la manière suivante :

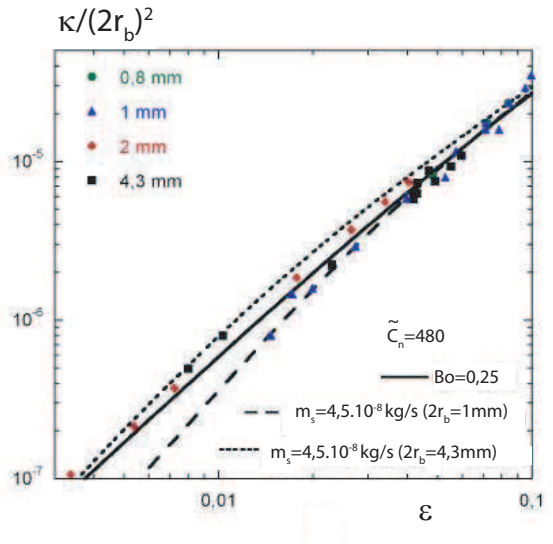


Fig. 2.9- Perméabilité de la mousse adimensionnée en fonction de ϵ pour une solution de TTAB à 3 g/l. La valeur de la résistance des nœuds adimensionnée $\tilde{C}_n$ est fixée à 480. Le fait de fixer la valeur de Bo (courbe pleine) permet de mieux décrire les données pour toute la gamme de tailles de bulles testées (de 0,8 mm à 4,3 mm). L'ajustement à μ_s fixé implique une dépendance en taille de bulles, qui n'est pas observé expérimentalement.

$$\tau_y = \beta \frac{\gamma}{r_b} (\epsilon_y - \epsilon)^2 \tag{2.25}$$

avec $\epsilon_y = 0,36$ la fraction liquide d'un empilement aléatoire de sphères, au delà de laquelle les bulles ne se touchent plus, et donc où les bulles peuvent se déplacer librement dans le liquide. Pour ces dernières, il n'existe plus de contrainte seuil à imposer à la mousse pour la déplacer. Le préfacteur β est sans dimensions, il a été mesuré par Rouyer et al. [44] pour une mousse dont la fraction liquide est inférieure à 1%. Il est de l'ordre de 0,5. Il varie avec la dispersion de taille des bulles. Ce seuil de contrainte est un critère permettant de caractériser la capacité de la mousse à s'écouler sous contrainte.

Une autre manière de mesurer ce seuil d'écoulement est de mesurer le seuil de contrainte imposée au delà de laquelle la mousse est déformée de manière irréversible. Pour des petites déformations, la mousse est élastique, c'est-à-dire que les bulles la constituant se déforment, mais cette déformation est réversible lorsque la contrainte qui impose cette déformation est relâchée. Pour de plus grandes déformations, des réarrangements de bulles les unes par rapport aux autres conduisent à une déformation plastique de la mousse.

Pour une mousse à trois dimensions, Rouyer et al [44]. ont mis en évidence la dépendance du seuil de déformation Γ_y avec le taux de cisaillement $\dot{\Gamma}$, pour une mousse sèche, à $\epsilon = 1\%$.

Par ailleurs, les travaux de Saint Jalmes et Durian [45] pour les mousses et de Mason et al. [46] pour les émulsions donnent une indication de la dépendance de Γ_y avec la fraction liquide. Ils trouvent expérimentalement que Γ_y est linéaire en fraction de ϵ la phase continue, sur la gamme des ϵ inférieurs à 10% qui nous concerne. Leurs résultats sont représentés sur la figure 2.10.

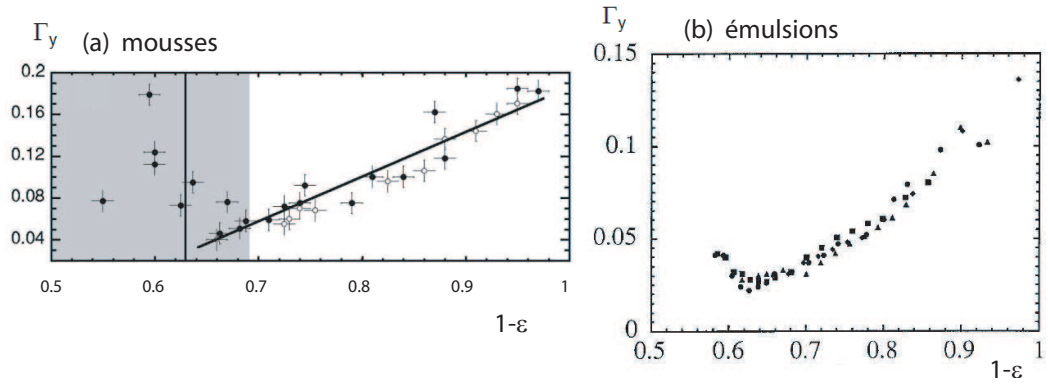


Fig. 2.10- Seuil de déformation Γ_y en fonction de la fraction en gaz. Dans le cas d'une mousse (a), les résultats sont ceux de Saint-Jalmes et Durian [45]. La zone en gris correspond aux fractions en gaz auxquelles le drainage du liquide peut avoir une incidence sur les mesures. Dans le cas d'une émulsion (b), les résultats sont ceux de Mason et al. [46], les différents symboles correspondent à différentes tailles de gouttes.

Par ailleurs, le seuil de réarrangement n'existe qu'à partir du moment où les bulles sont en contact les unes avec les autres, c'est-à-dire lorsque l'empilement compact de sphères dures est atteint, pour ϵ_y=0,36. Notons toutefois que la valeur de déplacement seuil n'atteint pas 0 à ϵ_y, puisque des sphères empilées se touchant sans se déformer ne sont pas libres de suivre le mouvement imposé par le cisaillement, en tout point. Elles sont déformées lorsqu'une contrainte leur est appliquée, et se réarrangent si cette dernière est trop grande (figure 2.11).

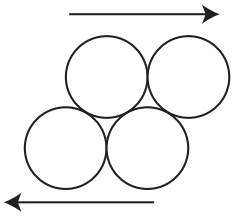


Fig. 2.11- Pour une mousse dont la fraction liquide atteint ϵ =0,36, Γ_y=0 n'est pas atteint puisque l'empilement compact des bulles les empêche de se déplacer librement. Elles peuvent donc se déformer sous contrainte sans que la déformation ne soit irréversible.

A l'échelle de quelques bulles, le réarrangement plastique de la mousse est appelé T1. Il s'agit pour une bulle donnée, de la perte de contact avec une voisine et de la création d'un nouveau contact avec une autre. Pour une mousse 2D, la figure 2.12 schématise un T1.

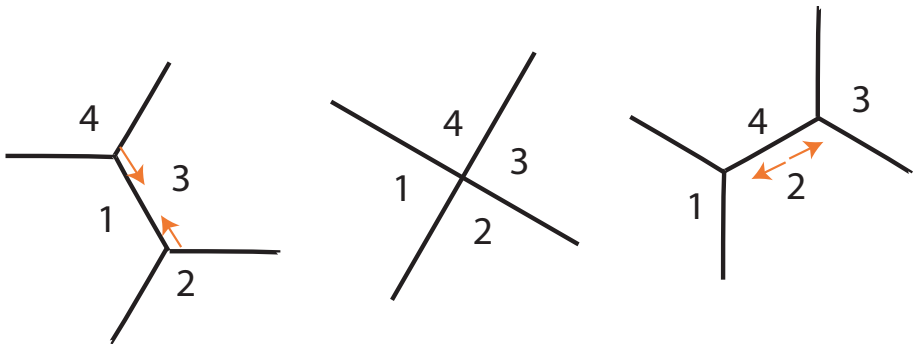


Fig. 2.12- Réarrangement 2D à l'échelle de 4 bulles : le film entre 1 et 3 disparaît à cause de la déformation appliquée, conduisant à un arrangement des bulles qui n'est pas stable, et qui va relaxer en créant le film entre 2 et 4.

Sun et Hutzler [47] ont étudié numériquement le nombre de réarrangements ayant lieu dans une mousse selon la fraction liquide. Leur expérience consiste à déplacer un disque dur de diamètre comparable à la taille moyenne des bulles $< r_b >$ dans une mousse polydisperse par pas de $0{,}37 r_b$ puis ils laissent la mousse relaxer jusqu'à son équilibre, et recommencent jusqu'à ce que le disque atteigne le bas de la cellule (à une distance de $10 < r_b >$). La figure 2.13 représente le nombre moyen de réarrangements par bulle N ayant lieu durant le parcours du disque pour différentes fractions liquides.

Sur la figure 2.13, nous constatons que le nombre de réarrangements par bulle varie selon la fraction liquide, mais pas de manière monotone. En effet, pour ϵ=7,2%, N atteint un maximum. Les auteurs expliquent cela par le fait que dans les mousses sèches, le déplacement des bulles les unes par rapport aux autres est difficile, vu la petite quantité de liquide présente dans le réseau de liquide, et la forte dépression dans les bords de Plateau qui maintient les bulles « collées » entre elles. Donc, plus ϵ est grand, moins la mousse est rigide et donc plus N est grand. Pour les mousses les plus humides (au delà de 7,2%), plus ϵ augmente, plus les bulles ont de place pour se déplacer et se déformer dans l'espace qui leur est attribué par l'empilement, et celà sans déplacer ou déformer les bulles voisines. Le nombre de réarrangements diminue alors avec la fraction liquide.

En forçant le passage d'une mousse à travers un pore, nous allons regarder comment les réarrangements des bulles à l'entrée du pore peuvent permettre l'écoulement de la mousse dans une constriction, dont la taille est comparable à la taille des bulles. Cela nous permettra d'établir des liens entre le comportement de la mousse à l'échelle de quelques bulles et celui

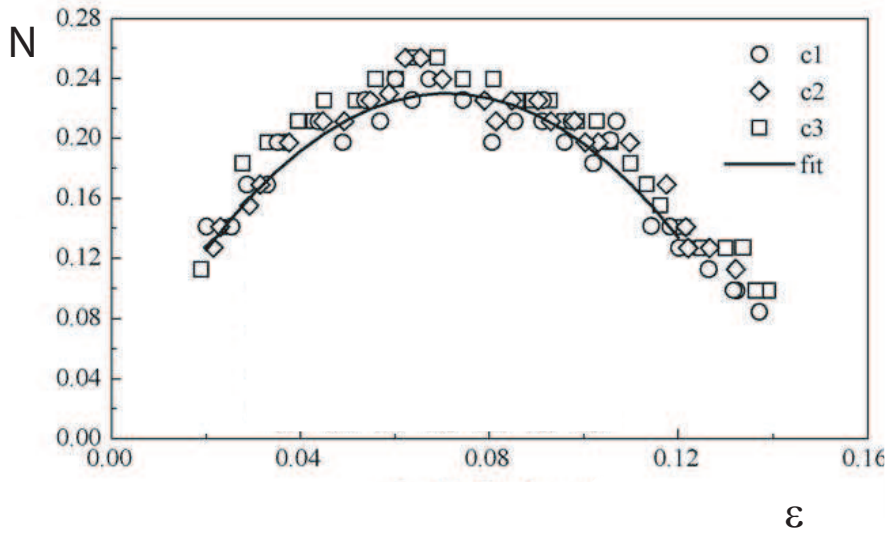


Fig. 2.13- Nombre moyen de réarrangements par bulle lors du passage du disque à travers la mousse pour différentes fractions liquides extrait de [47]. La courbe représente l'équation $N = 0,23 - 38,2(\epsilon - 0,072)^2$.

à l'échelle macroscopique.

2.2 Montage expérimental

La mousse est formée par bullage de diazote dans une solution moussante contenue dans une colonne transparente en plexiglass (figure 2.14). Nous avons utilisé deux colonnes différentes, une de 20 cm de haut, l'autre de 30 cm et respectivement de 2 ou 10 cm de diamètre selon la taille des bulles, de sorte qu'il y ait au moins 20 bulles par diamètre de colonne $2r_{colonne}$. On obtient une mousse de bulles monodisperses dont les rayons r_b des bulles obtenues sont compris entre 0,30 mm et 2 mm. Le tensioactif utilisé est le TTAB (tetradecyltrimethylammonium bromide) dissous à 3 g/l dans de l'eau pure MilliQ. La viscosité dynamique du liquide moussant est $\eta = 10^{-3}$ kg/m/s à la température du laboratoire ($23^\circ \pm 3$), sa masse volumique est $\rho = 10^3$ kg/m^3, sa tension de surface est $\gamma = 37$ mN/m.

Du liquide est versé en continu en haut de la colonne et un trop-plein permet l'évacuation du liquide par le bas. Cela engendre des conditions d'écoulement stationnaire dans tout le réseau de bord de Plateau, et permet ainsi de fixer la fraction liquide ϵ.

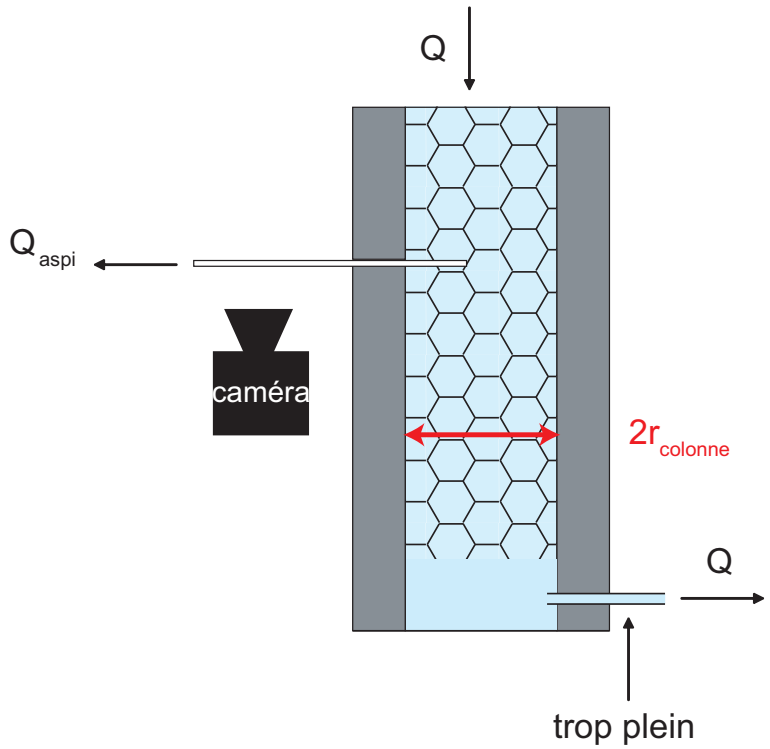


Fig. 2.14- Une mousse est formée dans une colonne de diamètre $2r_{colonne}$ =2 ou 10 cm. Du liquide moussant est versé avec un débit Q en haut de la colonne ; il s'échappe au même débit en bas, ce qui permet de maintenir la mousse sous conditions de drainage stationnaire. On aspire la mousse à l'aide d'un capillaire avec un débit Q_{aspi}.

2.2.1 Mousse stationnaire

2.2.1.1 Mesure de la taille des bulles

Deux méthodes ont été utilisées pour mesurer la taille des bulles. La première technique consiste à placer la mousse dans une cellule de type Hele-Shaw, dont l'espacement est très précisément connu. La mousse est prélevée en haut de la colonne, et placée entre deux plaques de verre séparées par des espaceurs de métal de 0,1 mm ou 0,2 mm. Nous mesurons l'aire des bulles à la paroi du verre, et en déduisons leur volume. Cette technique d'échantillonage sert à calibrer la seconde méthode, qui permet quant à elle d'effectuer des mesures directement à la paroi de la colonne, et qui est donc plus facile à mettre en place, ainsi nous suivons la taille des bulles tout au long de l'expérience.

Cette seconde méthode consiste à mesurer la longueur des bords de Plateau sur la paroi [38] pour remonter au rayon des bulles. Comme les bulles sont écrasées contre la paroi de la colonne, l'aire d'un film à la paroi est plus grande que l'aire d'un film en volume. Les bords

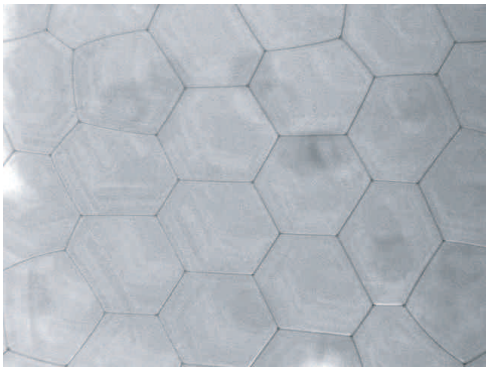


Fig. 2.15- Image de bulles écrasées entre deux plaques espacées de 0,1 mm.

de Plateau pariétaux sont alors plus grands que les bords de Plateau en volume. A la paroi, Cheng et Lemlich [48] ont montré que la surface d'un disque de rayon r_b présentée à la surface par des bulles sphériques est la même que l'aire des cellules de Kelvin. On trouve alors :

$$\pi r_b^2 = \frac{3\sqrt{3}}{2} L_{paroi}^2 \tag{2.26}$$

avec L_{paroi} la longueur d'un bord de Plateau en paroi. La valeur de r_b est donc donnée par l'expression 2.27 :

$$r_b = 0,91 L_{paroi} \tag{2.27}$$

Nous avons trouvé que $r_b = 0,84 \pm 0,03\ L_{paroi}$, et que la dispersion des tailles de bulles est inférieure à 5%. Nous avons utilisé la mesure à la paroi pour toutes les nouvelles colonnes de mousse étudiée.

A partir de la longueur des bords de Plateau en paroi, nous pouvons aussi remonter à la longueur L des bords de Plateau en volume. Avec les équations 2.26 et 2.6, nous trouvons que les rapport des longueurs de bords de Plateau en paroi et en volume est donné par le rapport :

$$L_{paroi}/L \simeq 1,5 \tag{2.28}$$

Nous avons vérifié la valeur du rapport à l'aide de la première méthode utilisée pour mesurer la taille des bulles, et avons trouvé qu'il est égal à 1,65±0,03. C'est cette valeur expérimentale que nous avons utilisée par la suite.

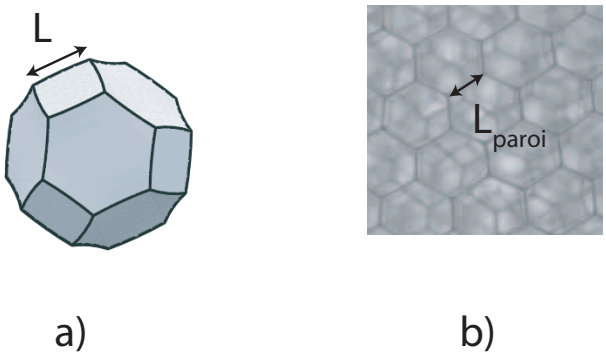


Fig. 2.16- a) Longueur l'un bord de Plateau dans une cellule de Kelvin. b) Longueur d'un bord de Plateau à la paroi de la colonne.

2.2.1.2 Fraction liquide

La fraction liquide de la mousse est mesurée par la « méthode du front » qui consiste à mesurer la vitesse du front de liquide développé lors du drainage forcé d'une mousse décrit plus haut. La figure 2.17 présente une image spatio-temporelle sur laquelle nous pouvons mesurer la vitesse de front. La zone claire correspond à la mousse sèche et la zone sombre à la mousse dont la fraction liquide est ϵ après le passage du front, lors d'une expérience de drainage forcé telle que celle décrite sur la figure 2.8.

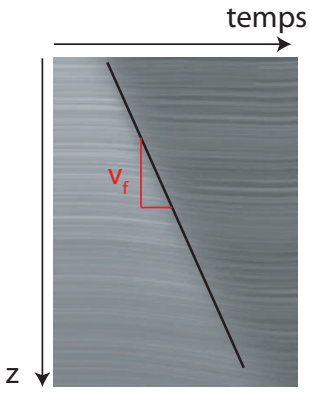


Fig. 2.17- Position du front de liquide au cours du temps, pour une mousse dont le rayon des bulles est de 0,5 mm, et la fraction liquide (dans la zone sombre après le passage du front) est de 7%. La pente de la droite noire donne la vitesse de front du liquide, qui correspond à la vitesse moyenne verticale du liquide dans les bords de Plateau.

Notons que l'ajout de liquide dans la colonne de mousse a pour conséquence de dilater le réseau liquide de cette dernière, et donc il existe une vitesse de remontée des bulles due à cette dilatation laquelle ne peut se faire que vers le haut, puisqu'en bas, la mousse repose

sur un bain de liquide. La vitesse v_f est donc à corriger d'un petit δv correspondant à cette remontée des bulles pendant le passage du front.

La vitesse du liquide dans les bords de Plateau est la vitesse de front mesurée sur la figure 2.17, c'est-à-dire la vitesse moyenne dans la direction verticale du débit Q passant à travers une surface accessible au liquide $\epsilon S_{colonne}$.

Nous calculons les valeurs de perméabilité adimensionnée $\kappa/(2r_b)^2$ mesurées à partir de la valeur du débit de liquide en haut de colonne (équation 2.20), et les valeurs de ϵ sont données par la mesure de vitesse de front v_f équation 2.29, et contrôlons qu'elles sont conformes à celles prévues par le modèle 2.23 (figure 2.18).

$$v_f = \frac{Q}{\epsilon S_{colonne}} \tag{2.29}$$

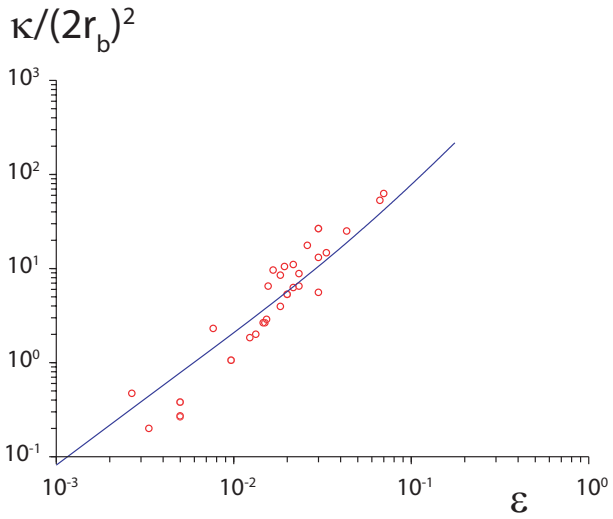


Fig. 2.18- La courbe représentant l'équation 2.23 est représentée en bleu, nos valeurs de perméabilité pour toutes les valeurs de r_b testées en fonction de ϵ sont les points rouges, et sont en bon accord avec le modèle de perméabilité, pour R_n=480 et Bo=0,25, comme sur la figure 2.9)

Pour obtenir de très faibles fractions liquides, nous utilisons la même colonne de mousse que précédemment, mais nous n'ajoutons pas de liquide en haut de la colonne. ϵ n'est alors plus uniforme sur toute la hauteur, comme nous pouvons le voir sur la figure 2.6 présentée précédemment. La mousse la plus sèche est située en haut de la colonne, mais nous ne contrôlons pas la valeur de ϵ comme dans l'expérience de drainage forcé. Pour déterminer la fraction liquide dans cette mousse, nous mesurons le rayon de courbure des bords de Plateau en paroi, et pouvons ainsi déterminer la valeur de ϵ par la relation 2.7.

A la paroi, la largeur d'un bord de Plateau est de $2r$, comme le montre la figure 2.19, nous

pouvons donc, à partir des mesures de L et r à la paroi calculer la valeur de ϵ.

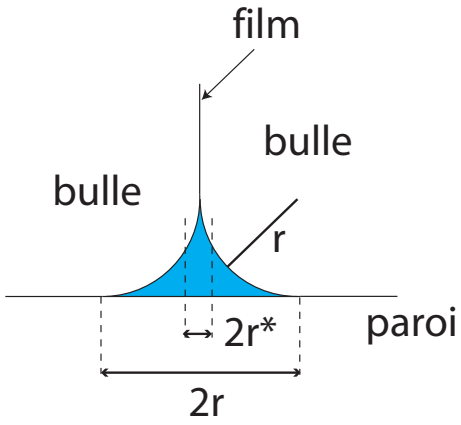


Fig. 2.19- La largeur d'un bord de Plateau mesurée en paroi correspond à $2r$.

Pour les fractions liquides les plus faibles, la largeur de bord de Plateau mesurée est plus petite que $2r$. En effet, le raccord entre le film et le bord de Plateau peut être très fin, comme le montre l'image 2.20 pour une mousse à 1% (mousse 10 fois plus humide que certaines des mousses que nous serons amenés à étudier), et devient difficilement mesurable pour les mousses les plus sèches, nous ne distinguons plus que la partie centrale du bord de Plateau $2r^*$.

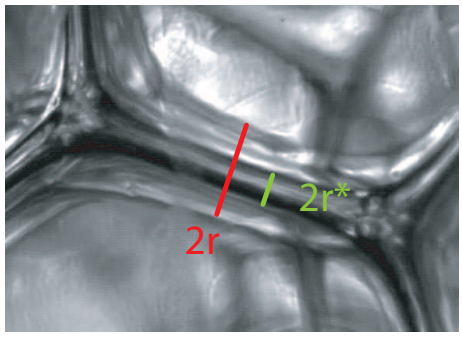


Fig. 2.20- Image d'un bord de Plateau pour un ϵ de l'ordre de 1%. La longueur $2r$ mesurée est celle permettant de retrouver la bonne fraction liquide. Pour les mousses les plus sèches, la limite entre le film et le bord de Plateau n'est plus visible à l'image, on ne mesure plus que $2r^*$

Nous utilisons alors une méthode de calibration qui consiste à fabriquer une mousse dans une colonne dont le haut est amovible (sur 3 cm). r est mesuré à la paroi de cette partie amovible. Celle-ci est ensuite séparée du reste de la mousse et pesée. Nous trouvons que la fraction liquide mesurée à la paroi est 16 fois plus petite que la valeur donnée par pesée. Nous ferons cette correction sur ϵ sur la mesure des fractions liquides calculées à partir des images de bords de Plateau à la paroi. Cette calibration est effectuée pour chaque taille de bulles, et n'est valable que pour nos conditions expérimentales.

2.2.2 L'aspiration

Un tube capillaire en verre (RingCaps) est placé à mi-hauteur, au centre de la colonne de mousse comme présenté sur la figure 2.14. Nous faisons remarquer que le haut et le bas de la mousse sont des zones de fraction liquide non homogènes, perturbées par les écoulements d'entrée et de sortie du liquide. En effet, en haut, le liquide arrive ponctuellement dans la mousse, et il faut une certaine distance, de l'ordre du diamètre de la colonne, pour qu'il se répartisse sur toute la section de la mousse. En bas de la colonne, la mousse est en contact avec un bain de liquide, et la fraction liquide ϵ est donnée par le profil d'équilibre : en bas de colonne la fraction liquide imposée par l'écoulement est inférieure à $\epsilon(z)$ (représenté sur la figure 2.6 b), la fraction liquide est donc différente de ϵ dans le centre de la colonne.

La longueur des capillaires utilisés est L_t=12,5 cm, et leur rayon r_t est compris entre 0,145 mm et 0,7 mm. Pour réaliser l'aspiration, le tube est relié à un pousse-seringue qui impose un débit d'aspiration comme schématisé sur la figure 2.14. Le passage de la mousse dans le tube est ainsi forcé tout au long de l'expérience. Nous filmons l'intérieur du tube au cours de l'aspiration. La fraction liquide dans le tube ϵ_{tube} est déterminée en pesant la masse de liquide entré $m = m_0 - \epsilon_{tube}\pi r_t^2 L_t$ (avec m_0 la masse du tube vide). La microbalance nous permet d'obtenir une précision sur la fraction liquide dans le tube $\epsilon_{tube} = \dfrac{m - m_0}{\pi r_t^2 L_t} = \pm 10^{-4}$. Nous avons constaté que lorsque les tubes sont sortis des mousses les plus humides, le film de liquide déposé à l'extérieur du tube n'est pas de masse négligeable. Nous essuyons donc tous les tubes avant de les peser. Nous avons par ailleurs vérifié que cet essuyage ne dépose pas de fibres pouvant peser elles aussi, et ainsi fausser la mesure de fraction liquide.

2.3 Résultats et discussions

Comme nous allons le voir, l'expérience présentée offre une riche variété de régimes d'entrée des phases gazeuse et liquide de la mousse, lorsque celle-ci est aspirée. En effet, le tube peut soit se replir de bulles, qui peuvent être fractionnées ou non, soit de liquide uniquement ou de

gaz uniquement. La figure 2.21 présente un diagramme des phases de ce que nous récupérons dans le tube, nous déterminons dans la suite quels sont mécanismes qui fixent les limites de ce diagramme.

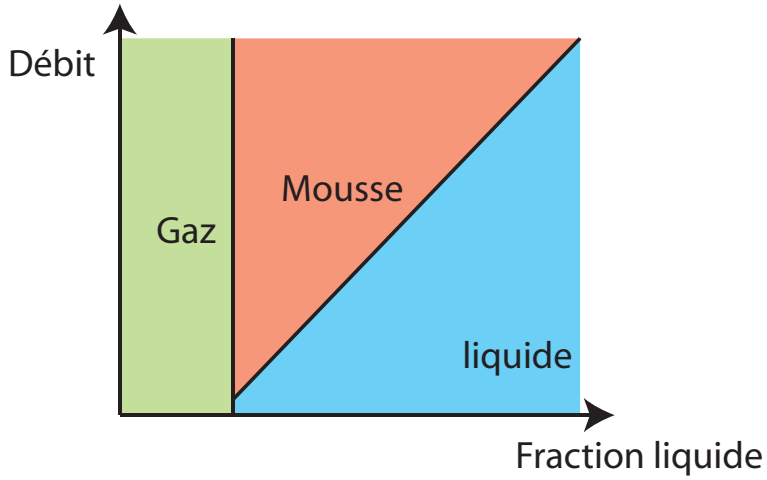


Fig. 2.21- Diagramme des phases représentant le fluide entrant dans le tube lors de l'aspiration : gaz seul en vert, liquide seul en bleu, une mousse en rouge.

2.3.1 Régime « mousse »

Dans le régime d'aspiration « mousse » des films de savon entrent dans le tube, comme présenté sur la figure 2.22. Dans la mesure où les bulles entrées ont un diamètre plus grand que celui du tube, la géométrie observée est celle d'une mousse « bambou », c'est-à-dire une série de films de savon espacés par des bulles d'air.

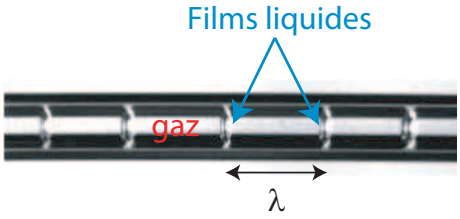


Fig. 2.22- Image d'un tube capillaire rempli de bulles.

2.3.1.1 Taille des bulles

Nous obtenons le volume des bulles en mesurant la distance λ entre deux films, et nous observons deux cas, l'un pour lequel les bulles entrent entièrement dans le tube, l'autre pour

lequel les bulles sont fractionnées. Sur la figure 2.23 est représenté le rapport du rayon des bulles dans le tube $r_{b(tube)}$ sur le rayon des bulles dans la mousse r_b en fonction du rapport r_b/r_t. $r_{b(tube)}$ est calculé comme le rayon équivalent qu'aurait une bulle de gaz de même volume que celui mesuré dans le tube : $r_{b(tube)} = \left(\frac{3}{4} r_t^2 \lambda\right)^{1/3}$.

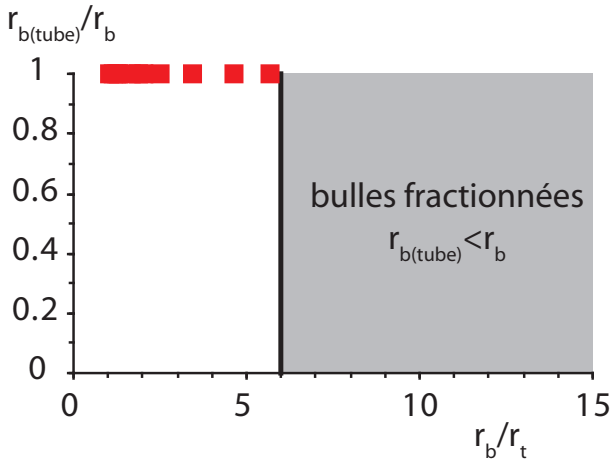


Fig. 2.23- Fraction de bulle entrant dans le tube. En rouge, les bulles entrent entièrement dans le tube. Au delà de r_b/r_t=6, les bulles entrant dans le tube sont fractionnées.

Il est classique de prédire le fractionnement d'une bulle dans un écoulement en comparant les forces visqueuses qui étirent la bulle dans le sens de l'écoulement, et les forces capillaires qui empêchent cette déformation. Le critère de fractionnement est basé sur une valeur critique du nombre capillaire $Ca = \eta v/\gamma$ avec v la vitesse de l'écoulement. La valeur critique Ca_c est de l'ordre de 10^{-2} donnée par Garsteki et al. [49] et de Menech et al. [50]. Nous traçons sur la figure 2.24 la variation du nombre capillaire avec le débit d'aspiration, pour différentes tailles de tube.

Comme les nombres capillaires calculés pour tous les tubes étudiés sont inférieurs ou proches de Ca_c, nous ne devrions pas pour les tubes les plus gros avoir de bulles fractionnées. Ce n'est pas le cas, en effet, la courbe 2.25 représente la dispersion de taille de bulles lorsqu'elles entrent entièrement dans le tube, pour des ϵ allant de 1.5% à 6.5%, des rayons de bulles allant de 0,5 mm à 0,7 mm et pour des tubes de 0,145 mm 0,3 mm et 0,5 mm.

Sur toute la gamme de débits d'aspiration utilisée, nous n'observons pas de vitesse d'aspiration coupure au delà de laquelle les bulles seraient fractionnées ; le critère pour sectionner les bulles dépend donc uniquement du rapport r_b/r_t. Le mécanisme est donc, dans notre expérience, différent de celui mettant en jeu les forces capillaires et visqueuses.

Pour comprendre ce qui conduit au fractionnement des bulles, nous filmons à la paroi de

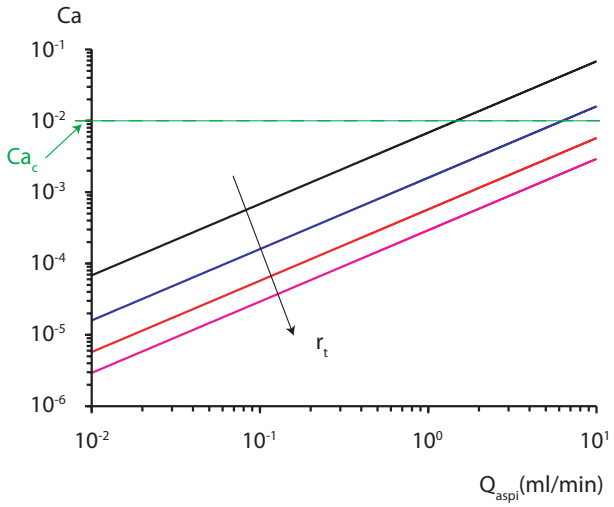


Fig. 2.24- Pour r_t =0,145 mm, 0,3 mm, 0,5 mm et 0,7 mm, les nombres capillaires sont inférieurs à la valeur critique Ca_c sur la pluspart des débits explorés pour les tubes de 0,145 mm et 0,3 mm et sur toute la gamme des débits pour les tubes de 0,5 mm et 0,7 mm.

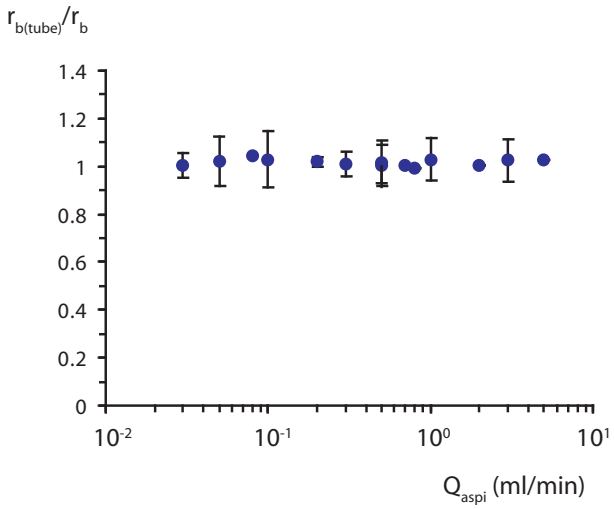


Fig. 2.25- Taille des bulles mesurées dans le tube par rapport à la taille des bulles dans la colonne pour $r_b/r_t < 6$, en fonction du débit d'aspiration, pour des mousses telles que $1.5 < \epsilon < 6,5$, $0,5 < r_b < 0,7$ et pour des tubes de 0,145, 0,3 et 0,5 mm. Les barres d'erreur correspondent à la variation maximale du rapport $r_{b(tube)}/r_b$ mesuré.

la colonne l'entrée du tube au cours de l'aspiration. Notons qu'il est probable que les arrangements de bulles en paroi soient différents de ceux en volume, mais les phénomènes conduisant au fractionnement des bulles sont supposés rester les mêmes. La figure 2.26 présente une série d'images à l'entrée d'un tube de 0,1 mm de diamètre. Le trou n'est pas visible sur les

images, nous ne voyons que le diamètre extérieur du tube qui correspond au cercle blanc sur la première image.

Nous voyons sur cette série d'images que les bulles qui sont devant le tube sont aspirées chacune leur tour. Lors de l'aspiration d'une bulle, un volume de gaz disparaît peu à peu dans le tube, cela provoque alors des déplacements des autres bulles, qui peuvent conduire au détachement de la bulle du tube, et seule une partie de la bulle est alors entrée dans le tube.

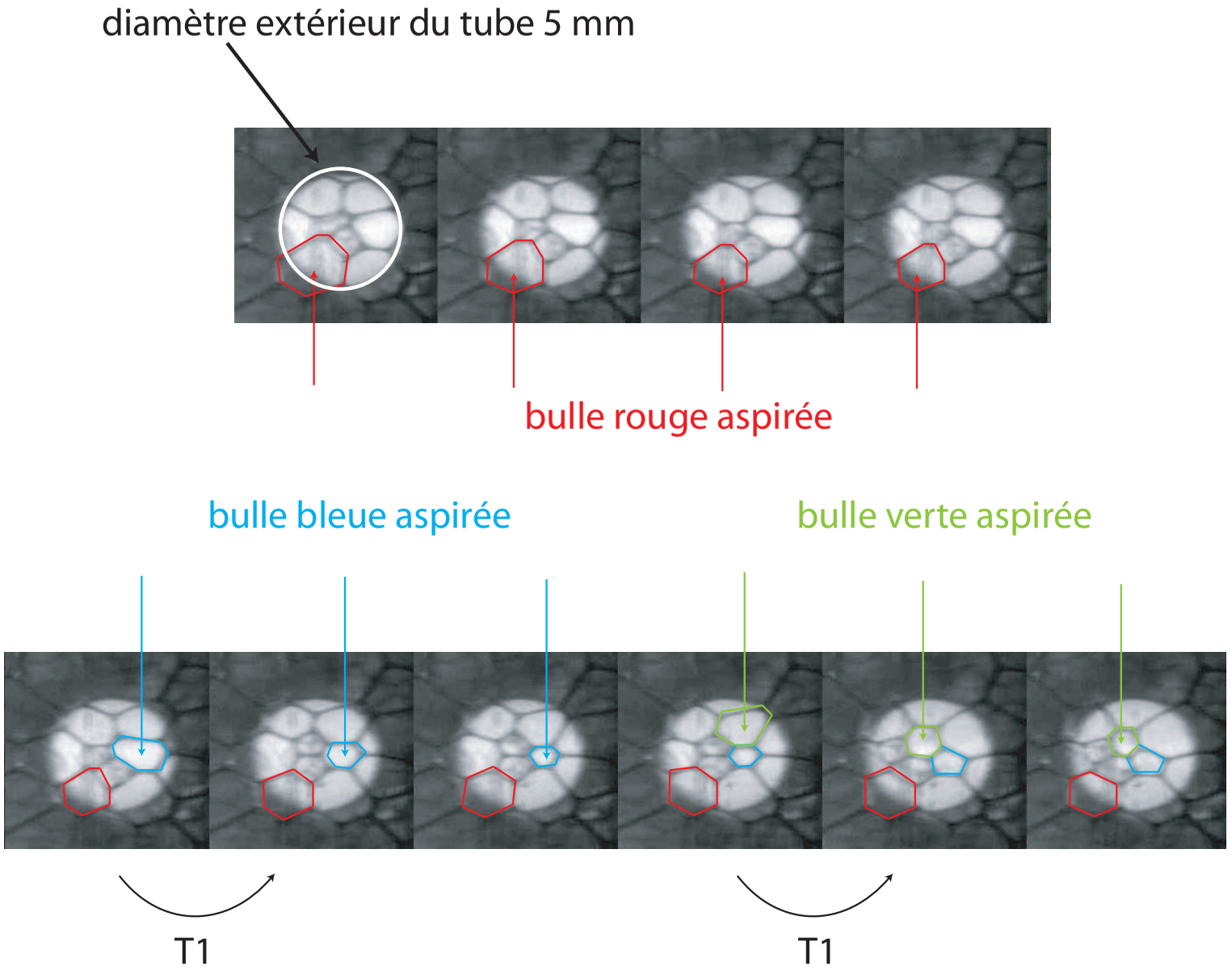


Fig. 2.26- Lorsqu'une bulle se présente devant l'entrée du tube, elle est aspirée, la variation de volume provoque un réarrangement et place une autre bulle devant le trou

Nous allons nous intéresser aux conditions nécessaires pour détacher une bulle du tube. Pour cela, nous regardons quelles sont les forces appliquées à une bulle en train d'être aspirée.

La figure 2.27 a) représente une bulle à l'entrée du tube entourée de ses voisines, lorsqu'au cours de l'aspiration, les contacts entre la bulle aspirée et ses voisines sont modifiés. Dans la configuration initiale, la bulle qui commence à entrer subit les forces appliquées par les voisines. Ces forces se compensent selon les différentes directions, jusqu'à ce qu'un des contact ne soit plus symétrique selon une direction. Nous nous intéressons à la configuration la plus défavorable, lorsqu'un contact disparaît entièrement entre deux bulles alors que les autres ne sont pas modifiés. Pour le calcul, nous résonnons sur une direction, celle qui relie les centres des bulles 1, 2 et 3, figure 2.27 b). Nous considérons le cas où la force exercée par la bulle 1 sur la bulle 2 est la même que dans la mousse, et que celle appliquée par 3 sur 2 devient nulle lors de l'entrée de la bulle 2 dans le tube.

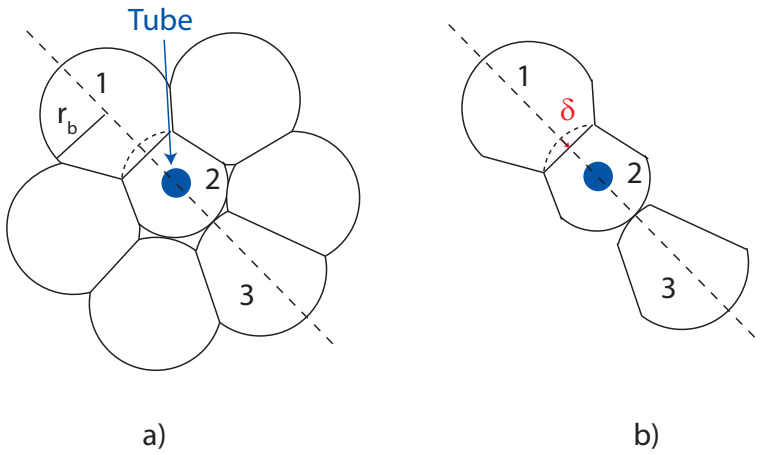


Fig. 2.27- a) Déséquilibre mécanique d'une bulle lors de son aspiration. b) La force exercée par la bulle 1 peut déplacer la bulle 2 et la détacher du tube si la force qui la retient au tube est plus faible.

La comparaison de la force $F_{1->2}$ exercée par la bulle 1 sur la bulle 2 qui tend à repousser cette dernière de l'entrée du tube, avec la force F_t exercée par le tube, qui retient la bulle devant l'orifice, nous donne le critère de détachement de la bulle du tube. Lorsque la bulle se détache du tube, la place est libre pour qu'une autre bulle se fasse aspirer ; la quantité de gaz entrée est donc une fraction de la quantité du gaz contenue dans la bulle.

La force $F_{1->2}$ a été calculée par Lacasse et al. [51], il s'agit de la force exercée par la pression de Laplace $\frac{2\gamma}{r_b}$ sur ΔS qui est la différence de surface entre la bulle non déformée πr_b^2 et la surface déformée $\pi(r_b - \delta)^2$. On obtient donc :

$$F_{1->2} = \frac{2\gamma}{r_b}\left(\pi r_b^2 - \pi(r_b - \delta)^2\right) \tag{2.30}$$

D'où :

$$F_{1->2} \simeq 4\pi\gamma\delta \tag{2.31}$$

La valeur de δ est la valeur de la déformation produite par la force exercée par la bulle 1 sur la bulle 2, au sein de la mousse. Cette valeur a été calculée par Lacasse et al. [51], et vaut, dans le cas d'une mousse sèche $\sim 0,095 r_b$.
La force F_t exercée par le tube pour retenir la bulle est de l'ordre de :

$$F_t \simeq 2\pi\gamma r_t \tag{2.32}$$

En égalisant ces deux forces, on trouve un rapport $r_b/r_t \simeq$6,5. Bien que nous n'ayons pas étudié en détail le phénomène de fractionnement, ce résultat est en bon accord avec nos premières observations, à savoir $r_b/r_t \simeq 6$ (figure 2.23).

Le mécanisme de fractionnement présenté ici se distingue du mécanisme classique pour une bulle cisaillée dans un pore, où le fractionnement est gouverné par le nombre capillaire défini plus haut (figure 2.24).

2.3.1.2 Fraction liquide dans le tube

La fraction liquide ϵ_{tube} de la mousse entrée dans le pore est déterminée par pesée : nous l'avons reportée en fonction de ϵ sur la figure 2.28. Comme le montre cette figure on a toujours $\epsilon_{tube} > \epsilon$.

La valeur de ϵ_{tube} ne dépend ni de r_t, ni de r_b, mais seulement de ϵ, nous allons donc nous intéresser au volume de liquide disponible V_d autour d'une bulle. Nous avons vu lors du calcul de ϵ que le volume des nœuds est partagé par 4 bulles, celui des bords de Plateau par 3 bulles et celui des films par 2 bulles. Lorsqu'une bulle entre dans le tube, la quantité de liquide disponible est donc $V_d = 4V_n + 3V_{BdP} + 2V_f$. En négligeant le volume des films, on trouve une fraction de liquide disponible par bulle $\frac{V_d}{V} \simeq 3\epsilon$. La fraction de liquide entraînée avec une bulle est donc :

$$\epsilon^e = A\epsilon \tag{2.33}$$

avec A compris entre 1 et 3, selon que la bulle n'entraîne que le volume de liquide qui lui est attribué ou tout le liquide disponible autour d'elle.

Sur la figure 2.28, on remarque que tous les points ne convergent pas vers $\epsilon_{tube} = 0$, mais vers une valeur autour de 3 quand $\epsilon \to 0$. Il existe donc une quantité de liquide en excès par

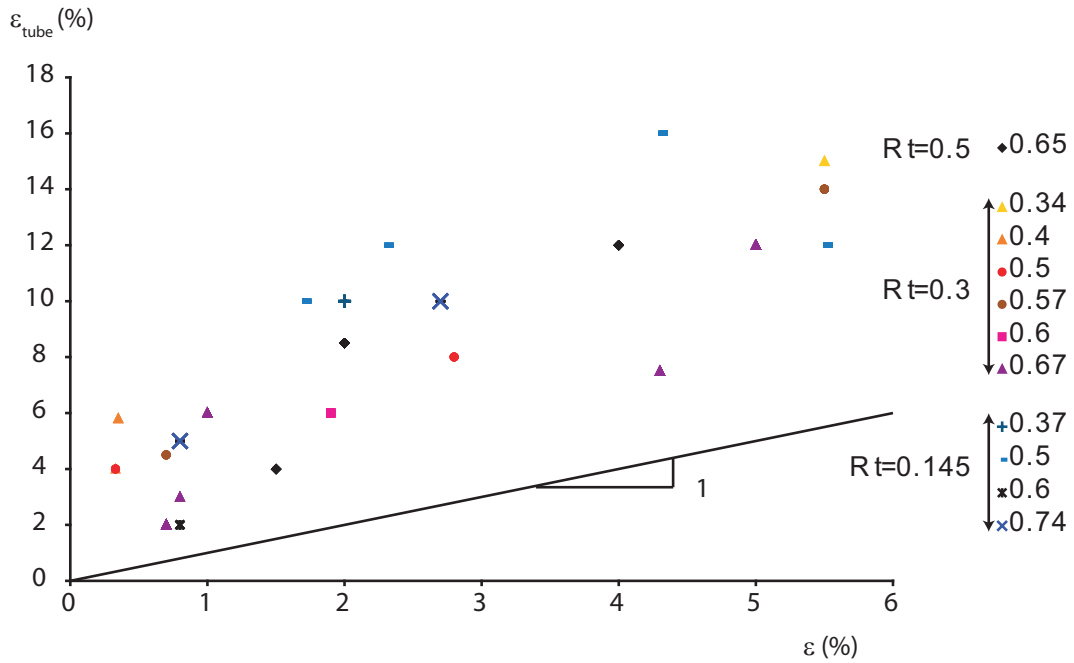


Fig. 2.28- Fraction liquide dans le tube comparée à la fraction liquide dans la mousse pour toutes nos valeurs à savoir r_t=0,145 mm, 0,3 mm 0,5 mm, 0,7 mm et 0,31< r_b <1,75. La mousse dans le tube est systématiquement plus humide que la mousse initiale. Il semble de plus que pour ϵ=0, la fraction liquide dans le tube ne soit pas nulle.

rapport à la quantité de liquide liée à ϵ, et qui entre systématiquement dans le tube, dès que l'aspiration a lieu. Nous allons à présent chercher à calculer la valeur de cette ordonnée à l'origine.

Lorsqu'une bulle commence à être aspirée, elle est déplacée de la mousse vers le tube. Ce déplacement peut conduire au réarrangement des bulles alentour pour combler le vide laissé par la bulle aspirée. Pour provoquer un réarrangement, il faut que la déformation atteigne une valeur seuil Γ_y, en-dessous de laquelle, chaque bulle garde ses voisines.

Donc, lors de l'aspiration, la mousse ne se réarrange pas forcément tant que le déplacement d'une bulle d/r_b reste inférieur à Γ_y. Il se crée donc un espace libre à l'arrière de la bulle, comme présenté sur la figure 2.29. Le volume correspondant est de l'ordre de d^3. Il se remplit de liquide tant $d/r_b < \Gamma_y$, c'est-à-dire tant que les bulles alentour ne se déplacent pas pour venir combler l'espace. Le passage de la bulle dans le tube est donc suivi par le passage de ce volume de liquide, qui vient augmenter la fraction liquide mesurée dans le tube d'une valeur de l'ordre de d^3/V. L'expression de d est donc reliée à la capacité de la mousse à encaisser cette déformation, et nous avons vu dans la partie 2.1.4 que Γ_y varie linéairement avec ϵ, et ce phénomène ne peut être observé qu'à partir où les bulles se touchent entre elles, c'est à

dire lorsque la fraction liquide est égale à 0,36. De plus, la longueur dépend de la longueur caractéristique du problème, à savoir ici r_b. Nous en déduisons donc une expression de d :

$$d \simeq r_b \Gamma_y \sim (0,36 - \epsilon)\, r_b \tag{2.34}$$

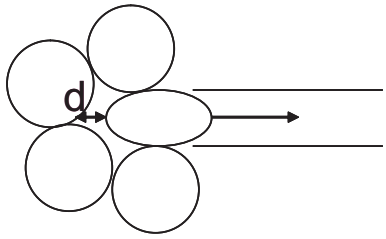


Fig. 2.29- L'aspiration d'une bulle créé une déformation de la mousse autour de l'entrée du tube. Le réarrangement n'a lieu que lorsque Γ_y est atteint. Tant que la déformation est inférieure à Γ_y, du liquide prend la place de la bulle en cours d'aspiration, et vient augmenter le volume de liquide entraîné dans le tube derrière la bulle.

Le volume entrainé avant que ne se produise un réarrangement, permet de calculer la fraction de liquide ϵ^+ en surplus entrant dans le tube, c'est-à-dire le volume de liquide entrant à l'arrière de la bulle d^3 par volume de bulle V :

$$\epsilon^+ = B\frac{d^3}{V} \tag{2.35}$$

où B est une constante sans dimensions, que nous ajusterons par la suite.

Finalement, la fraction liquide entrant dans le tube est la somme de la fraction liquide entraînée dans le tube avec une bulle ϵ^e et de la fraction liquide par bulle provenant de l'espace laissé par le gaz durant l'aspiration ϵ^+

$$\begin{aligned} \epsilon_{tube} &= \epsilon^e + \epsilon^+ = A\frac{V_d}{V} + B\frac{d^3}{V} \\ \epsilon_{tube} &= A\epsilon + B'\,(0,36 - \epsilon)^3 \end{aligned} \tag{2.36}$$

Nous avons tracé cette expression de ϵ_{tube} sur la figure 2.30 et obtenu A=2 et B'=2,8 par ajustement sur les valeurs expérimentales. Notons que la variation en $(0,36-\epsilon)^3$, est faible puisque les valeurs de ϵ sont au maximum égales à 0,06. Ce deuxième terme fixe donc essentiellement l'ordonnée à l'origine vers laquelle tendent nos points expérimentaux.

Lorsqu'une bulle entre dans le tube, elle entraîne avec elle plus de liquide que ce qui lui est attribué par la fraction liquide de la mousse. L'écoulement de drainage permet largement d'alimenter en liquide la mousse située près de l'entrée du tube puisque le débit de liquide injecté est toujours 10 à 100 fois supérieur au débit d'aspiration.

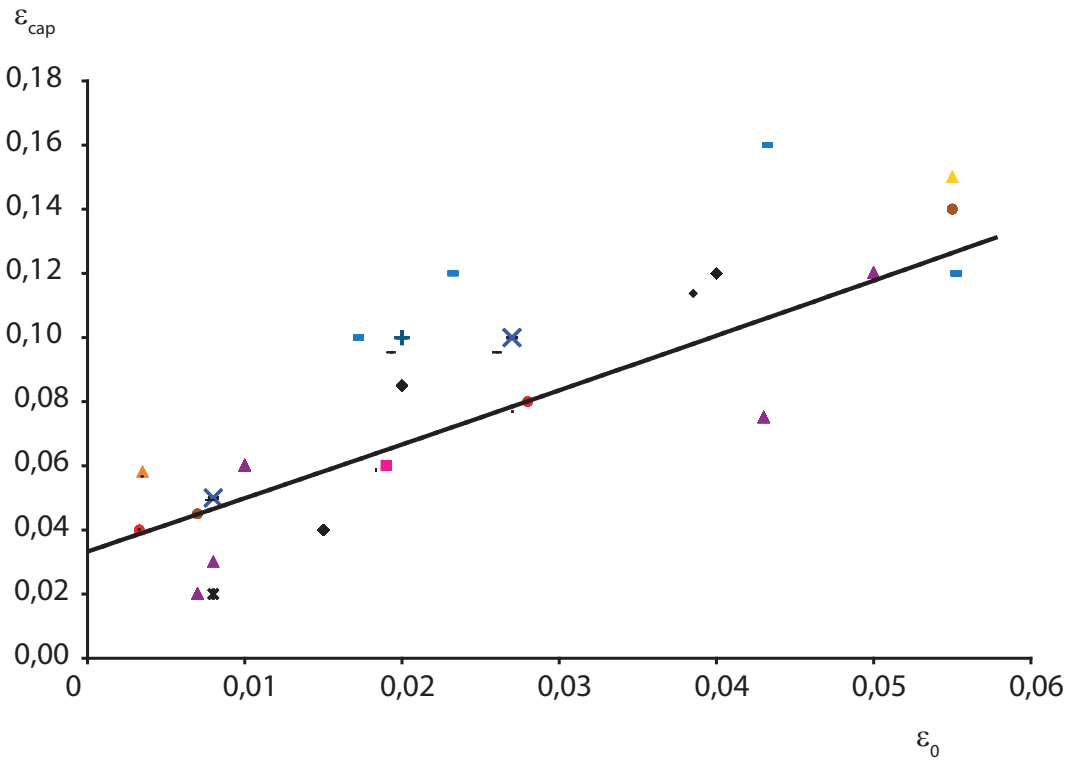


Fig. 2.30- Fraction liquide dans le tube en fonction de la fraction liquide dans la mousse. La courbe bleue représente l'équation 2.36.

2.3.2 Régime « liquide »

2.3.2.1 Effets conjugués du débit d'aspiration et de la fraction liquide

La figure 2.31 représente la fraction liquide ϵ_{tube} mesurée dans le tube en fonction de Q_{aspi}. Il existe un débit d'aspiration seuil, Q^*_{aspi} tel que : si $Q_{aspi} > Q^*_{aspi}$ nous sommes dans le régime mousse et des bulles entrent dans le tube, comme nous l'avons présenté dans la partie précédente (notons que dans le cas présenté ici les rapports r_b/r_t autorisent l'entrée de bulles entières). Si $Q_{aspi} < Q^*_{aspi}$, ϵ_{tube} est proche de 100%, le tube est rempli de liquide. Si la valeur de 100% n'est jamais atteinte, c'est parce qu'à chaque début d'expérience, une ou plusieurs bulles entrent, et le régime d'aspiration de liquide est rejoint plus tard.

Plus la fraction liquide de la mousse dans la colonne est élevée, plus Q^*_{aspi} est grand. On remarque que, les mousses ayant la plus petite fraction liquide ne présentent pas de seuil, sur la gamme des débits explorée. En effet, les débits Q_{aspi} que nous pouvons utiliser dans cette expérience sont limitées par le temps de mûrissement de la mousse. En effet quand ce temps devient comparable au temps nécessaire à aspirer une bulle (à 0.01 ml/min, il faut 20 minutes pour remplir le plus gros tube), la mousse mûrit, les bulles se réarrangent et créèent ainsi des

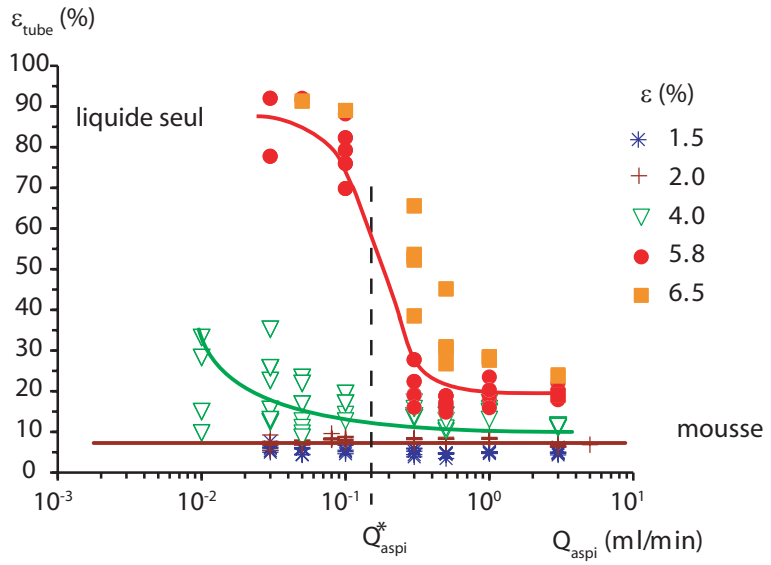


Fig. 2.31- Fraction liquide dans le tube ϵ_{tube} selon le débit d'aspiration Q_{aspi}, pour différentes tailles de bulles et fractions liquides dans la colonne. Pour $Q_{aspi} > Q^*_{aspi}$, des bulles passent dans le tube. Pour $Q_{aspi} < Q^*_{aspi}$, on trouve des ϵ_{tube} proches de 100%. Les lignes pleines sont des guides pour mettre en évidence l'existence du seuil. Nous avons représenté sur cette figure la valeur de Q^*_{aspi} pour ϵ=5,8%.

mouvements dans la mousse qui n'ont pas, ou très peu, lieu aux temps plus courts.

Afin de comprendre les mécanismes qui contrôlent l'entrée du liquide dans le tube, nous filmons son entrée lors de l'aspiration (figure 2.32. Comme précédemment, nous approchons le tube de la paroi de la colonne, ce qui nous permet d'observer la première rangée de bulles.

Ces observations révèlent que pour $Q_{aspi} > Q^*_{aspi}$, les bulles se positionnent chacune leur tour devant l'entrée, pour y être aspirées. Les bulles ne passent dans le tube que lorsqu'un réarrangement se produit et place une bulle devant le tube. Comme nous imposons le débit d'aspiration, nous réussissons toujours à la faire passer dans le tube puisque nous ne sommes pas limités en pression. Un réarrangement a alors lieu, et une nouvelle bulle se retrouve devant l'entrée.

Lorsque $Q_{aspi} < Q^*_{aspi}$, on retrouve toujours la même configuration de bulles, comme sur la figure 2.32 a). Les bulles s'organisent en cluster et résistent mécaniquement à l'entrée du tube permettant ainsi au liquide d'entrer seul.

Le passage du liquide seul dans le tube est donc dû à la formation d'un « cluster » de bulles à l'entrée. Nous allons à présent déterminer quelles sont les conditions pour maintenir ce cluster en place, et donc maintenir l'écoulement stationnaire entre la mousse et le tube.

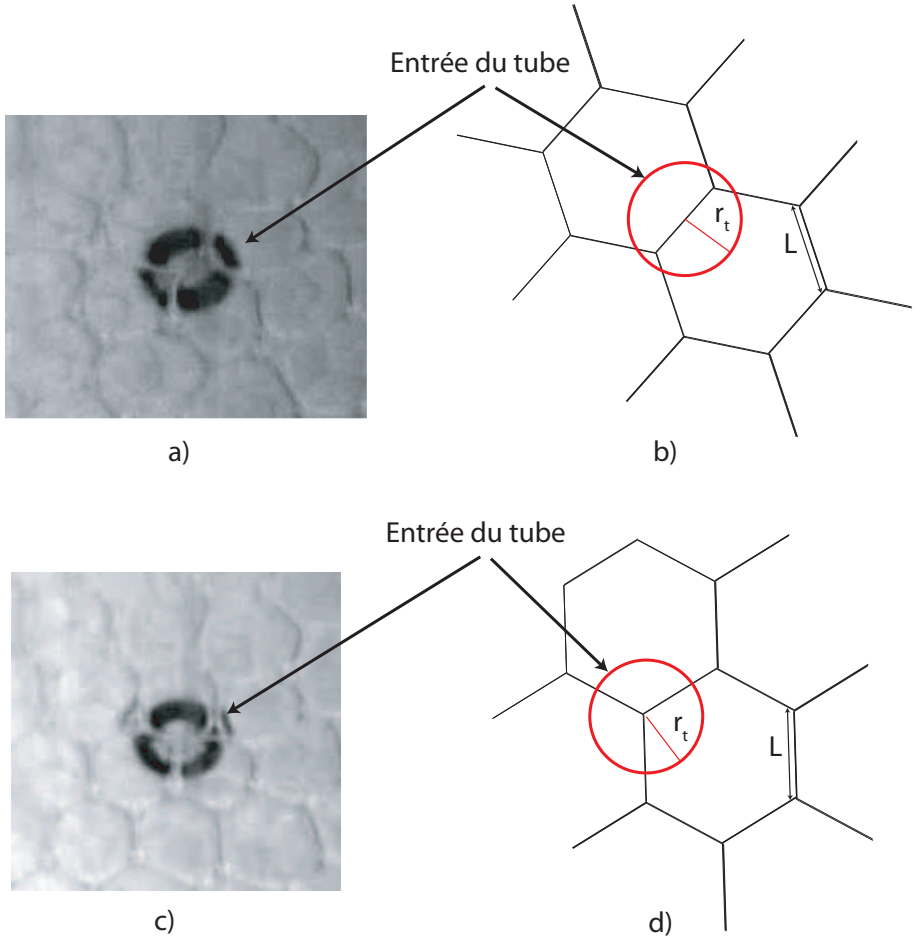


Fig. 2.32- Lorsque le tube se remplit de liquide seul, on retrouve toujours la même configuration de bulles à l'entrée du tube. Selon la taille des bulles et la taille du tube, l'entrée de celui-ci sera centrée soit sur un bord de Plateau (a, r_t=0,3 mm, r_b= 1,3 mm), soit sur un nœud (c, r_t=0,145, r_b=1,3 mm). Les images a) et c) ont été prises à la paroi. Les figures b) et d) schématisent ces situations.

2.3.2.2 Modélisation du débit seuil

Les bulles à l'entrée du tube sont bloquées dans la configuration schématisée sur la figure 2.32. Un écoulement de liquide est alors établi entre le réseau des bords de Plateau et le tube. Le fait d'aspirer le liquide des bords de Plateau, c'est-à-dire d'imposer un débit, engendre une dépression à l'entrée du tube, à laquelle la section des bords de Plateau s'adapte, en accord avec la loi de Laplace. La fraction liquide à l'entrée du tube est alors réduite elle aussi, en proportion de la dimension des sections des bords de Plateau. Il existe donc une zone autour de l'entrée du tube dans laquelle il y a un gradient de fraction liquide. Cette situation est schématisée sur la figure 2.33, la fraction liquide atteint une valeur minimale ϵ_{min} à l'entrée

du tube, et atteint la valeur de ϵ à une distance R de l'entrée du tube.

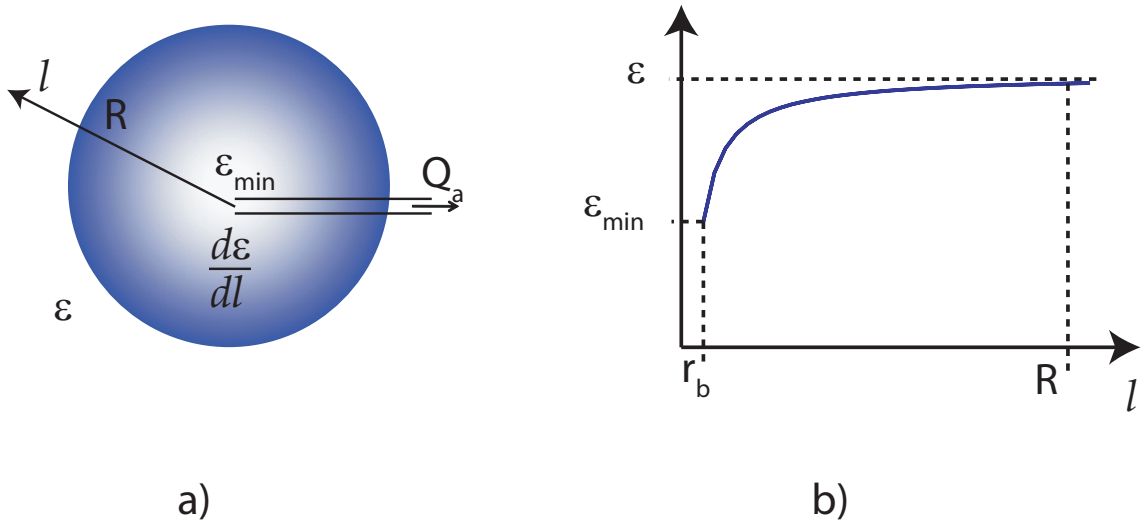


Fig. 2.33- Il existe un gradient de fraction liquide dans la zone autour de l'entrée du tube, à cause de la dépression que provoque l'aspiration dans les bords de Plateau. À la distance $l = r_b$, la fraction liquide vaut ϵ_{min}, elle atteint la fraction liquide de la mousse à la distance $l = R$.

Rappelons l'expression de ϵ en fonction de r_b :

$$\epsilon \simeq 0,3 \left(\frac{r}{r_b}\right)^2 \tag{2.37}$$

La loi de Laplace, qui donne la différence de pression entre le liquide et le gaz (2.9), nous permet de relier $\frac{d\epsilon}{dl}$ au gradient de pression dans la zone :

$$P_l = P_g - \frac{\gamma}{r} = P_g - \frac{\gamma}{r_b\sqrt{3}\epsilon^{1/2}} \Rightarrow \frac{dP_l}{dl} = \frac{\gamma}{2\sqrt{3}}\epsilon^{3/2}\frac{d\epsilon}{dl} \tag{2.38}$$

La vitesse débitante dans la mousse est donnée par la loi de Darcy, comme dans l'équation (2.16) :

$$v_d\vec{u} = -\frac{\kappa}{\eta}\left(\vec{\nabla}P - \rho\vec{g}\right) \tag{2.39}$$

Nous considérons que l'écoulement provoqué par les forces de gravité ne participe pas réellement à l'alimentation du tube en liquide, et peut être découplé de celui provoqué par l'aspiration. Nous effectuons la suite de nos calculs selon l'axe radial l (figure 2.33 a), qui est la direction moyenne de l'écoulement provoqué l'aspiration du liquide. L'expression de la vitesse devient alors :

$$v(l) = -\frac{\kappa}{\eta}\frac{dP_l}{dl} \tag{2.40}$$

La perméabilité de la mousse dans le cas d'une solution de TTAB vaut $\kappa = 2,7.10^{-3}\epsilon^{3/2}r_b^2$, avec les équations (2.40) et (2.38) l'expression de la vitesse devient donc :

$$v(l) = 7,8.10^{-4} r_b \frac{\gamma}{\eta}\frac{d\epsilon}{dl} \tag{2.41}$$

Par ailleurs, $Q_{aspi} = 4\pi l^2 v(l)$ d'où :

$$7,8.10^{-4} r_b \frac{\gamma}{\eta}\frac{d\epsilon}{dl} = \frac{Q}{4\pi l^2} \tag{2.42}$$

ou encore

$$\frac{d\epsilon}{dl} = \frac{Q\eta}{10^{-2} r_b \gamma l^2} \tag{2.43}$$

Le débit au seuil peut à présent être calculé. C'est le débit de liquide maximal qui peut être imposé à la mousse pour que la fraction liquide à l'entrée du tube (sur une longueur de l'ordre d'une taille de bulle) atteigne une valeur ϵ_{min}. Loin de l'entrée du tube (à une distance R telle que $1/R^2 << 1/r_b^2$), la fraction liquide est toujours ϵ. On obtient par l'intégration de 2.43 :

$$\int_{\epsilon}^{\epsilon_{min}} d\epsilon = \frac{Q^*_{aspi}\eta}{10^{-2} r_b \gamma} \int_{\infty}^{r_b} \frac{dl}{l^2} \tag{2.44}$$

Finalement, le débit d'aspiration seuil s'écrit :

$$Q^*_{aspi} = 10^{-2}\frac{\gamma}{\eta} r_b^2 \left(\epsilon - \epsilon_{min}\right) \tag{2.45}$$

Nous cherchons à présent à estimer la valeur de ϵ_{min}, qui est la valeur minimale de fraction liquide à l'entrée du tube pour qu'il y ait pénétration du liquide seul. Si la fraction liquide imposée par l'aspiration est inférieure à ϵ_{min}, le cluster de bulles ne peut pas être maintenu à l'entrée du tube, et les bulles passent dans le tube. Nous nous intéressons à la géométrie des bulles en contact avec le tube. Comme on peut le voir sur la figure 2.34, les tubes les plus gros ne peuvent pas supporter une trop grande déformation des bulles à l'entrée. Si les bulles se déforment trop, une des bulles concernées pourra entrer dans le tube (cas du tube bleu sur la figure 2.34). Au contraire, si le tube est très petit (tube rouge sur la même figure), les bulles peuvent davantage se déformer, et donc ϵ_{min} être plus faible, sans qu'aucune des bulles ne puisse entrer, du fait de la répartition symétrique des bulles autour de l'entrée du tube.

Le passage d'une bulle dans l'espace laissé libre à l'entrée du tube est difficile à prévoir. On peut néanmoins s'attendre à ce que ce soit essentiellement le rapport entre le rayon des bords de Plateau r et le rayon du tube r_t qui le détermine. Puisque r est relié à r_b et ϵ, nous cherchons une relation du type $\epsilon_{min} = f\left(\frac{r_t}{r_b}\right)$ la plus simple possible. Nous trouvons que la

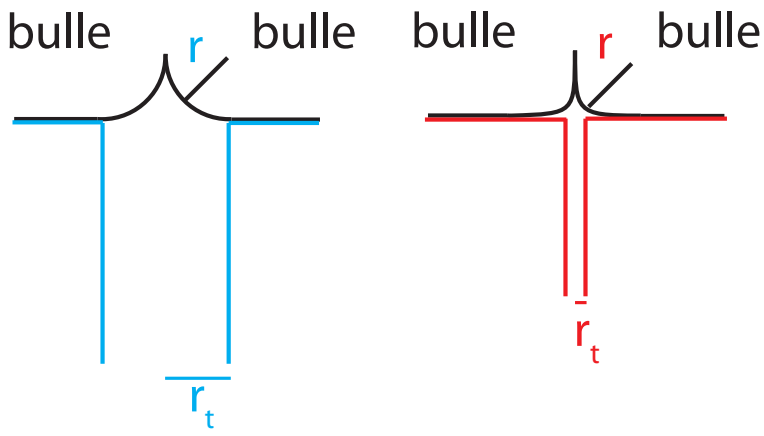


Fig. 2.34- La valeur de ϵ_{min} dépend de la capacité des bulles à se déformer sans entrer dans le tube. Dans le cas du petit tube rouge, la valeur de ϵ_{min} est bien plus faible que celle dans le cas du tube bleu.

relation $\epsilon_{min} = b\left(\frac{r_t}{r_b} - 0,3\right)$, qui a été obtenue par ajustement à nos données expérimentales, permet de décrire correctement nos données. Ainsi, nous proposons :

$$\begin{aligned} \epsilon_{min} &= 0 \qquad && pour\ r_t/r_b < 0,3 \\ \epsilon_{min} &= b\left(\frac{r_t}{r_b} - 0,3\right) \qquad && pour\ r_t/r_b > 0,3 \end{aligned} \tag{2.46}$$

La figure 2.35 montre le bon accord entre nos mesures et le débit calculé par l'équation (2.45). Aux plus grands débits seuils, cet accord est moins bon. En effet, ces valeurs élevées de Q^*_{aspi} correspondent aux grandes valeurs de ϵ. Dans ce cas, un certain nombre de nos hypothèses ne sont plus vérifiées, comme la relation qui donne κ en fonction de ϵ, qui sous-estime la perméabilité des mousses les plus humides, et donc celle de Q^*_{aspi}.

Le remplissage du tube par du liquide seul au cours de l'aspiration est déterminé par le fait que des bulles peuvent être bloquées devant l'entrée du tube. Pour forcer une bulle à passer dans le tube alors que le système est dans un état bloqué il suffit de diminuer la fraction liquide à l'entrée du tube (c'est-à-dire augmenter le débit d'aspiration), pour déformer suffisament les interfaces, rompre la symétrie du cluster, et libérer une bulle.

2.3.3 Régime « gaz »

Nous allons à présent nous intéresser au cas où le tube ne se remplit que de gaz. Pour les fractions liquides les plus faibles, et pour tous les débits d'aspiration, nous n'observons plus de « mousse bambou » dans le tube. Il n'y a plus de liquide qui entre, seulement la phase

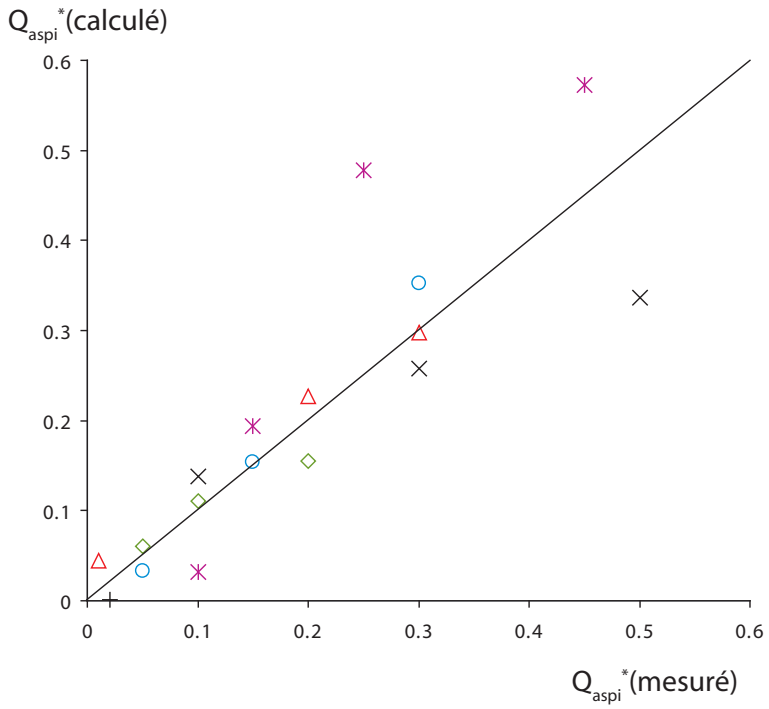


Fig. 2.35- Comparaison du débit d'aspiration seuil calculé grâce à l'équation 2.45 avec nos mesures, pour différentes fractions liquides et rapports r_t/r_b, avec b=0,076 dans l'équation 2.46. Losanges verts : r_t=0,3 mm, r_b=0,34 mm ; cercles bleus : r_t=0,3 mm, r_b=0,60 mm ; étoiles mauves : r_t=0,3 mm, r_b=0,75 mm ; triangles rouges : r_t=0,5 mm, r_b=0,65 mm ; croix noires : r_t=0,145 mm, r_b=0,50 mm.

gazeuze, ce qui signifie que les bulles coalescent avant d'entrer. C'est en effet ce que nous observons dans la mousse : elle casse rapidement lorsque l'aspiration débute, sur une zone plus ou moins importante.

Il s'agit d'avalanches de ruptures ayant lieu dans une mousse qui est pourtant stable avant l'aspiration. D'ailleurs, si on considère que la mousse est stable tant que les films de savon qui la constituent sont stables, c'est-à-dire tant que la pression de disjonction (équation 2.11 pour l'expression de Π) critique Π_c n'est pas atteinte (partie 2.1.2).

Nous pouvons nous demander si la rupture de la mousse n'est pas due au fait que lorsqu'une bulle passe dans le tube elle emporte plus de liquide que ce qui lui est attribué, comme nous l'avons vu dans la partie 2.3.2. Pour cela nous avons fait l'expérience qui consiste à insuffler du gaz dans la mousse au lieu d'aspirer. Le phénomène est alors le même, la mousse casse lorsque l'air entre. Nous en concluons donc que c'est la mise en écoulement de la mousse qui provoque la coalescence autour de l'extrémité du tube.

En forçant l'échange entre la mousse et le tube, nous provoquons localement des réarrangements

de bulles de type T1. Il semble que ces T1, lorsque ϵ est inférieure à une fraction ϵ_c, provoquent la coalescence.

De manière à bien cerner cet effet de destabilisation liée aux T1, nous précisons d'abord que le tube est placé dans la colonne lorsque la mousse est en train de se faire, et que le drainage libre a lieu alors que le tube est déjà dans la mousse. Ensuite, on laisse la colonne de mousse drainer librement pendant environ 15 minutes pour obtenir une fraction liquide en haut de la colonne très faible. Nous mesurons alors à la paroi le rayon des bords de Plateau (comme décrit dans la partie 2.2.1.2), puis injectons le gaz à environ 3 cm du haut de la colonne. Nous reportons sur la figure 2.36 les fractions liquides auxquelles la rupture a été provoquée par l'injection d'air pour plusieurs tailles de bulles. Pour les fractions liquides supérieures, à la valeur relevée, de la mousse entre. Pour les fractions liquides inférieures, du gaz entre seul, ce qui correspond au fait que le déplacement provoque la coalescence de la mousse avant son entrée dans le tube.

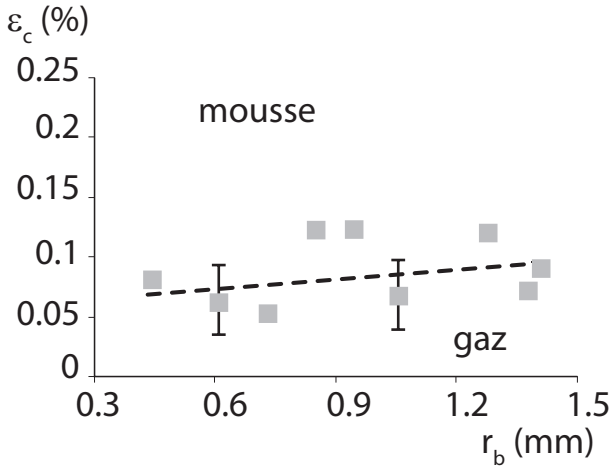


Fig. 2.36- ϵ_c en fonction du rayon r_b des bulles. Ces points correspondent à la valeur de ϵ_c pour laquelle l'injection d'air provoque la rupture de la mousse. Au dessus, la mousse ne casse pas. Les barres d'erreur représentent la déviation maximale mesurée pour une même taille de bulles. La droite pointillée est un guide pour mettre en évidence la faible déviation de ϵ_c avec r_b par rapport à sa valeur moyenne 8.10^{-4}.

Pour comprendre comment les réarrangements peuvent provoquer la rupture de la mousse, nous devons d'abord regarder en détail la dynamique d'un T1. Comme nous l'avons vu dans la partie 2.1.4, un T1 à deux dimensions consiste en un changement de voisin à l'échelle de 4 bulles.

Dans notre cas, la mousse est initialement dans une configuration d'équilibre (figure 2.37 a). Elle est déformée jusqu'à atteindre l'état b) pendant un temps $\tau_1 \sim 1/\dot{\Gamma}$ avec $\dot{\Gamma}$ le taux de

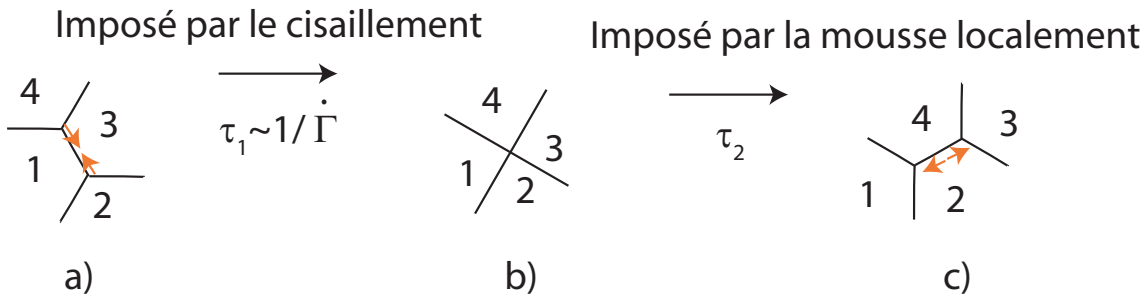


Fig. 2.37- Réarrangement dans une mousse à deux dimensions : La disparition du film 1-3 est due à la déformation imposée par l'aspiration, et se déroule pendant un temps τ_1. La formation du film 2-4 est imposée par les contraintes internes de la mousse, pendant un temps τ_2.

cisaillement imposé par l'aspiration. Comme cet état est instable, la mousse relaxe vers l'état c) durant un temps τ_2 fixé par les contraintes internes de la mousse. A trois dimensions, le phénomène est le même, nous filmons dans une mousse dont la fraction liquide ϵ est supérieure à ϵ_c (donc pour laquelle il n'y a pas de coalescence), et extrayons les images du film montrant la mousse avant et après le T1 (figure 2.38)

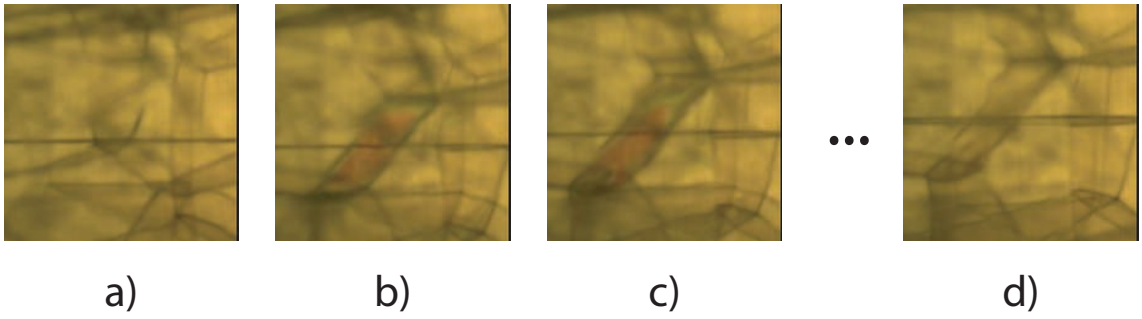


Fig. 2.38- Gonflement du film créé après un T1. 1/5 s entre les images a, b, et c. L'image d a été prise alors que le film formé est presque redevenu un film noir, 1,5 s après l'image a.

L'image a) correspond à la situation avant que le réarrangement n'ait lieu. L'image b) montre le film en train de se former (il n'a pas encore atteint sa taille finale de l'image c). Si ce film apparaît en couleurs, c'est qu'il est plus épais que les films environnants, dont l'épaisseur est proche de celle des films noirs ordinaires, de l'ordre de 30 nm. L'image c) montre le film ayant atteint sa longueur finale. Il est toujours coloré. Petit à petit, il se vide de son liquide jusqu'à atteindre l'état sur l'image d), et rejoindre l'épaisseur des autres films de la mousse.

Cette suite d'images nous montre que le film créé contient plus de liquide que les films alentour. Rappelons que le passage de l'arrangement instable (figure 2.37 b) vers le nouvel

arrangement est imposé par la mousse : ce sont les contraintes imposées par les interfaces qui fixent le temps τ_2 auquel le film 2-4 est formé. Biance et al. [52] ont montré que selon le tensioactif utilisé, la vitesse à laquelle relaxe un cluster de 4 bulles, initialement dans l'état b) de la figure 2.37, est différente, et peut même varier de plusieurs ordres de grandeur.

La vitesse de formation du nouveau film est imposée par les forces appliquées par la mousse pour relaxer vers un état stable, l'épaisseur du film est alors elle aussi fixée par cette vitesse de formation, et donnée par la dynamique du T1. Cette épaisseur est donc imposée par la cinétique de retrait des bords de Plateau lors du réarrangement, et nous pouvons imaginer qu'il existe une situation où il n'y a plus assez de liquide pour assurer le remplissage du film.

Nous allons à présent déterminer la quantité de liquide nécessaire pour former un film entier. Le problème de la formation d'un film de savon est un problème complexe. Malgré des résultats récents [53], il n'est pas encore possible de bien décrire comment l'épaisseur dépend des paramètres de surface dans le cas général et qui puisse être appliqué à notre situation. En effet, notre expérience met en jeu une variation de courbure des bords de Plateau et ne se déroule pas à vitesse imposée. Néanmoins, nous choisissons de décrire l'évolution de l'épaisseur avec la loi de Frankel, qui donne l'épaisseur d'un film de savon dont les interfaces sont rigides et inextensibles sur un cadre, sorti à vitesse constante d'un bain de liquide :

$$e = \beta r_c \left(\frac{\eta v}{\gamma}\right)^{2/3} \tag{2.47}$$

avec $\beta \simeq$1,9, r_c est le rayon de courbure du ménisque, et v est la vitesse de sortie du cadre du bain de liquide moussant.

Dans notre cas, le rayon de courbure des bords de Plateau est de plus en plus petit au fur et à mesure de la formation du film, puisqu'ils jouent ici le rôle du réservoir du liquide. La vitesse de formation est estimée comme $v \simeq \dfrac{r_b}{\tau_2}$, soit la longueur, imposée par la mousse que doit atteindre le film, sur le temps que dure le réarrangement (environs 1/100 s).

Le liquide mis en jeu lors de la formation d'un film de longueur l, d'épaisseur $e(l)$ provient des bords de Plateau de rayon $r(l)$ (figure 2.39). Nous pouvons donc écrire une équation de conservation du volume sur un déplacement dl de bord de Plateau :

$$e(l)dl = -2\left(\sqrt{3} - \pi/2\right) r(l)dr \tag{2.48}$$

Soit avec les équations 2.47 et 2.48 :

$$\frac{dr}{dl} = -\frac{1,9}{2\left(\sqrt{3} - \pi/2\right)} \left(\frac{\eta v}{\gamma}\right)^{2/3} \tag{2.49}$$

Nous pouvons intégrer l'expression 2.49 pour l variant de 0 à r_b et r entre r_{min} et 0, ce qui donne :

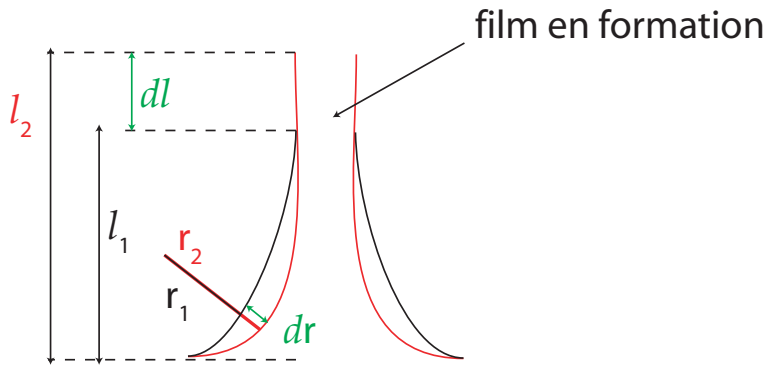


Fig. 2.39- Le volume de liquide utilisé pour former le film provient des bords de Plateau. Il est initialement de longueur l_1 et de rayon r_1, il s'allonge de dl pendant que son rayon de courbure rétrécit de dr. Il atteint la longueur l_2, son rayon de courbure est alors r_2.

$$r_{min} = \frac{1,9}{2\left(\sqrt{3} - \pi/2\right)} \left(\frac{\eta r_b}{\gamma \tau}\right)^{2/3} r_b \tag{2.50}$$

La relation 2.7, nous permet de calculer la valeur de ϵ_c correspondante :

$$\epsilon_c = 10,4 \left(\frac{\eta r_b}{\gamma \tau}\right)^{2/3} \simeq 0,05\% \tag{2.51}$$

La valeur obtenue de ϵ_c est bien du même ordre de grandeur que celle que nous avons mesuré. Notons pourtant que la variation en puissance 2/3 avec le rayon des bulles est plus grande que celle mesurée. On peut assez naturellement imputer cet écart à la loi de Frankel que nous utilisons qui ne prend pas en compte la variation de volume des bords de Plateau, ni celle de la vitesse.

Le volume du film qui disparaît n'est pas inclus dans nos calculs, nous pouvons à présent vérifier que cette quantité est bien négligeable devant le volume de liquide contenu dans les bords de Plateau. Le volume dans un film est de l'ordre de $L^2 \times e$ avec $L = 0.7 r_b$ (équation 2.6). Nous pouvons estimer la valeur de e avant le réarrangement : comme l'épaisseur dépend de la pression de disjonction 2.15, et que $\Pi = \frac{\gamma}{r}$ et $\epsilon = \left(\frac{r}{r_b}\right)^2$, on a donc :

$$e \simeq 52 - 5\ ln\left(\frac{\sqrt{0,3}\gamma}{r_b\sqrt{\epsilon}}\right) \tag{2.52}$$

Cela donne pour nos expériences une épaisseur minimale de 20 nm, soit un volume Ω_f de 10^{-14} m^3. Le volume d'un bord de Plateau $\Omega_{BdP} = (\sqrt{3} - \frac{\pi}{2}) r^2 L$ soit 10^{-13} m^3. Au final, le volume du film engagé dans le réarrangement correspond à 1% du volume des bords de Plateau que nous avons considéré comme seuls apports de liquide.

Nous confirmons donc que l'apport de liquide provenant du film disparaissant est petit devant le volume des bords de Plateau.

2.4 Conclusion

L'aspiration d'une mousse dans un pore de petite taille a permis de mettre au jour toute une gamme de phénomènes concernant le comportement des mousses, allant de sa capacité à bloquer l'écoulement des bulles à ses limites de stabilité lors de sa mise en écoulement.

Nous avons déterminé les conditions sur la fraction liquide et le rapport de taille de bulles fixant le passage de bulles entières, la quantité de liquide emportée avec ces bulles, et la manière dont les bulles peuvent être fractionnées à l'entrée du tube. Par ailleurs, pour les petits débits d'aspiration, le passage des bulles peut être bloqué, n'autorisant le passage que du liquide. Enfin, la fraction liquide d'une mousse est limitée par une valeur critique en deçà de laquelle la mousse ne peut survivre au moindre réarrangement. Les différentes phases et leurs limites sont résumées sur la figure 2.40.

Dans tous les cas rencontrés, ce sont les mécanismes de réarrangements de bulles à l'entrée du tube qui fixent la quantité de liquide et de gaz entrant dans le tube.

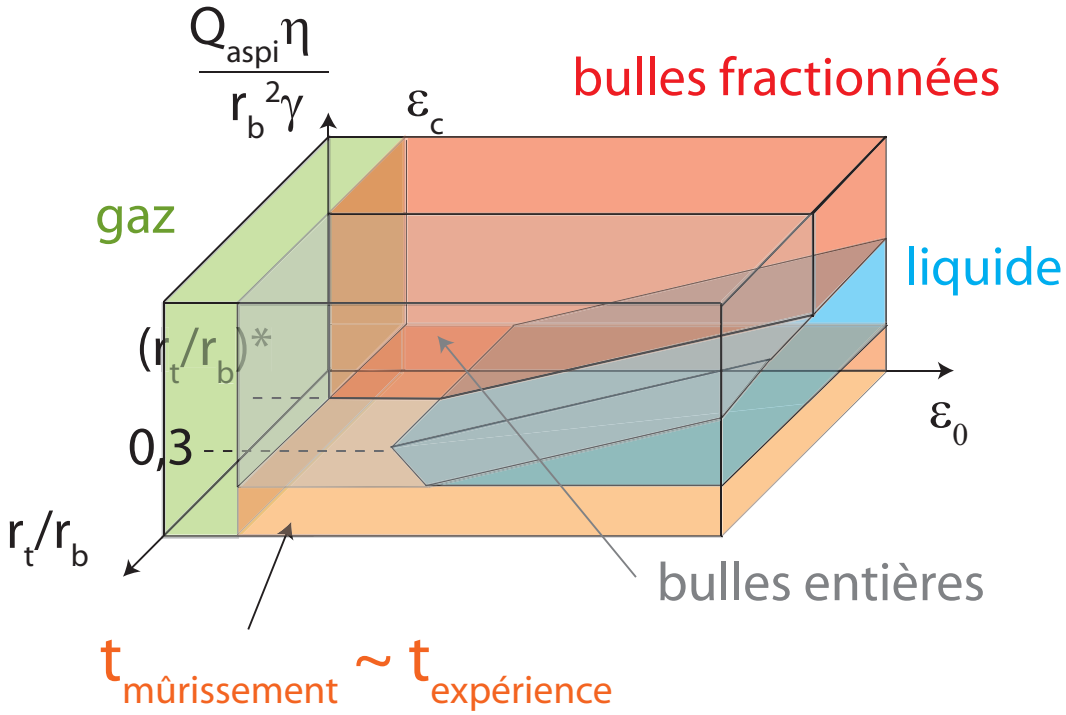


Fig. 2.40- Diagramme représentant les différents fluides que nous pouvons retrouver dans le tube lors de l'aspiration. En vert, du gaz seul entre puisque la mousse casse si sa fraction liquide est inférieure à ϵ_c. En rouge, la mousse entre dans le tube, mais les bulles sont fractionnées si le rayon des bulles est 6 fois plus grand que r_t. En bleu, le liquide seul entre, si les bulles ont la possibilité de s'organiser en cluster à l'entrée du tube.

Chapitre 3

Aspiration d'huile par une mousse

3.1 Introduction

DLa finalité de cette étude est d'étudier la possibilité d'utiliser les mousses pour décontaminer un substrat poreux. Dans ce cadre, nous avons étudié la capacité d'une mousse à aspirer une huile, qui constitue le simili physique du polluant visé dans l'application. Pour des raisons de temps, nous n'avons pas pu mener à bien autant d'expériences que souhaité. Nous présentons ici une série de résultats préliminaires.

Le sujet pose a priori des problèmes de compatibilité puisque les huiles entrent dans la composition classique des anti-moussants, c'est-à-dire des solutions à même de diminuer ou d'empêcher la formation de la mousse. Ainsi, lors de l'extraction du pétrole, les mousses sont injectées dans les puits pour limiter les mouvements de gaz, et ainsi favoriser les mouvements de liquide, pétrole ou liquide de forage. Dans ces situations, il est fréquent d'observer que lorsque l'huile se retrouve en contact de la mousse, elle la casse.

Plusieurs mécanismes sont proposés pour expliquer ces différents comportements, Denkov et al. [54] ont fait une revue détaillée des mécanismes d'action des anti-mousses pour des situations expérimentales où l'huile est dispersée sous forme de gouttelettes dans le liquide moussant (émulsion), la mousse est ensuite formée à partir de cette dispersion et l'huile est alors présente dans toute la phase interstitielle de la mousse. Dans cette situation, on distingue deux types d'anti-mousse : les rapides et les lents. Pour les premiers, les gouttelettes d'huile sont présentes dans les films et ce sont elles qui provoquent la rupture de ces derniers et la destruction de la mousse. Pour les seconds, les gouttelettes se retrouvent bloquées dans les bords de Plateau et ne sont donc pas présentes dans les films. Ces deux comportements sont discriminés par la valeur de la « barrière d'entrée » du couple huile - liquide moussant. Cette barrière d'entrée est la pression P_c qu'il faut exercer pour casser un film de liquide recouvrant

une goutte d'huile. P_c est en fait une pression de disjonction pour un film dit asymétrique, c'est-à-dire compris entre de l'air et de l'huile. La valeur de P_c dépend des intéractions dans le film asymétrique. Lors du drainage de la mousse, le liquide s'écoule petit à petit vers le bas, les films sont de plus en plus fins et la pression exercée sur les gouttelettes d'huile bloquées à l'intérieur du film est de plus en plus grande (figure 3.1 a). Si P_c est faible, la couche de liquide moussant présente entre l'air et l'huile est transpercée, et le film casse (figure 3.1 b). Si P_c est élevée, les gouttelettes sont éjectées par la surpression dans les films vers les bords de Plateau, les films ne contiennent alors plus d'huile et la mousse est stable plus longtemps (figure 3.1 c). Il faudra alors que P_c soit atteinte dans les bords de Plateau, lors du drainage, pour que l'effet anti-mousse soit observé [54].

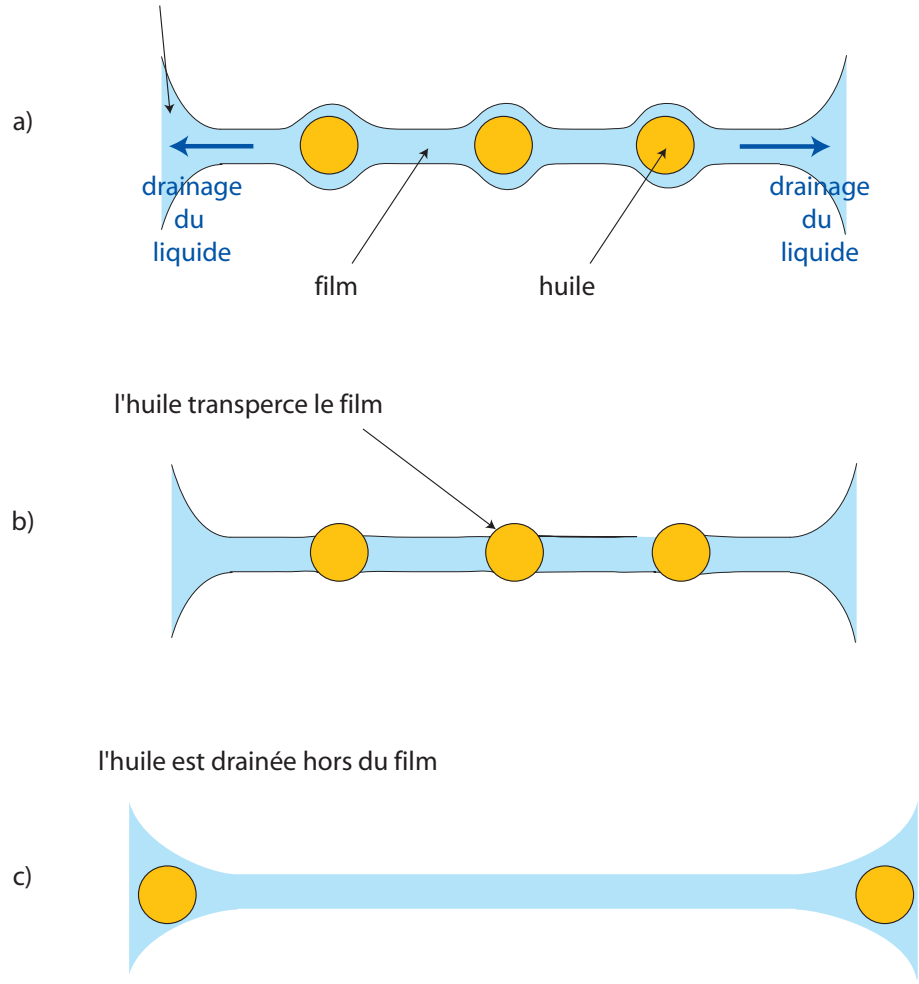


Fig. 3.1- Gouttelettes d'huile bloquées dans le film de liquide (a). Plus le film draine, plus les gouttelettes sont comprimées, si la pression dans le film est supérieure à P_c, l'huile perce le film et le casse (b). Sinon, les gouttelettes sont repoussées vers les bords de Plateau (c).

L'huile présente sous la forme de gouttelettes peut se comporter comme un anti-mousse ou non, c'est la barrière d'entrée P_c qui détermine si la mousse casse.

Vikingstad et al. [55] ont étudié la stabilité de mousses formées à partir de mélanges huile - liquide moussant, dans le cas de solutions moussantes mélangées à des huiles issues du pétrole. Là encore, l'huile est initialement dispersée dans le liquide moussant. Ils ont étudié la durée de vie et la hauteur atteinte par la mousse. Deux cas sont identifiés : les mousses les plus plus stables (qui peuvent durer plusieurs jours) sont celles dont les bords de Plateau sont très larges et remplis d'huile (figure 3.2 a). Les moins stables, correspondent aux mousses dans lesquelles l'huile est bloquée dans les nœuds du réseau (figure 3.2 b) qu'elle déforme fortement, alors que les bords de Plateau sont très fins. Dans ce dernier cas, l'huile est drainée hors de la mousse dès les premiers instants. Une importante sous-couche d'huile est présente en bas de la colonne et la mousse formée contient beaucoup moins d'huile que dans le premier cas.

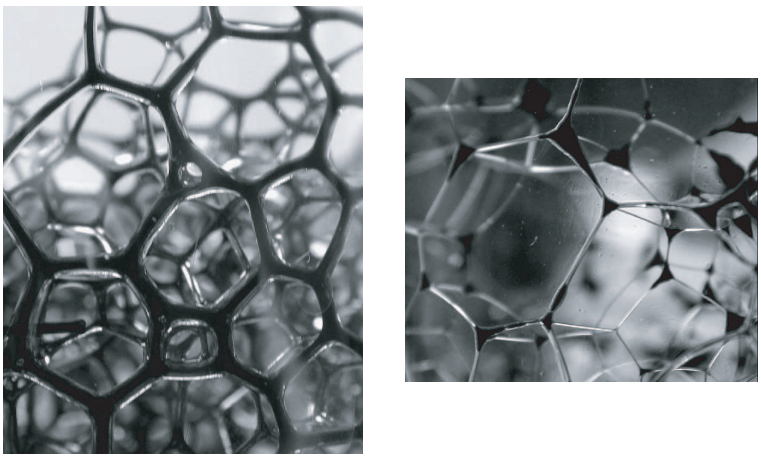


Fig. 3.2- Images tirées de [55]. a) pour les mousses les plus stables, l'huile est contenue en grande quantité dans les bords de Plateau. b) pour les moins stables, elle est localisée dans les nœuds et déforme le réseau. Le liquide moussant ayant permis de former la mousse b) contient initialement 5 fois plus (en masse) d'huile que celui de la mousse a).

Ils constatent qu'il existe un lien entre la répartition de l'huile dans le réseau liquide et la durée de vie de la mousse. Cependant les expériences réalisées ne permettent pas de définir de critère permettant de prédire comment l'huile se positionne dans la mousse et donc ce qui détermine les situations a) ou b).

Pour toutes ces expériences, l'huile est dispersée initialement dans la phase liquide et la mousse est formée à partir de ce mélange. Mais l'huile peut aussi agir sur une mousse

initialement propre (sans huile dans la phase liquide) lorsque les deux fluides sont simplement mis en contact.

Ainsi, Schramm et Novosad [56] étudient comment les bords de Plateau supportent la mise en contact avec de l'huile. Leur expérience consiste à injecter de l'huile dans une série de films en écoulement sur un capillaire et de regarder comment l'huile pénètre dans les films. La mousse passe devant les pores à un débit de 0,014 μl/s et l'huile est continuement injectée à un débit très faible par rapport au débit de mousse de manière à ce qu'il y ait toujours contact entre l'huile et la mousse.

Ils définissent un paramètre qui donne la capacité de l'huile à pénétrer dans l'épaisseur des films. Il s'agit du paramètre d'entrée (différent du paramètre d'étalement $S = \gamma - \gamma_{OF} - \gamma_O$ qui détermine la capacité de l'huile à s'étaler sur le liquide moussant) :

$$E = \gamma + \gamma_{OF} - \gamma_O \tag{3.1}$$

avec γ la tension de surface entre l'air et le liquide moussant, γ_{OF} la tension de surface entre l'huile et le liquide moussant et γ_O la tension de surface entre l'huile et l'air. E doit être négatif pour qu'il soit plus favorable d'avoir un mélange d'huile et de solution moussante, plutôt que d'avoir une huile à l'interface avec l'air.

Ils distinguent trois comportements. Lorsque E est négatif, l'huile ne réussit pas à entrer dans les bords de Plateau (figure 3.3 A). Pour les valeurs de E positives, l'huile s'émulsionne et monte dans les bords de Plateau (figure 3.3 B). Dans certains cas, l'huile entre dans les films et les cassent (figure 3.3 C). Notons que E est défini à partir des tensions de surface et ne prend donc pas en compte les effets de barrière d'entrée tels que ceux définis précédemment.

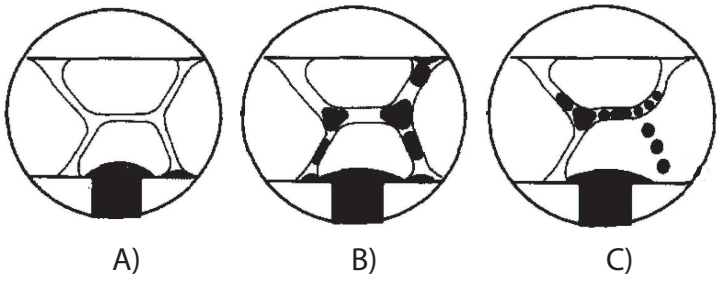


Fig. 3.3- Images tirées de [56]. Les bords de Plateau sont mis en contact avec un pore contenant de l'huile. A) L'huile ne monte pas dans le bord de Plateau, B) L'huile est émulsionnée et monte, C) l'émulsion est plus fine, elle monte et se retrouve même dans les films qui se cassent à la fin.

Lorsque l'huile est injectée dans les bords de Plateau, elle se retrouve sous la forme de

gouttelettes. Ceci est vrai bien que le débit d'huile soit constant et très faible, ils en concluent donc que ce sont les bords de Plateau qui aspirent l'huile (l'imprégnation n'est pas forcée). Cette aspiration d'huile ne se fait que pour certains couples huile - liquide moussant et nous pouvons nous demander quelle quantité d'huile peut être emportée par ces bords de Plateau.

3.2 Expériences d'imprégnation

Avant d'étudier les problèmes d'imprégnation des mousses, nous nous intéressons dans un premier temps à l'imprégnation d'un poreux plus classique. Nous avons vu dans le chapitre précédent que pour qu'un poreux solide mis en contact avec un bain de liquide puisse s'imbiber, il faut que l'angle de contact θ entre le liquide et la surface solide du poreux soit inférieur à 90°. Dans le cas contraire le liquide reste à l'extérieur des pores. Par ailleurs la dynamique d'inprégnation suit une loi en $t^{1/2}$.

Ce comportement se retrouve pour un poreux plus classique. En effet, Pezron et al. [14] donnent la loi d'imbibition d'une membrane poreuse (fluorure de polyvinylidene) par du dodécanol qui mouille totalement le membrane ($\theta = 0^{\circ}$). Ils mesurent la masse de liquide imprégnant la membrane au cours du temps. Elle est reliée à la hauteur de liquide dans les pores : $m(t) = \rho S z(t)$, avec ρ la masse volumique, z la position du front de liquide et S la surface accessible au liquide. La montée du liquide suit une loi en $m(t) \propto t^{1/2}$ avant d'atteindre une hauteur maximale H_{max}, comme présenté sur la figure 3.4.

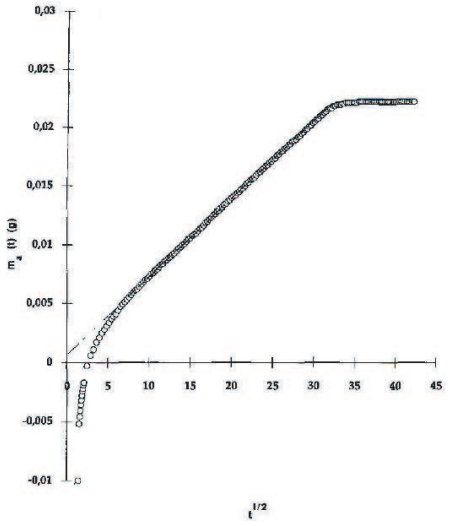


Fig. 3.4- La masse de liquide dans la porosité est tracée en fonction de $t^{1/2}$. Tant que H_{max} n'est pas atteint, $m(t) \propto t^{1/2}$. Résultat extrait de [14].

Nous pouvons nous demander dans quelle mesure cette loi en $t^{1/2}$ est valable pour les mousses. En effet, la mousse peut être considérée comme un milieu poreux présentant une perméabilité au liquide. Une mousse sèche, à l'équilibre, c'est-à-dire ne drainant plus sur sa hauteur, une fois mise en contact avec un bain de liquide s'imbibent comme les poreux solides, comme montré par Caps et al. [57] en microgravité. Leur expérience a consisté à former une mousse reposant sur un bain de liquide entre deux plaques et à observer la mousse durant une campagne de vols paraboliques, c'est-à-dire pendant une succession de phases où la gravité est égale à $1,8g$, suivies d'une phase en microgravité (proche de $0g$). Durant la première phase, le liquide draine, asséchant la mousse. Lorsqu'ils passent en microgravité, le poids du liquide s'annule et la dépression dans le réseau des bords de Plateau l'aspire. Ils observent alors un front de liquide qui monte dans la mousse, (figure 3.5). Dans le cas des mousses, le moteur de la montée de liquide vers la zone la plus sèche est la dépression dans les bords de Plateau. Elle s'exprime comme $P_g - P_l = \frac{\gamma}{r}$. Un écoulement est alors créé dans le réseau des bords de Plateau, la vitesse du liquide dépend de la perméabilité de la mousse, comme nous l'avons vue dans le chapitre précédent 2.2.1.2. La fraction liquide à une certaine hauteur de mousse au cours du temps est liée à cette perméabilité. L'écoulement du liquide lors de l'imbibition de la mousse est régie par l'équation du drainage (partie 2.1.3) :

$$\frac{d\epsilon}{dt} = \frac{dv_d}{dz} \tag{3.2}$$

Ils trouvent une loi en $z(t) = \sqrt{Dt}$, où la diffusivité D caractérise la cinétique de montée capillaire. Ils obtiennent un encadrement du coefficient D, qui est compris entre les deux valeurs suivantes obtenues lorsque l'interface est totalement mobile ou titalement rigide : 0,452 $\text{cm}^2/\text{s} \leq D \leq$ 1,94 cm^2/s. La figure 3.5 compare la position de l'interface déterminée expérimentalement aux positions calculées selon le modèle de perméabilité. Nous remarquons que le temps nécessaire à la mousse pour atteindre 1 cm de haut est multiplié par 2 selon le modèle.

La montée capillaire de liquide dans la mousse suit donc bien, comme pour les poreux classiques une loi en $\sqrt{t}$, bien que la perméabilité de la mousse soit variable. Nous pouvons nous demander si l'imbibition d'une huile va dévier de ces lois d'imprégnation. Ce sont ces propriétés d'imbibition d'huile dans une mousse que nous allons étudier à présent. Nous allons d'abord montrer comment la mousse peut s'imbiber d'huile, ensuite comment elle est extraite à l'échelle d'un pore et enfin quelle quantité peut être extraite d'un tissu contaminé par une huile.

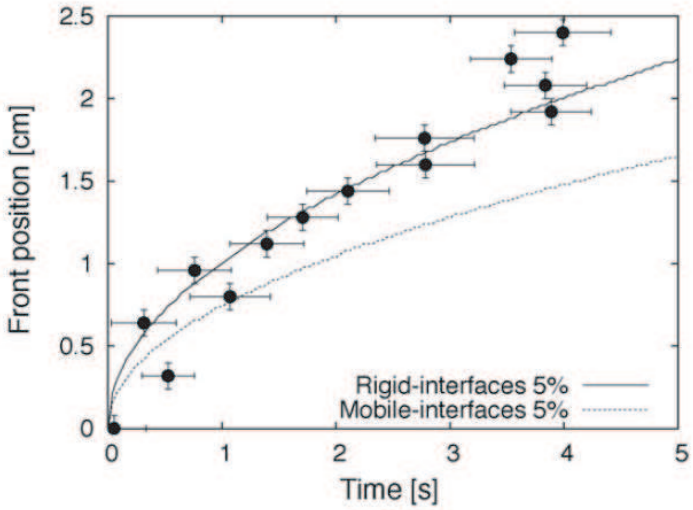


Fig. 3.5- Résultats de Caps et al. [57]. Position du front de liquide entrant dans la mousse en fonction du temps. Les deux modèles présentés correspondent aux solutions de l'équation 3.2 pour deux expressions de la perméabilité différentes. La valeur de D qui décrit le mieux les données est 1,19 cm^2/s

3.2.1 Montage

La mousse est formée dans une colonne en plexiglass de 10 cm de diamètre et 30 cm de haut 3.6. la taille des bulles est de 1 mm $\pm$ 5% et calculée à partir de la mesure des longueurs de bords de Plateau à la paroi selon la méthode décrite dans le chapitre précédent 2.2.1.1. Afin de récupérer une mousse la plus sèche possible, est inséré en haut de la colonne un tube de 2,6 cm de diamètre et 10 cm de long. Ce tube se remplit au fur et à mesure de la formation de la mousse comme schématisé sur la figure 3.6 a). Les fractions liquides données dans la table 3.2. Pour les mesurer, le tube intérieur est pesé avant et après avoir été rempli de mousse, la fraction liquide est $\epsilon = \frac{m_{mousse}}{V_{tube}}$ avec m_{mousse} la masse de mousse dans le tube et V_{tube} son volume. Les valeurs de ϵ mesurées avant chaque expérience sont données dans la table 3.2. Le tube est ensuite sorti de la colonne et mis en contact avec un bain d'huile. Nous filmons la montée d'huile au cours du temps (figure 3.6 b).

3.2.2 Solutions utilisées

Les solutions moussantes utilisées nous ont été fournies par l'IRFAQ (Institut de Recherche appliquée à la Formulation, l'Analyse et la Qualitique), nos partenaires pour l'application de ces travaux à la décontamination des tissus. Ces solutions moussantes sont formulées spécialement pour être particulièrement stables et ne réagissant pas chimiquement avec le pol-

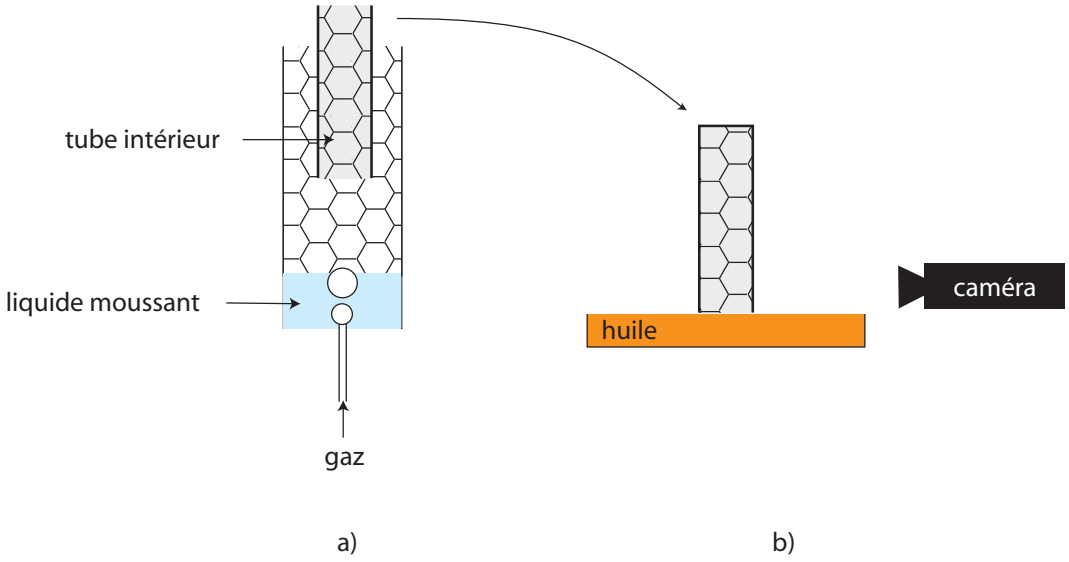


Fig. 3.6- La mousse est formée dans une grande colonne (a), qui contient un tube plus petit (en gris) dans lequel la mousse monte. Ce dernier est ensuite sorti de la colonne puis mis en contact avec un bain d'huile (b).

luant (nous ne donnerons pas leur composition, et les nommerons PROTER 01, PROTER 03 et PROTER 04). Nous avons de plus fait l'expérience avec du TTAB (Aldrich) à 3 g/l, tensioactif standard que nous avons utilisé dans le chapitre précédent. Deux huiles différentes ont été testées : l'une a les mêmes propriétés physiques que le polluant visé, le salicylate de méthyle l'autre est une huile silicone (Brookfield, viscosity standard : 10). Les caractéristiques physiques de ces différents liquides sont donnés dans le tableau 3.1. Les viscosités sont mesurées au viscosimètre capillaire (à $\pm$0,05 mPa.s), les masses volumiques sont obtenues en pesant un volume de liquide connu à la balance et les tensions de surface à l'aide d'un tensiomètre (Teclis), qui mesure la tension de surface à partir de la forme de gouttes pendantes ou bulles montantes. Les mesures de tension de surface des solutions moussantes ont été faites dans une géométrie de bulles montantes dans un bain de solution, alors que celles des huiles en gouttes pendantes dans l'air.

La tension de surface entre le liquide moussant et l'huile est donnée dans le tableau 3.2. Elle a été mesurée à l'aide du même appareil que celui utilisé précédemment, en faisant pendre (ou monter, selon la différence de densité) une goutte d'huile dans un bain de solution moussante. Les valeurs du paramètre d'entrée E (équation 3.1) sont ensuite calculées pour le salicylate de méthyle et pour l'huile silicone.

	TTAB	PROTER 01	PROTER 03	PROTER 04	Salicylate	Silicone
η (mPa.s)	1,0	1,3	1,2	1,1	1,8	10
ρ (kg/l)	1,0	1,0	1,0	1,0	1,2	0,9
γ (mN/m)	37	31	32	33	40	19

Tab. 3.1- Caractéristiques physique des liquides utilisés

	TTAB	PROTER 01	PROTER 03	PROTER 04
γ_{OF} Salicylate (mN/m)	2,3	2,5	1,0	1,8
γ_{OF} Silicone (mN/m)	15,7	13,0	10,2	11,9
$E(salicylate)$ (mN/m)	-0,7	-6,5	-7,0	-5,2
$E(silicone)$(mN/m)	33,7	25,0	23,2	25,9
ϵ	5.10^{-3}	7.10^{-3}	7.10^{-3}	4.10^{-3}

Tab. 3.2- Tension de surface entre l'huile et les liquides moussant γ_{OF}, paramètres d'entrée E et fractions liquide des mousses testées.

3.2.3 Résultats

Lorsque la mousse est mise en contact avec l'huile, nous observons deux comportements distincts. Soit l'huile ne monte que sur quelques tailles de bulles, soit l'huile monte dans le réseau de bords de Plateau et imbibe la mousse.

L'image 3.7 présente la répartition de l'huile dans les premières couches de bulles de la mousse, lorsque l'huile ne monte que sur une ou deux rangées de bulles. Dans ce cas, l'huile est confinée dans les nœuds qui sont très déformés et n'est apparemment pas présente dans les bords de Plateau. Cette image est similaire à celle présentée par Vikingstad et al 3.2 b). Nous remarquons également que les mousses présentant une telle répartition de l'huile ont un temps de vie court. Nous verrons plus loin que le fait que l'huile n'imbibe pas la mousse est lié au caractère anti-moussant de l'huile sur la mousse.

Sur la figure 3.8, l'huile a imbibé la mousse et se retrouve répartie dans tout le réseau des bords de Plateau, contrairement au cas précédent où elle ne se trouvait que dans les nœuds.

Les mousses formées à partir des solutions PROTER 01 et PROTER 04 sont les seules à s'imbiber de salicylate de méthyle (figure 3.8). Toutes les autres solutions moussantes, ou toutes les combinaisons avec l'huile silicone conduisent à la première situation comme sur la figure 3.7.

Les mesures de tension interfaciales et de fraction liquide données dans la table 3.2 ne

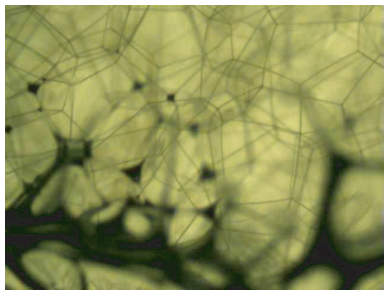


Fig. 3.7- Mousse PROTER 04 après contact avec l'huile silicone : l'huile est contenue dans les nœuds, alors que les bords de Plateau sont très fins (et donc en forte dépression).

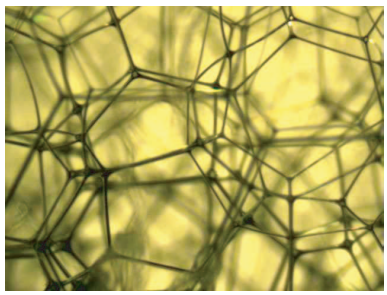


Fig. 3.8- Mousse PROTER 04 après contact avec le salicylate de méthyle : l'huile est montée dans les bords de Plateau, elle est répartie de manière plus homogène dans le réseau que dans le cas précédent.

nous permettent pas de conclure quant au mécanisme conduisant à une répartition ou l'autre de l'huile dans le réseau des bords de Plateau. En effet, nous constatons que les tensions de surface de tous les couples huile - liquide moussant sont très proches les unes des autres et que celles impliquant les solutions PROTER 01 et PROTER 04 ne sont ni les plus élevées, ni les plus basses. Concernant les paramètres d'entrée, tous ceux impliquant l'huile silicone sont positifs, alors que pour le salicylate de méthyle ils sont tous négatifs. Encore une fois, les valeurs de E calculées pour les solutions PROTER 01 et PROTER 04 couplées avec le salicylate ne se distinguent pas des valeurs de E pour les couples salicylate - solutions moussantes ne permettant pas l'imbibition.

Pour tester le pouvoir anti-moussant des couples huile - liquide moussant, nous avons fait mousser des mélanges de 0,5 ml d'huile pour 2 ml de liquide moussant et observé la stabilité de la mousse obtenue. Les mousses obtenues à partir des mélanges huile - solutions moussantes se détruisent très vite (c'est-à-dire lorsque l'huile agit comme anti-mousse) ne permettent pas l'imbibition de l'huile. Par contre les couples qui forment une mousse bien plus stable, sont ceux qui permettant à l'huile de monter dans le réseau des bords de Plateau. Cela signifie donc

que l'imbibition ne peut se faire que si l'huile n'est pas un anti-moussant pour le tensioactif choisi.

Ce sont les couples salicylate - PROTER 01 et salicylate - PROTER 04 qui sont choisis pour évaluer la capacité d'extraction d'une mousse, puisque le salicylate ne présente pas de propriétés anti-moussantes avec ces deux solutions. Pour discriminer laquelle de ces deux solutions moussante aspire le plus rapidement l'huile, nous filmons la montée de salicylate dans la mousse formée à partir des deux solutions sélectionnées. Sur la figure 3.9, la hauteur z du front de montée d'huile est représenté en fonction du temps. Nous observons que les données obtenues sont assez bien ajustées par une loi en $a\sqrt{t}$.

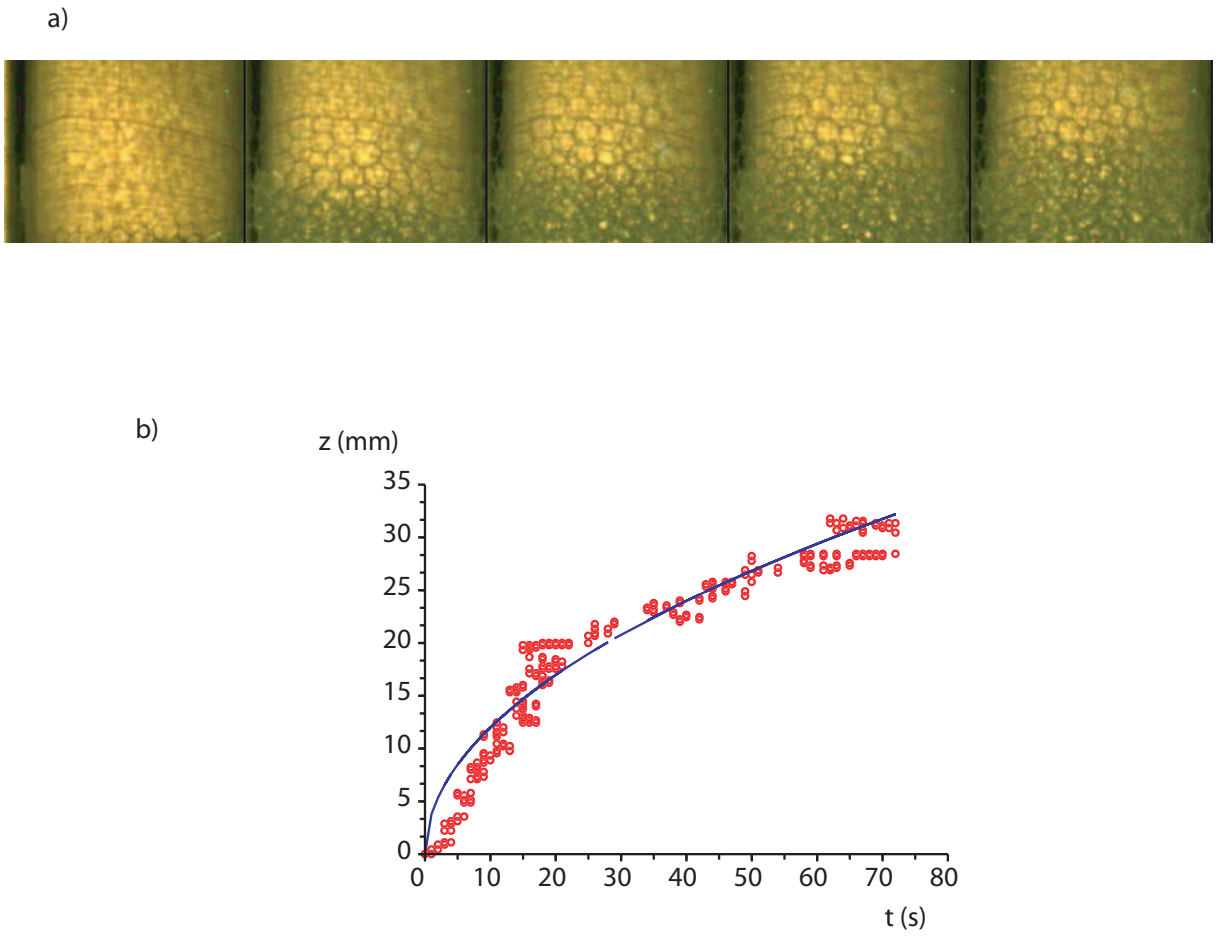


Fig. 3.9- a) Images de la montée d'huile au cours du temps b) Front d'huile au cours du temps. cercles : mesures, trait plein : ajustement $3,5\sqrt{t}$.

Nous avons mesuré les valeurs de a pour la montée de salicylate de méthyle dans les solutions PROTER 01 et PROTER 04. Elles sont données dans la table 3.3.

Nous avons vu dans les expériences de Caps et al. [57], que c'est la perméabilité des

PROTER 01	PROTER 04
11 ± 3 mm/s$^{1/2}$	3± 1,5 mm/s$^{1/2}$

Tab. 3.3- Valeurs de a pour la montée du front d'huile dans les deux mousses favorables à l'imbibition.

mousses qui contrôle la vitesse de montée d'un front de liquide moussant dans la mousse. La valeur de coefficient de diffusion (10^4 cm/s$^{1/2}$) qu'ils ont trouvé est de trois à quatre ordres de grandeur au-dessus de celles que nous mesurons. Cette valeur dépend de la fraction liquide (contrairement à notre expérience, leur mousse repose initialement sur un bain de liquide ce qui iduit un gradient de fraction liquide important entre le haut et la bas de la mousse), de la taille des bulles (ils utilisent une mousse polydisperse), de la mobilité des interfaces (qui dépend de la solution utilisée), enfin, le liquide imbibant est dans notre expérience différent du liquide moussant constituant la mousse.

Cette expérience permet de mettre en évidence le fait que la mousse peut se comporter comme un milieu poreux, avec une loi d'imprégnation en $t^{1/2}$, même pour une huile, à condition que cette dernière ne se comporte pas comme un anti-mousse. Mais l'extraction l'huile est un problème bien plus compliqué que la simple imbibition, faisant intervenir d'autres paramètres tels que la possibilité de maintenir une huile dans le réseau liquide d'une mousse.

3.3 Mousse en contact avec l'entrée d'un tube rempli d'huile

Nous utilisons désormais pour nos expériences la solution PROTER 04 dont les mousses résistent le mieux au contact avec le tissu. Pour tester sa capacité à déplacer l'huile contenue dans une porosité, nous mettons en place l'expérience schématisée sur la figure 3.10. La mousse est formée comme précédemment (figure 3.6) dans une colonne où le tube intérieur est remplacé par une seringue. La taille des bulles est toujours de 1 mm ± 5%, et la fraction liquide ϵ =4.10^{-3}. Le volume de mousse qui remplit la seringue est ensuite repoussé au débit Q_m dans un tube en plexiglas noté (a) sur la figure 3.10. Un tube souple en téflon de diamètre intérieur 0,6 mm noté (b) est connecté à 2,5 cm du bout du tube (a). Ce tube (b) est initialement rempli d'huile. Une première caméra filme le niveau d'huile dans le tube (b) à son extrémité notée (c), et une seconde filme le passage de la mousse à l'autre extrémité de (b).

Le débit de mousse passant dans le tube (a) est contrôlé par le débit d'air injecté par le pousse-seringue. Le débit Q_m est compris entre 5 ml/ min et 50 ml/min, ce qui correspond à une vitesse de passage de la mousse v_{mousse} comprise entre 0,16 mm/s et 1,6 mm/s. Nous

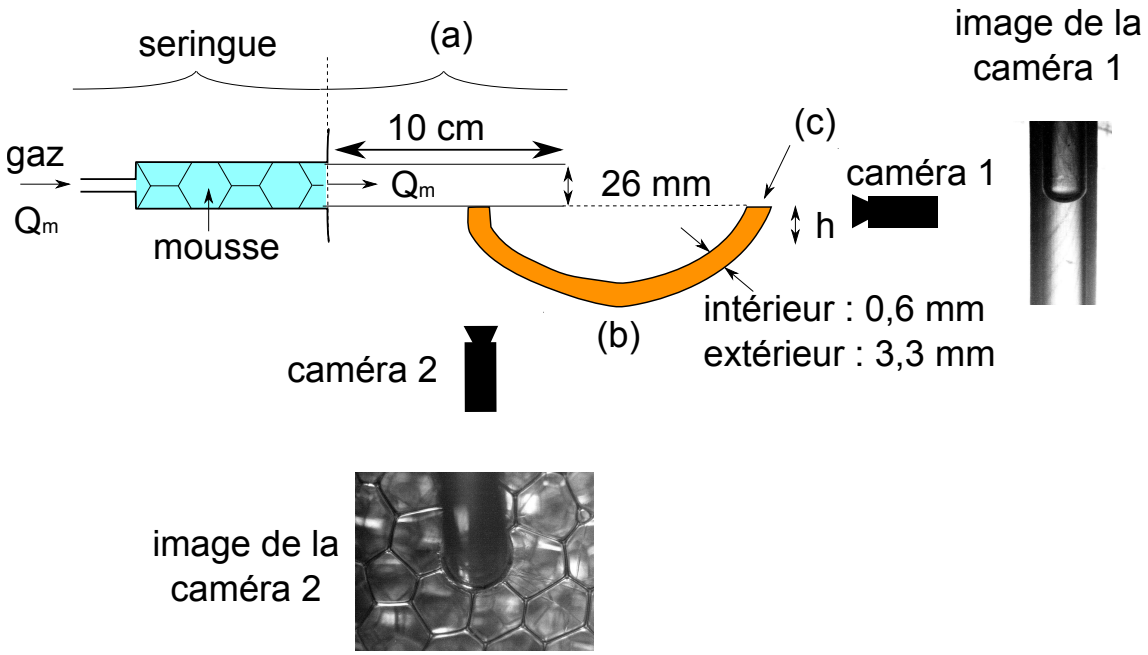


Fig. 3.10- L'air vide la seringue de mousse dans le tube (a), de diamètre 3 cm, percé d'un trou d'où affleure l'huile. Cette huile est contenue dans le tube (b), de diamètre 0,6 mm et le niveau d'huile est filmé à l'extrémité (c) lorsque la mousse est déplacée au dessus du trou.

avons vérifié que la mousse glisse sur le plexiglas et s'écoule dans le tube avec un profil de vitesse de type bouchon. La variation du niveau d'huile dans le tube (b) nous donne accès à la dépression exercée par la mousse sur l'entrée de (b). L'image 3.11 est une image spatiotemporelle d'un film pris avec la caméra 1, et montre le niveau de liquide entraîné par la mousse au cours du temps. Nous en déduisons la pression de l'huile en contact avec la mousse $P_h = P_h(t=0) - \rho_h g h$ avec $P_h(t=0)$ la pression dans l'huile avant que la mousse ne passe sur le pore, ρ_h la masse volumique de l'huile et h la différence de hauteur de l'interface d'huile par rapport au niveau en $t = 0$.

Tout au long de l'expérience, le niveau de liquide diminue dans le tube de manière non continue du liquide ne passe dans la mousse qu'à chaque saut de l'interface et on distingue deux régimes. Tout d'abord, lorsque la mousse arrive devant le pore, l'huile est très vite absorbée faisant chuter assez fortement le niveau d'huile. Ce premier régime est un régime dit d'entrée, lié à l'arrivée de la mousse. Un régime stationnaire est atteint lorsque 4 à 5 millimètres de mousse sont passés devant le trou. La quantité de liquide emportée à chaque saut de l'interface est alors très faible.

Dans un premier temps, nous mesurons la variation de pression dans le régime d'entrée. La figure 3.12 représente la chute de pression dans le tube entre le début de l'expérience (avant

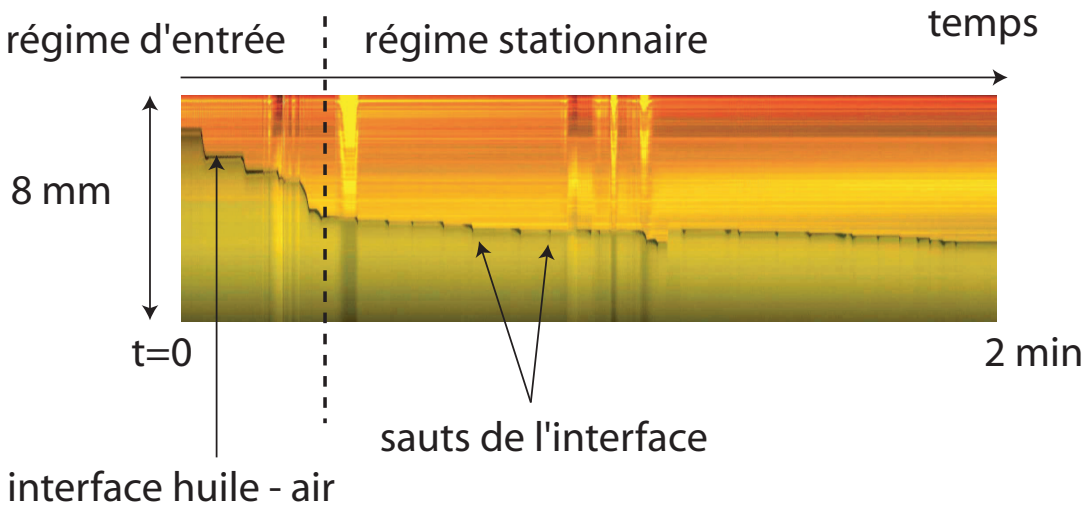


Fig. 3.11- Position de l'interface huile - air, en (c) sur la figure 3.10) au cours du temps. L'image commence en $t = 0$. L'aspiration d'huile est forte aux premiers instants (lors du passage des premières bulles de la mousse devant le pore), puis plus faible par la suite. Les sauts de l'interface visibles lorsque le niveau d'huile ne varie presque plus indique que cette dernière est toujours en contact avec la mousse.

que la mousse ne soit en en contact avec l'huile) et le début de la phase stationnaire. Pour les quatre débits de mousse Q_m testés, la chute de pression est constante et vaut en moyenne P_h=26 Pa. Une quantité d'huile (toujours la même, environs 0,6 mm^3, ce qui correspond à une goutte d'huile de 0,5 mm de rayon), est prélevée du tube par le passage des bords de Plateau.

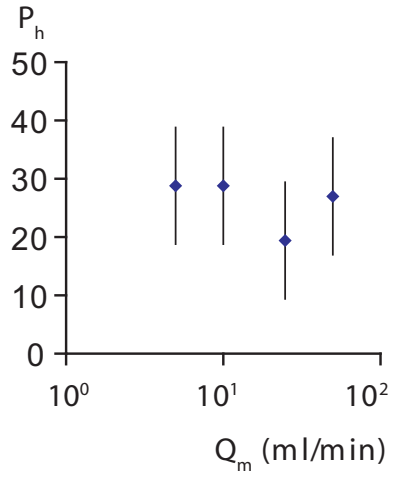


Fig. 3.12- Dépression maximale mesurée dans le tube contenant l'huile lors du passage de la mousse à différents débits. L'influence du débit n'est pas discernable.

La valeur de P_h est à comparer avec la dépression dans les bords de Plateau de la mousse, qui vaut $\frac{\gamma}{r}$. Par ailleurs, le ménisque dans le tube à l'extrémité (c) créé une pression $\gamma_o/r_t \simeq$ 133 Pa. Avec $r = r_b\sqrt{\frac{\epsilon}{0,3}}$, nous calculons une dépression dans les bords de Plateau de 143 Pa, ce qui est près de 10 fois plus grand que la chute de pression mesurée. Cela s'explique par le fait que la dépression imposée à l'huile par les bords de Plateau ne l'est que pendant un temps court, à cause de la vitesse de déplacement, les pressions n'ont donc pas le temps de s'équilibrer.

Nous avons vu que la quantité de liquide emportée lors du premier régime correspond à une goutte d'huile de 0,6 mm de diamètre, ce qui pourraît correspondre au ménisque d'huile présent dans le tube b) initialement.

Nous nous intéressons à présent au régime stationnaire de l'aspiration d'huile et dans un premier temps à la fréquence des sauts de l'interface. Sur la figure 3.13, nous comparons le temps T entre deux sauts au temps nécessaire à faire passer une longueur de bord de Plateau pariétal devant le tube.

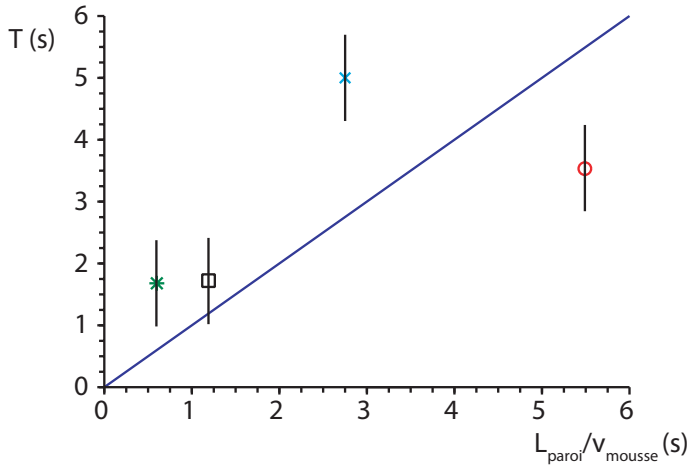


Fig. 3.13- Comparaison du temps T entre deux sauts de l'interface et le temps L_{paroi}/v_{mousse} permettant d'estimer le temps de passage d'une bulle devant l'entrée d'huile et donc le temps durant lequel le tube est bouché. La droite bleu représente la pente 1. l'étoile correspond à Q_m=50 ml/min, le carré à Q_m=25 ml/min, la croix à Q_m=10 ml/min et le cercle à Q_m=5 ml/min

La fréquence des sauts est bien corrélée à la fréquence de passage des bords de Plateau, c'est-à-dire que le liquide n'est emporté que lorsque des bords de Plateau sont en contact avec le trou. Lorsque les films passent devant le tube, ils « bouchent » l'entrée et empêchent l'huile de passer. Lorsque c'est un bord de Plateau qui passe devant le trou, une très faible quantité

de liquide est emportée. Nous allons maintenant la déterminer.

Comparons le volume d'huile ΔV emporté au cours de l'expérience au volume des bords de Plateau qui sont passés devant l'ouverture. Le volume total emporté est mesuré à partir des images spatio-temporelles telles que celle de la figure 3.11, en mesurant la différence de hauteur du niveau d'huile entre le début de la phase stationnaire et la fin de l'expérience, pour les différents débits testés (figure 3.14).

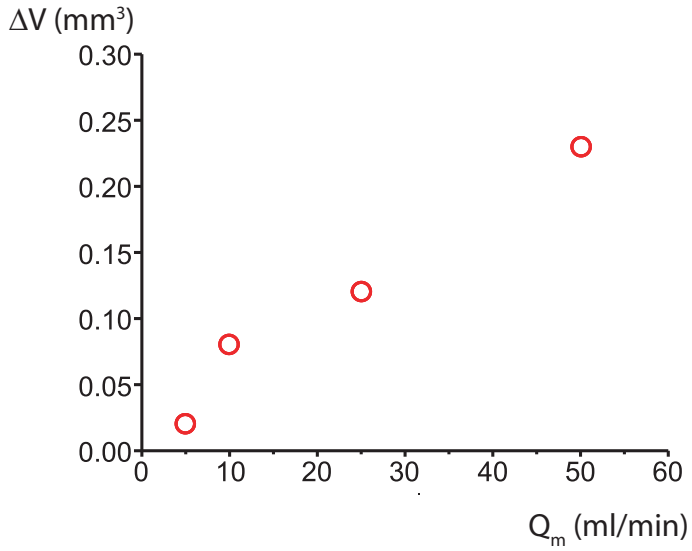


Fig. 3.14- Volume d'huile extrait par la mousse durant la phase stationnaire, en fonction du débit de mousse testés. Plus le débit est grand, plus il y a d'huile entraînée.

La quantité d'huile emportée augmente avec le débit de mousse qui passe devant l'entrée. Comme les mouvements de l'interface semblent correspondre au passage des bords de Plateau devant le pore, nous allons comparer le volume d'huile emporté par chaque bord de Plateau au volume d'un bord de Plateau pariétal. Nous comptons le nombre N de bords de Plateau passés devant le pore et traçons $\Delta V/N$ en fonction de Q_m sur la figure 3.15. Le volume ainsi mesuré est alors proche d'une valeur moyenne $1{,}9.10^{-3}$ mm^3 (soit une goutte d'huile de 0,08 mm de rayon).

Ce volume d'huile est emporté dans le réseau des bords de Plateau. Il a été montré dans l'expérience de Schramm et Novosad [56] que l'huile est présente sous forme de gouttelettes dans les bords de Plateau. Ils ont mesuré le rapport des rayons de gouttelettes montant dans les bords de Plateau R_o sur le rayon de courbure des bords de Plateau r. Ils trouvent systématiquement R_o/r=0,15, ce qui signifie que seule la géométrie des bords de Plateau fixe R_o. Il se trouve que le rapport qu'ils mesurent correspond exactement au rayon de l'ouverture

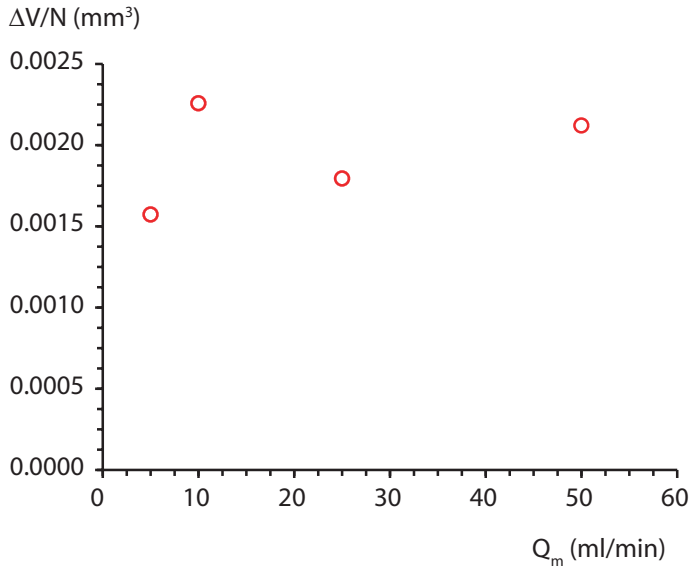


Fig. 3.15- Volume d'huile par bord de Plateau, pour les différents débits de mousse testés. Chaque bord de Plateau emporte avec lui en moyenne $1{,}9.10^{-3}$ mm^3 d'huile, quel que soit le débit de mousse.

d'un bord de Plateau $R_o = \left(\frac{2\sqrt{3}}{3} - 1\right) r$ (figure 3.16).

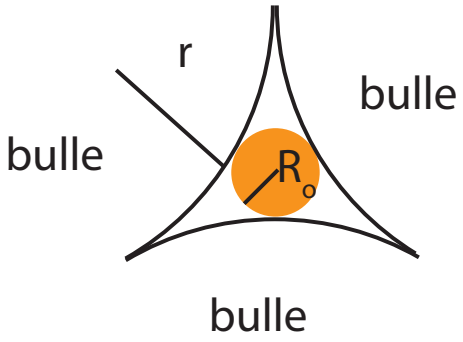


Fig. 3.16- Rayon d'ouverture d'un bord de Plateau, tel que $R_o = 0,15r$

En partant du principe que nous avons, comme eux, des gouttelettes dans les bords de Plateau, nous calculons la valeur moyenne du volume d'huile $\Delta V/N$ emportée par la mousse. Nous considérons que l'huile pénètre dans le bord de Plateau sous forme de gouttelettes, dont le rayon est le rayon maximal r_{max} d'une sphère qui peut tenir dans un bord de Plateau pariétal sans le déformer (soit $r_{max} = 0,25r$ comme schématisé sur la figure 3.17). Les gouttellettes sont réparties sur toute la longueur d'un bord de Plateau.

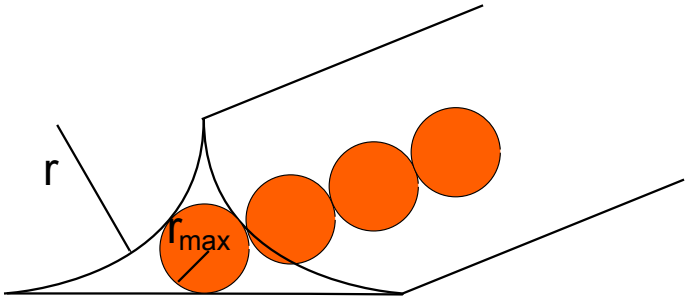


Fig. 3.17- Gouttelettes d'huile entrées dans un bord de Plateau. Leur rayon vaut $r_{max} = 0,25r$.

Le volume total d'huile V_h est alors le produit du nombre de gouttelettes dans un bord de Plateau par le volume d'une gouttelette, soit $V_h = \frac{L_{paroi}}{2r_{max}} \frac{4}{3} \pi r_{max}^3$. Comme $r_b = 0,84 L_{paroi}$ et $r = r_b \sqrt{\frac{\epsilon}{0,3}}$, nous avons finalement :

$$V_h = 0,3 \epsilon L_{paroi}^3 \simeq 2.10^{-3}\ mm^3 \tag{3.3}$$

Cette valeur est bien proche de la valeur mesurée précédemment. Le rayon des gouttelettes d'huile est le rayon d'ouverture des bords de Plateau, c'est-à-dire que la dépression dans le bord de Plateau aspire de l'huile du pore. L'interface huile - liquide moussant prend la forme de gouttes dont la courbure est celle de l'ouverture du bord de Plateau R_o et comme la mousse est forcée à s'écouler, les gouttes se détachent du pore et se retrouve dans le bord de Plateau.

Ce processus d'aspiration de l'huile par la mousse se fait donc essentiellement par le fait que chaque bord de Plateau aspire un volume d'huile V_h dépendant uniquement de la géométrie des bords de Plateau. Il existe donc un compromis concernant la fraction liquide à imposer à la mousse. La mousse doit être suffisamment sèche pour être en dépression par rapport au pore contenant l'huile, mais l'ouverture des bords de Plateau doit être la plus grande possible pour pouvoir emporter un maximum d'huile.

3.4 Application : décontamination d'un tissu

3.4.1 Cas de référence : le verre

Nous avons mis en place une expérience qui consiste à faire passer la mousse sur une surface de verre contaminée. Le verre constitue la surface de référence. La figure 3.18 schématise le montage expérimental. Une mousse est formée à travers une colonne poreuse, constituée de billes de verre de 1 mm de rayon dans laquelle nous faisons passer le liquide moussant à un débit imposé et du gaz (N_2) à pression imposée. Le temps de passage sur la surface est fixée

à 2 minutes. La taille des bulles et la fraction liquide de la mousse obtenue dépendent du rayon des billes, des débit et pression d'injection des deux fluides et de la tension de surface du liquide moussant. En sortie de colonne poreuse, le rayon des bulles est de 0,5 mm avec une dispersion de 15%. Cette méthode donne des mousses polydisperses, (contrairement au système de bulles à bulles), mais la production continue de mousse utilisée précédemment ne nous permet pas d'obtenir une quantité suffisante de mousse. En ajustant les débits de liquide et la pression du gaz, nous pouvons faire varier la fraction liquide entre 2% et 10% tout en gardant la même distribution de tailles de bulles. La sortie de cette colonne est reliée au tube en verre à décontaminer, de 10 cm de long et 3 cm de diamètre. Une goutte de 2 μl de salicylate de méthyle est déposée à 2,5 cm de la sortie du tube. La mousse est récupérée après son passage dans le tube, afin de doser la quantité de salicylate de méthyle qu'elle contient. Ce dosage est fait par chromatographie en phase gazeuse par l'IRFAQ.

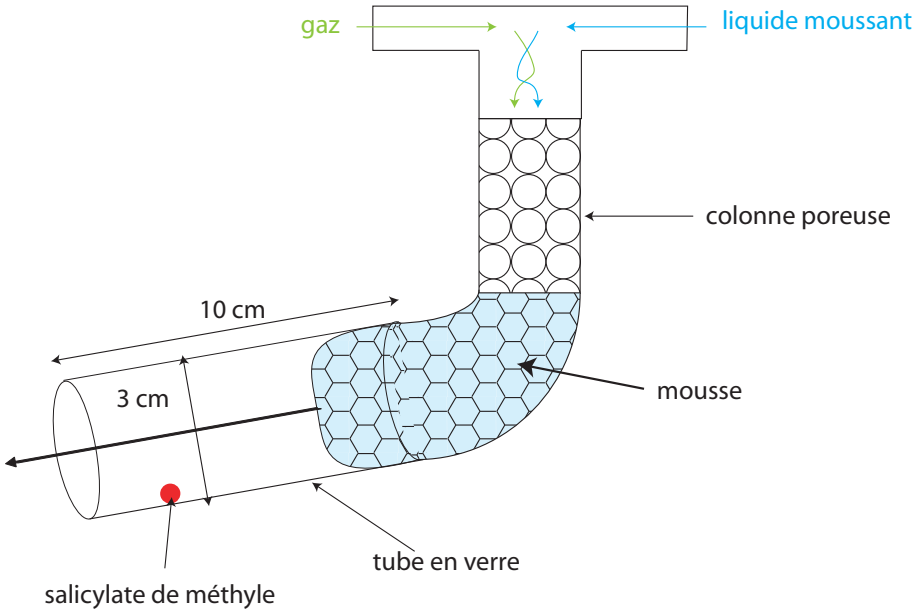


Fig. 3.18- La mousse passe dans un tube en verre contaminé par une goutte de salicylate de méthyle. Elle est récupérée en sortie de tube pour doser l'huile qu'elle contient.

Nous obtenons, pour cette surface de référence en verre, que la solution PROTER 04 est capable d'emporter 100% de l'huile déposée initialement sur la surface de verre, qui est la surface la plus favorable à l'enlèvement su salicylate, puisque non poreuse.

3.4.2 Sur un tissu

L'extraction de l'huile par une mousse a également été testée sur un tissu. La figure 3.19 présente l'expérience, qui est identique à celle effectuée précédemment, sauf que le cylindre de

verre est recouvert de tissu (pour simplifier, nous n'avons pas représenté la colonne poreuse sur la nouvelle figure). La mousse passe à travers le même tube que dans la partie 3.4.1, dont l'intérieur est recouvert d'une pièce de jean, utilisé tel que reçu, c'est-à-dire sans lavage préalable. Sur ce dernier est déposé la goutte de salicylate de méthyle, à 2,5 cm de la sortie du tube.

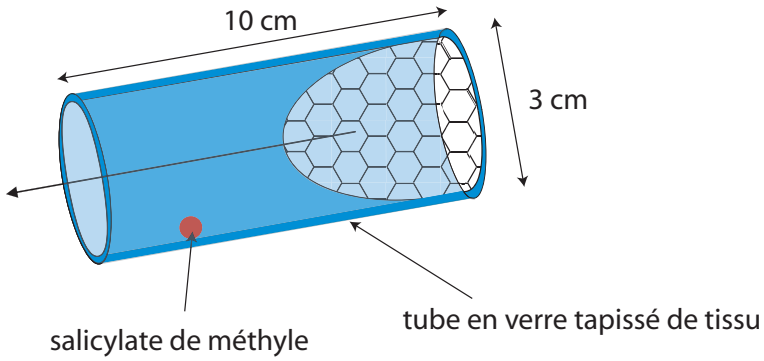


Fig. 3.19- La mousse passe à travers un tube en verre tapissé de tissu. Elle passe sur le salicylate de méthyle et en entraîne une partie. En sortie de tube, elle est récupérée, pour doser le salicylate qu'elle a pu entraîner.

Les mousses les plus sèches ne résistent pas au passage sur le tissu, elles cassent. En effet, la porosité peut aspirer le liquide d'une mousse, comme nous l'avons vu au chapitre précédent. Or lorsque la fraction liquide atteint une valeur critique, elle ne peut plus s'écouler et se casse lorsqu'une déformation l'obligeant à se réarranger lui est imposée. Ces deux phénomènes ont lieu simultanément ici, tout d'abord une mousse humide arrive sur le tissu lequel aspire une partie du liquide de la mousse, puis lorsque la mousse est trop sèche, elle casse, puisque nous la forçons à s'écouler en continu, et provoquons donc des T1. Seules les mousses les plus humides supportent de passer sur le tissu.

La mousse est récupérée en sortie de tube, les parois en verre sont rincées et les effluents récupérés pour vérifier que la goutte de salicylate n'a pas traversé le tissu et n'a pas contaminé le tube en verre. Le dosage du salicylate de méthyle est fait comme précédemment en chromatographie en phase gazeuse.

Notons ϕ la quantité de salicylate de méthyle récupéré par la mousse rapportée à la quantité initialement déposée sur le tissu. ϕ est représentée sur la figure 3.20, en fonction de la fraction liquide ϵ de la mousse initiale. 120 ml de mousse sont passés à un débit de 1 ml/s pendant 2 minutes sur le tissu.

Pour les plus petites fractions liquides, nous ne retrouvons presque pas de salicylate dans la mousse. Lors du passage de $\epsilon = 4\%$ à $\epsilon = 5\%$, ϕ passe brutalement à plus de 20% (alors

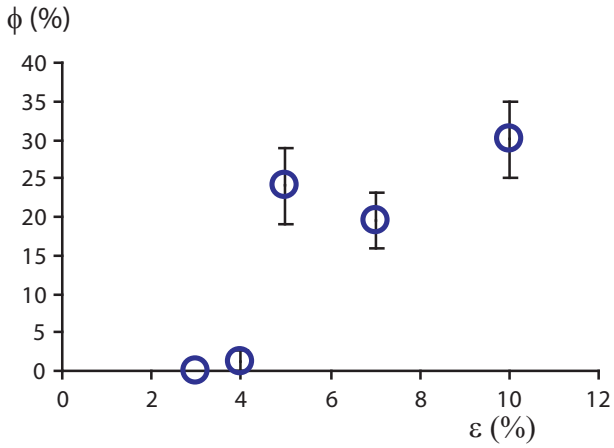


Fig. 3.20- Fraction de salicylate récupéré dans la mousse ϕ pour différentes fractions liquides initiales.

qu'elle était proche de 1%). La variation de ϕ avec ϵ n'est pas continue.

Nous avons vu que lorsque la mousse est mise en contact avec le tissu, elle commence par casser, les premières rangées de bulles ne peuvent donc pas transporter d'huile. Le liquide issu de ces ruptures de films, entre dans le tissu. Le reste de la mousse, qui arrive après peut alors s'écouler sur le tissu humide et donc la dépression dans les pores est moins grande. La quantité de liquide absorbée par le tissu est également moins grande et la mousse peut s'écouler sans casser. C'est cette mousse qui va alors pouvoir aspirer puis transporter l'huile. Nous avons mesuré la quantité de liquide absorbée par le tissu au cours du passage de la mousse, pour différentes valeurs de ϵ. L'expérience est alors la même que celle décrite plus haut (figure 3.19), sans dépôt de salicylate de méthyle. La mousse entre dans le cylindre de tissu à $t = 0$, nous la laissons passer durant un temps t. Puis le débit de mousse est stoppé, le tissu retiré du cylindre de verre qui le supporte. Il est déplié et la mousse restante est raclée en une fois, toujours de la même manière. La figure 3.21 schématise un morceau de tissu déplié après le raclage. La zone où le liquide est entré est plus humide que la zone à l'air libre.

La figure 3.22 représente le rapport ξ de la masse de liquide dans le tissu après le passage de la mousse sur la masse de liquide dans un tissu complètement imbibé, au cours du temps, pour différentes ϵ initiales.

Plus ξ est élevé, plus le tissu s'imbibe de liquide. La mousse sera donc plus rapidement efficace à l'enlèvement de salicylate de méthyle. Par exemple, pour l'expérience présentée sur la figure 3.20, à 120 s, ξ est inférieur à 70% pour $\epsilon = 3\%$, alors qu'il est proche de 90% pour $\epsilon = 5\%$. Il faudrait attendre 300 s pour qu'une mousse à 3% imbibe autant le tissu.

L'extraction du polluant par la mousse sur le tissu se fait donc en deux étapes. Dans un premier temps, la forte dépression du tissu casse la mousse, ce qui permet à la porosité du

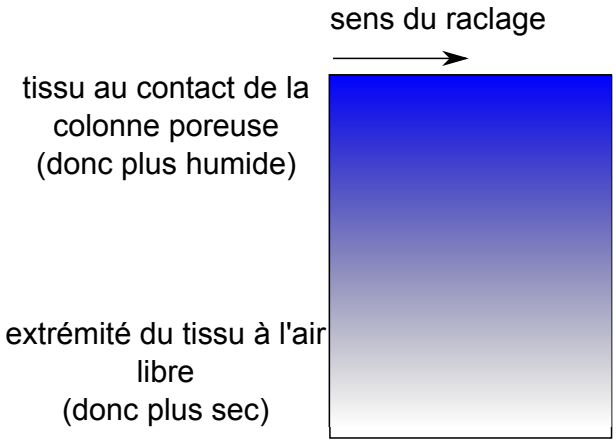


Fig. 3.21- Schéma d'une pièce de tissu déplié après le passage de la mousse. Le raclage s'effectue en une fois pour redéposer le moins possible de liquide dans le tissu. Le liquide dans le tissu n'est pas réparti de manière homogène : la zone directement en contact avec la colonne poreuse est plus humide que l'extrémité à l'air libre.

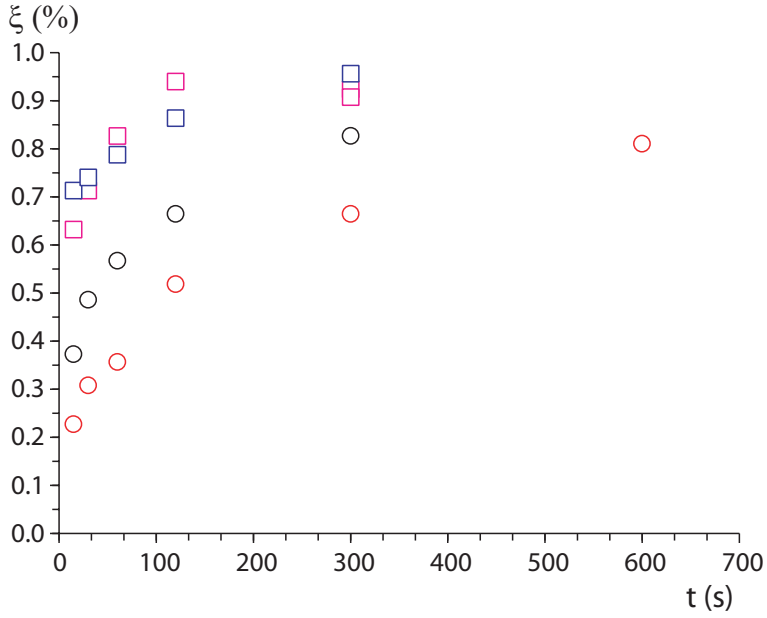


Fig. 3.22- Masse de liquide imprégnée dans le tissu lors du passage de la mousse au cours du temps. Les cercles rouges représentent $\epsilon = 2\%$, les cercles noirs $\epsilon = 3\%$, les carrés roses, $\epsilon = 5\%$, les carrés bleus $\epsilon = 7\%$

tissu de se remplir (partiellement) de liquide. La dépression du tissu est donc diminuée, nous supposons comme Pezron et al. [14], que les pores les plus petits sont remplis, il ne reste que les pores les plus grands qui puissent se remplir. Ensuite, le reste de la mousse peut s'écouler

sur le tissu mouillé et emporter une partie de l'huile piégée dans le tissu.

Dans cette expérience, c'est le temps d'application de la mousse sur le tissu qui a été fixée et non la quantité de mousse passant sur la surface. Il serait intéressant de mesurer l'extraction pour une expérience où le temps de passage seraît laissé libre. Nous pourrions alors vérifier qu'une mousse plus sèche qui passe plus longtemps (et qui dépose donc plus de liquide dans le tissu) peut emporter autant d'huile qu'une mousse humide qui passe durant un temps plus court.

3.5 Conclusion

Malgré les propriétés connues des huiles comme anti-mousses, nous avons pu déterminer des couples huile - liquide moussant qui permettent le passage de l'huile dans le réseau des bords de Plateau de la mousse sans la casser. l'imbibition de la mousse mise en contact avec un bain de liquide se fait en suivant une loi d'imbibition classique en $t^{1/2}$. Les mécanismes permettant le passage de l'huile initialement bloquée dans un pore vers la mousse ont été identifiés. Nous avons vu qu'à l'échelle d'un pore, pour faire passer le plus d'huile possible du pore vers la mousse, les bords de Plateau doivent être les plus grands possible, mais la dépression du liquide qui les constitue doit être plus grande que celle de l'huile. Il existe donc une valeur optimum de rayon de bords de Plateau qu'il serait intéressant de déterminer en faisant varier la fraction liquide et la taille des bulles de la mousse.

Enfin, nous avons montré que le salicylate de méthyl imprégné dans du jean pouvait être absorbé par la mousse sélectionnée à hauteur de 30% de la quantité d'huile déposée initialement. En faisant varier le temps de passage de la mousse sur le tissu, nous pourrions déterminer la quantité minimale de liquide que doit contenir le tissu pour réduire suffisament sa différence de pression avec la mousse, et permettre à cette dernière d'emporter l'huile.

Conclusion générale

Nous nous sommes intéressés au passage des interfaces dans des milieux poreux, que ces derniers soient solides ou une mousse liquide. Dans le cas de l'impact d'une goutte sur un pore unique, nous avons déterminé quelle était l'influence de la vitesse d'impact sur l'imprégnation, comment l'apport d'énergie cinétique permet de forcer l'imprégnation d'un pore non mouillant alors qu'elle limite la quantité de liquide entrée dans un pore mouillant.

Le passage forcé d'une mousse à travers un tube en verre nous a permis de sonder la capacité d'une mousse à retenir le liquide la constituant : le passage des bulles dans la constriction consomme du liquide, puisque la mousse récupérée dans le tube est plus humide que la mousse initiale. La configuration des bulles à l'entrée du tube peut conduire à l'aspiration de liquide seul : c'est dans ce cas la capacité de la mousse à résister au réarrangement de ses bulles qui est testée. Pour les mousses très sèches le seuil d'aspiration de gaz seul nous a permis d'apporter de nouveaux éléments dans la comprehension de la stabilité des mousses liquides. La mousse ne peut donc pas être simplement forcée dans un pore, et la mousse récupérée dans cette porosité a des caractéristiques différentes, en fraction liquide et taille de bulles de la mousse initiale.

Une mousse, considérée alors comme un milieu poreux, peut s'imprégner d'un liquide autre que celui qui la constitue. Nous avons testé l'imprégnation d'une huile, lorsque celle-ci ne se comporte pas comme un anti-mousse. Lorsque la dépression dans la mousse est plus grande que celle du tissu, l'huile peut sortir des pores du tissu pour entrer dans la mousse. La quantité d'huile déplacée dépend alors de l'ouverture des bords de Plateau. Pour déplacer un maximum d'huile, il doit donc exister une valeur optimum de fraction liquide, qui permet d'atteindre une dépression supérieure à celle du poreux, avec une ouverture suffisamment grande des bords de Plateau.

La quantité de liquide déplacée dépend alors de l'ouverture des bords de Plateau de la mousse, mais aussi de la fraction de liquide moussant passé dans le tissu, qui permet de réduire la dépression exercée par la porosité sur la mousse, et donc de maintenir la mousse sur le tissu plus longtemps.

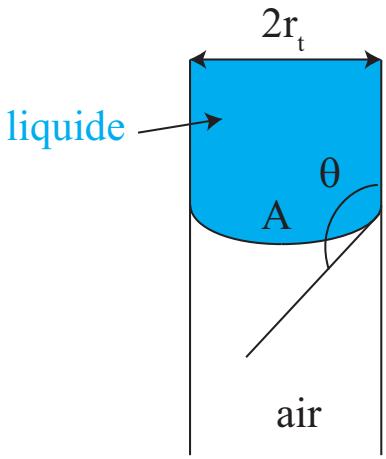
Annexe A

Projection des forces capillaires

Nous regardons ici le détail des pressions exercées dans les capillaires hydrophobes et hydrophiles.

A.1 Cas non mouillant

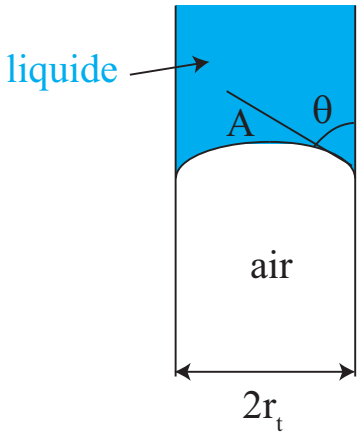
La pression à l'intérieur du liquide (en A) est positive :



La pression dans le liquide proche de l'interface est donc $-\frac{2\pi\gamma cos\theta}{\pi r_t}$

A.2 Cas mouillant

La pression à l'intérieur du liquide (en A) est négative :



La pression dans le liquide proche de l'interface est donc $\frac{2\pi\gamma cos\theta}{\pi r_t}$

Annexe B

Filtre en mousse aqueuse

Nous présentons dans cette annexe une application des résultats obtenus dans la partie « Imprégnation forcée de mousse dans un pore ». Nous avons vu que nous pouvons aspirer du liquide d'une mousse en jouant sur la taille des bulles, la taille du tube et le débit d'aspiration. En ajustant la fraction liquide d'une mousse, nous allons voir comment nous pouvons l'utiliser comme filtre à particules. Les travaux que nous présentons ici ne sont pas complètement aboutis, mais donnent des pistes pour de futures études.

B.1 Capture de particules

Nous avons vu en 2.1 que selon la fraction liquide de la mousse, la taille des bords de Plateau (et des noeuds) est différente, par exemple, le rayon de courbure d'une mousse à 10% est environs de 3 fois plus grand que celui d'une mousse à 1%. Des travaux effectués au laboratoire [34] ont montré que la mousse peut capturer ou laisser passer des particules dans son réseau de bords de Plateau, selon la fraction liquide.

Leur expérience consiste à injecter des particules dans une mousse en drainage forcé, c'est à dire dont la fraction liquide est contrôlée et homogène sur toute sa hauteur. Ils établissent un critère de capture des particules en deux régimes. Pour les faibles fractions liquides, la géométrie seule est en jeu : si la particule est plus petite que l'ouverture des bords de Plateau (figure B.1) elle peut circuler dans le réseau, sinon, elle est bloquée.

Pour les fractions liquides plus élevées, le critère de capture est influencé par les écoulements de liquide autour de la particule, il est appelé critère de franchissement hydrodynamique. Les forces appliquées sur la particule, sont d'une part la force d'entrainement visqueuse, qui provient du drainage forcé appliqué à la mousse, et d'autre part la force capillaire qui est la force de résistance des interfaces à la déformation induite par le passage de la particule. Le modèle de capture géométrique est établi numériquement à l'aide de SurfaceEvolver.

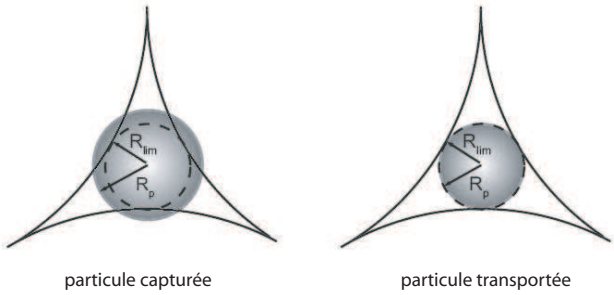


Fig. B.1- Critère de capture géométrique : pour les faibles fractions liquides, la particule ne passe que si son rayon R_p est inférieur au rayon R_{lim} d'ouverture des bords de Plateau.

La figure B.2 présente la comparaison des seuils de capture selon le rapport du rayon des particules R_p sur le rayon des bulles r_b mesurés aux deux modèles (géométriques en pointillés, et hydrodynamique en traits pleins) pour différentes tailles de bulles.

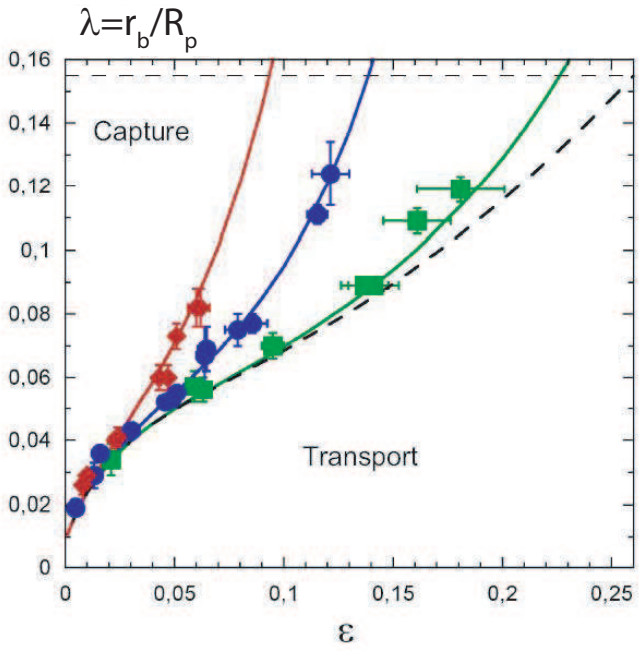


Fig. B.2- Critère de capture des particules selon le rapport R_p/r_b pour différentes fractions liquides. Les carrés verts correspondent aux mesures pour r_b=0,7 mm, les cercles bleus pour r_b=1,5 mm et les losanges rouges pour r_b=2,05 mm. La ligne pointillée correspond au critère géométrique valable pour les petites fractions liquides et les lignes pleines verte, bleue et rouge au modèle hydrodynalique pour les trois tailles de bulles respectives.

B.2 Fabrication du filtre

Puisque la mousse peut capturer des particules, nous pouvons utiliser cette propriété pour fabriquer des filtres de porosité variable. En effet, en contrôlant la perméabilité de la mousse, on peut fabriquer un filtre à particules adaptable, et non colmatable puisque une fois que les particules sont capturées, on peut les évacuer du filtre en augmentant la fraction liquide de la mousse et ainsi les libérer.

Nous avons mis en place un tel filtre à l'échelle d'un circuit microfluidique, qui sont des systèmes dans lesquels le tri de particules peut d'avérer particulièrement difficile puis puisque les filtres classiques sont bouchés par les particules qui ne passent pas au travers. Nous avons vu dans le chapitre sur l'aspiration de la mousse à travers un pore (chapitre 2.3.2), que nous pouvions aspirer du liquide de la mousse sans faire passer de bulles, à condition de respecter un certain débit d'aspiration et le bon rapport de taille de bulles sur taille de tube. Nous avons donc mis en place un filtre constitué d'une chambre de 1 mm sur 1 mm reliée à trois canaux (schématisé sur la figure B.3), un pour l'entrée de la mousse (formée par une jonction T en amont). Cette entrée servira par la suite à l'entrée des particules. Une pour la sortie, et une dernière reliée à un pousse seringue permettant d'aspirer ou d'injecter de liquide dans la mousse.

Le circuit est fabriqué en utilisant la méthode classique de photolithographie par masque, telle que celle décrite dans [58] (chapitre 2) à l'aide d'une résine SU-8 (50, MicroChem) pour obtenir le négatif du circuit. La lithographie a été effectuée selon le protocole suivant :

- La résine SU-8 est étalée sur un wafer de silicium à 2000 tours/s pendant 30 s après un palier de 5 s à 500 tours/s. Les accélérations se font à chaque fois en 5 s.
- Le wafer recouvert est alors cuit une première fois pendant 20 minutes à 95° sur une plaque chauffante.
- L'insolation est faite sous UV (de longueur d'onde comprise entre 350 et 400 nm) pendant 30 s.
- Le wafer est recuit à 95° pendant 5 minutes
- Le développement se fait en plongeant le wafer dans une solution de Developer (MicroChem).
- Lorsque la résine non réticulée est dissoute, le wafer est rincé à l'isopropanol.

Une fois ce masque réalisé, nous pouvons mouler un circuit en PDMS (Sylgard), préparé à partir de la base mélangée à 1/10 (en masse) de réticulant. Une fois la polymérisation terminée, le circuit obtenu est démoulé, les entrée et sorties percées, et placé au four à plasma ainsi qu'une lame de verre qui servira de support au circuit. Le passage au plasma permet

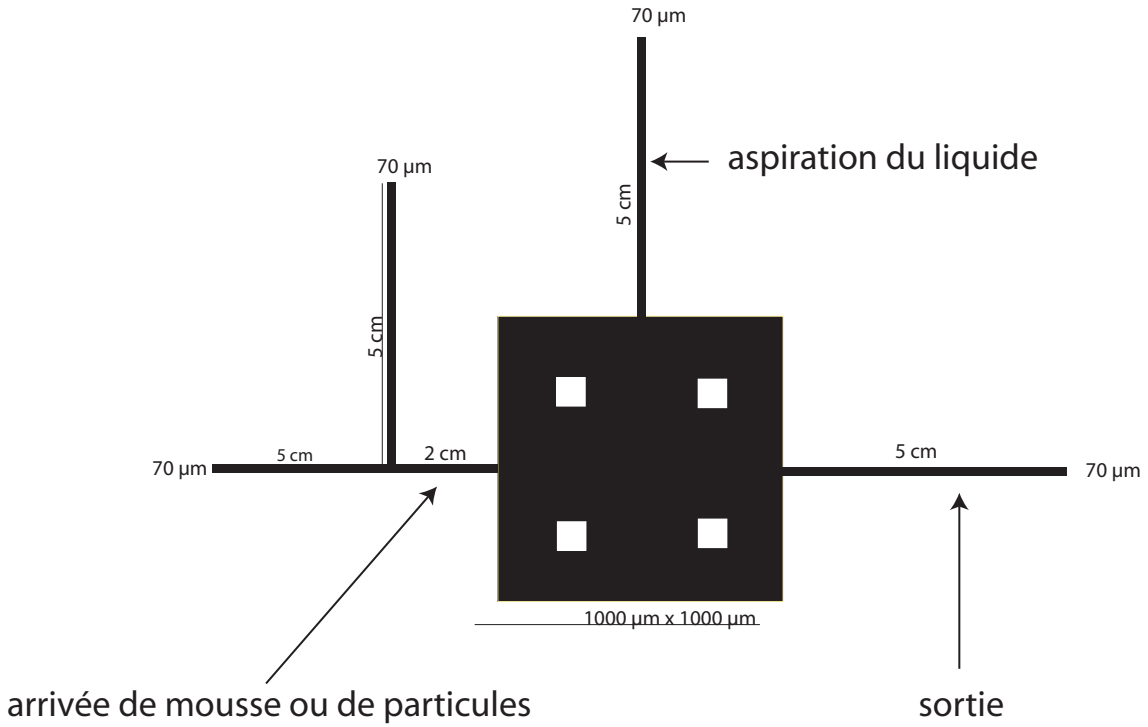


Fig. B.3- Schéma du circuit microfluidique mis en place pour tester le filtre en mousse. Les quatres carrés blancs dans la chambre destinée à contenir le filtre servent de « piliers » pour empêcher l'affaissement de cette zone dont le rapport d'aspect est grand ($\sim$ 50 μm de hauteur pour 1 mm de largeur).

d'obtenir des surfaces propres, l'adhésion entre le verre et le PDMS est alors très bonne, ce qui permet d'assurer l'étanchéité lorsque le circuit en PDMS est placé sur la plaque de verre.

B.3 Observations

Sur la figure B.4 a), nous voyons comment les bulles sont initialement réparties dans le circuit. La mousse formée est très humide et les bulles peu ou pas déformées. Sur la photo b), nous avons retiré du liquide à cette mousse en aspirant du liquide. Les bulles sont très déformées, certaines ont disparues (des films ont été cassés).

Nous avons réussi à former une mousse dans une chambre au sein d'un circuit microfluidique, et avons vérifié que nous pouvions contrôler la fraction liquide de cette mousse.. Le passage des particules dans le filtre pourra ainsi être contrôlé en ajustant la quantité de liquide disponible dans la chambre. Ce filtre est donc adaptable sur toute une gamme de particules à capturer, de l'ordre de la dizaine à la centaine de microns, et n'est pas colmatable, puisque les particules peuvent être libérées en ajustant la fraction volumique de liquide dans le filtre.

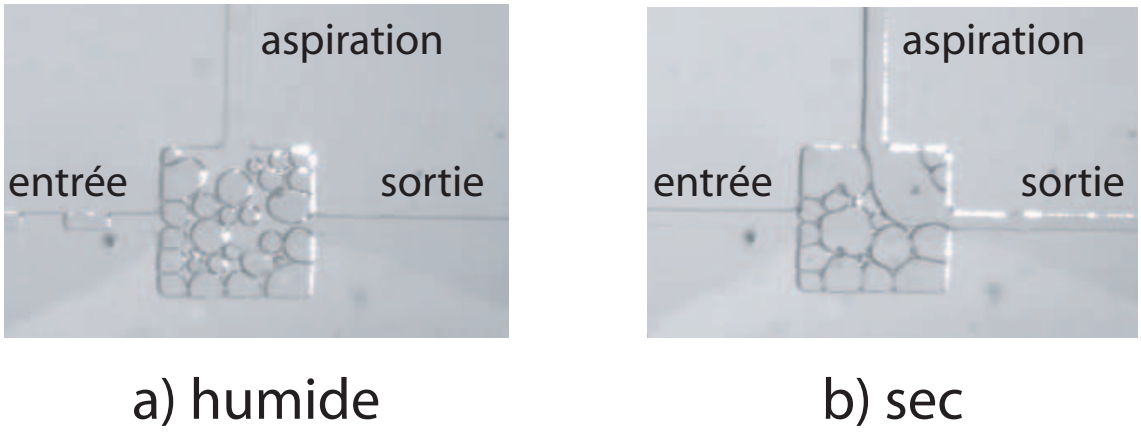


Fig. B.4- Images du filtre en mousse dans le circuit microfluidique. a) les bulles formées dans la jonction T se retrouvent dans la chambre. La mousse ainsi formée est très humide, et les bulles peu ou pas déformées. b) l'aspiration du liquide a permis d'assécher la mousse, des particules peuvent alors être injectées pour tester la capacité de capture de ce filtre.

Notons tout de même qu'il serait intéressant d'étudier la présence de zones de stagnation du liquide dans la chambre remplie de mousse, c'est à dire de zones où le liquide ne s'écoule pas autour des bulles (comme dans les coins par exemple), qui conduirait à une diminution du volume de mousse filtrante.

Bibliographie

[1] É. Lorenceau and D. Quéré. Drops impacting a sieve. *Journal of Colloid and Interface Science*, 263 :244–249, 2003.

[2] D. Kannangara, H. Zang, and W. Shen. Liquid-paper interactions during liquid drop impact and recoil on paper surfaces. *Colloids and Surfaces A*, 280 :203–215, 2006.

[3] S. Chandra and C. T. Avedisian. Observaions of droplet impingement on a ceramic porous surface. *Journal of Heat and Mass Transfer*, 35(10) :2377–2388, 1992.

[4] N. Hsu and N. Ashgriz. Nonlinear penetration of liquid drops into radial capillaries. *Journal of Colloid and Interface Science*, 270 :146–162, 2003.

[5] N. C. Reis Jr., R. F. Griffiths, and J. M. Santos. Numerical simulation of the impact of liquid droplets impinging on porous surfaces. *Journal of Computational Physics*, 198 :747–770, 2004.

[6] N. C. Reis Jr., R. F. Griffiths, and J. M. Santos. Parametric study of liquid droplets impinging on porous surfaces. *Applied Mathematical Modeling*, 32 :341–361, 2008.

[7] A. L. Yarin. Drop impact dynamics : splashing, spreading, receding, bouncing... *Annual Review of Fluid Mechanics*, 38 :159–192, 2006.

[8] Š. Šikalo, M. Marengo, C. Tropea, and E.N. Ganić. Analysis of impact of droplets on horizontal surfaces. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 25 :503–510, 2001.

[9] H. Marmanis and S. T. Thoroddsen. Scaling of the fingering pattern of an impacting drop. *Physics of Fluids*, 8 :1344–1346, 1996.

[10] M. Rein. Phenomena of liquid drop impact on solid and liquid surfaces. *Fluid Dynamics Research*, 12(2) :61, 1993.

[11] C. Clanet, C. Béguin, D. Richard, and D. Quéré. Maximal deformation of an impacting drop. *Journal of Fluid Mechanics*, 517 :199–208, 2004.

[12] C. D. Stow and M. G. Hadfield. *Proceedings of the Royal Society*, 373 :419, 1981.

[13] N. Mourougou-Candoni, B. Prunet-Foch, F. Legay, M. Vignes-Adler, and K. Wong. Influence of dynamic surface tension on the spreading of surfactant solution droplets impac-

ting onto a low-surface-energy solid substrate. *Journal of Colloid and Interface Science*, 192 :129–141, 1997.

[14] I. Pezron, G. Bourgain, and D. Quéré. Imbibition of a fabric. *Journal of Colloid and Interface Science*, 173 :319–327, 1995.

[15] J. Jurin. An account of some experiments shown before the royal society ; with an enquiry into the cause of the ascent and suspension of water in capillary tubes. *Philosophical Transactions*, 30 :739–747, 1717–1719.

[16] E. W. Washburn. The dynamics of capillary flow. *Physical Review*, 17(3) :273–283, 1921.

[17] D. Quéré. Inertial capillarity. *Europhysics Letter*, 39(5) :533–538, 1997.

[18] A. Delbos, E. Lorenceau, and O. Pitois. Forced impregnation of a capillary tube with drop impact. *Journal of Colloid and Interface Science*, 341 :171—-177, 2010.

[19] M. L. Hair. Effect of surface structure on the reaction of silica surface with hydrogen-sequestering agents. *Journal of Colloid and Interface Science*, 60(1) :154–161, 1977.

[20] P. G. de Gennes, F. Brochard-Wyart, and D. Quéré. *Gouttes, Bulles, Perles et Ondes*, Chap. 3(1.1), Belin 2005.

[21] R. E. Johnson and R. H. Dettre. Contact angle wetability and adhesion. *Advances in Chemistry Series*, 43(112), 1964.

[22] A. Marmur. Penetration af a small drop into a capillary. *Journal of Colloid and Interface Science*, 122(1) :209–219, 1987.

[23] S. T. Thoroddsen, T. G. Etoh, K. Takehara, N. Ootsuka, and Y. Hatsuki. The air bubble entrapped under a drop impacting on a solid surface. *Journal of Fluid Mechanics*, 545 :203–212, 2005.

[24] P. G. de Gennes. Wetting : statics and dynamics. *Reviews of Modern Physics*, 57(3) :827–863, 1985.

[25] R. G. Cox. The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. *Journal of Fluid Mechanics*, 168 :169–194, 1986.

[26] A. M. Cazabat. Wetting. from macroscopic to microscopic scale. *Advances in Colloid and Interface Science*, 42 :64–87, 1992.

[27] L.D Landau and Levich B. Draging of a liquid by a moving plate. *Acta Physicochimica URSS*, 17 :42–54, 1942.

[28] J. Bico and D. Quéré. Falling slugs. *Journal of Colloid and Interface Science*, 243 :262–264, 2001.

[29] F. P. Bretherton. The motion of long bubbles in tubes. *Journal of Fluid Mechanics*, 10(2), 1961.

[30] H. Ding and T. Theofanous. Droplet impact on a porous substrate : a capillary tube model. *Abstract in 62nd Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics*, 2009.

[31] D. Weaire and R. Phelan. The structure of monodisperse foam. *Philosophical Magazine Letters*, 70 :345–350, 1994.

[32] S. A. Koehler, S. Hilgenfeldt, and H. A. Stone. A generalized view of foam drainage : experiment and theory. *Langmuir*, 16 :6327–6341, 2000.

[33] E. Lorenceau, N. Louvet, F. Rouyer, and O. Pitois. Permeability of aqueous foams. *European Physical Journal E*, 28(3) :293–3046, 2009.

[34] N. Louvet. Etude multi-échelles du transport de particules dans les mousses liquides. *Thèse*, Université Marne la Vallée, 2009.

[35] R. Höhler, Y. Yip Cheung Sang, E. Lorenceau, and S. Cohen-Addad. Osmotic pressure and structures of monodisperse ordered foam. *Langmuir*, 24(2) :418–425, 2008.

[36] D. Weaire and S. Hutzler. Physics of foams. *Oxford University Press*, 1999.

[37] V. Bergeron. Disjoining pressures and film stability of alkyltrimethylammonium bromide foam films. *Langmuir*, 13 :3474–3482, 1997.

[38] V. Carrier. Stabilité comparée des mousses et des émulsions aqueuses. *Thèse*, Université Bordeaux 1, 2001.

[39] V. Carrier, S. Destouesse, and A. Colin. Foam drainage : a film contribution ? *Physical Review E*, 65(6) :061404, 2002.

[40] O. Pitois, E. Lorenceau, N. Louvet, and F. Rouyer. Specific surface area model for foam permeability. *Langmuir*, 25(1) :97–100, 2009.

[41] O. Pitois, C. Fritz, and M. Vignes-Adler. Hydrodynamic resistance of a single foam channel. *Colloids and Surfaces A*, 261 :109–114, 2005.

[42] O. Pitois, N. Louvet, E. Lorenceau, and F. Rouyer. Node contribution to the permeability of liquid foams. *Journal of Colloid and Interface Science*, 322 :675—-677, 2008.

[43] A. V. Nguyen. Liquid drainage in single plateau borders of foam. *Journal of Colloid and Interface Science*, 249 :194–199, 2001.

[44] F. Rouyer, S. Cohen-Addad, M. Vignes-Adler, and R. Höhler. Dynamics of yielding observed in a three-dimensional aqueous dry foam. *Physical Review E*, 67(2) :214051–214057, 2003.

[45] A. Saint-Jalmes and D. J. Durian. Vanishing elasticity for wet foams : Equivalence with emulsions and role of polydispersity. *Journal of Rheology*, 43(6) :1411–1422, 1999.

[46] T. G. Mason, J. Bibette, and D. A. Weitz. Yielding and flow of monodisperse emulsions. *Journal of Colloid and Interface Science*, 179 :439–448, 1996.

[47] Q. Sun and S. Hutzler. Studying localized bubble rearrangements in 2d liquid foams ising a hybrid lattice gas model. *Colloids and Surface A*, 263 :27–32, 2005.

[48] H. C. Cheng and R. Lemlich. Errors in the measurement of bubbles size distribution in foam. *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals*, 22 :105–109, 1983.

[49] P. Garsteki, M. J. Fuertman, H. A. Stone, and G. M. Whitesides. Formation of droplets and bubbles in a microfluidic t-junction—scaling and mechanism of break-up. *Lab on Chip*, 6 :437–446, 2006.

[50] M. de Menech, P. Garstecki, F. Joussse, and H. A. Stone. Transition from squeezing to dripping in a microfluidic t-shaped junction. *Journal of Fluid Mechanics*, 595 :141–161, 2008.

[51] M. D. Lacasse, G. S. Grest, and D. Levine. Déformation of small compressed droplets. *Physical Review E*, 54(5) :5436–5446, 1996.

[52] A. L. Biance, S. Cohen-Addad, and R. Höhler. Topological transition dynamics in a strained bubble cluster. *Soft Matter*, 5 :4672–4679, 2009.

[53] E. A. van Nietrop, B. Scheid, and H. A. Stone. On the thickness of soap films : an alternative to frankel's law. *Journal of Fluid Mechanics*, 602 :119–127, 2008.

[54] N. D. Denkov. Mechanisms of foam destruction by oil–based antifoams. *Langmuir*, 20 :9463–9505, 2004.

[55] A. K. Vikingstad, A. Skauge, H. Hoiland, and M. Aarra. Foam-oil interactions analyzed by static foam tests. *Colloids and Surfaces A*, 260 :189–198, 2005.

[56] L. L. Schramm and J. J. Novosad. Micro visualisation of foam ineractions with a crude oil. *Colloids and Surfaces*, 46 :21–43, 1990.

[57] H. Caps, S. J. Cox, H. Decauwer, D. Weaire, and N. Vandewalle. Capillary rise in foams under microgravity. *Colloids and Surfaces A*, 261 :131–134, 2005.

[58] Zheng Cui. Micro – nanofabrication. *Springer*, Higher Education Press, 2005.