



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE
École Nationale Supérieure des Industries Chimiques
Laboratoire des Sciences du Génie Chimique
École Doctorale RP2E

THÈSE

Présentée pour obtenir le grade de

Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine
Spécialité : Génie des Procédés et des Produits

Par

Nicolas DIETRICH

Sujet :

ÉTUDE LOCALE ET EXPÉRIMENTALE DES PHÉNOMÈNES INTERFACIAUX

Soutenue publiquement le 13 Novembre 2008

Membres du jury

Président	M. Noël Midoux, Professeur (LSGC-ENSIC, Nancy)
Rapporteurs	M. Laurent Limat, Directeur de recherche CNRS (MSC-ESPCI, Paris) M. Daniel Schweich, Directeur de recherche CNRS (LGPC-CPE, Lyon)
Examineurs	M. Huai-Zhi LI, Professeur (directeur de thèse, LSGC-ENSIC, Nancy) Mme. Souhila PONCIN, MdC (co-directrice de thèse, LSGC-ENSIC, Nancy) M. Patrick LEGENTILHOMME, Professeur (GEPEA-Université de Nantes, Saint-Nazaire)
Invité	M. Xavier FRANK, Chargé de recherche INRA (ENGREF-INRA, Nancy)

Remerciements

J'ai préparé ce travail au sein du Laboratoire des Sciences du Génie Chimique (LSGC) à Nancy en tant que allocateur de recherche et également en tant que moniteur du Centre d'Initiation de l'Enseignement Supérieur (CIES) de Lorraine à la faculté de pharmacie de Nancy. La soutenance passée, une page se tourne... je voudrais en profiter pour remercier les différentes personnes avec lesquelles j'ai eu la chance de travailler et qui m'ont aidée de près ou de loin à réaliser ce travail.

Je voudrais tout d'abord remercier les membres de mon jury, Laurent Limat et Daniel Schweich pour avoir accepté de rapporter ce travail ainsi que pour la pertinence de leurs remarques durant la soutenance qui ont permis d'approfondir et d'enrichir les problématiques abordées au cours de ce travail. Je tiens à exprimer également mes remerciements aux autres membres du jury, qui ont accepté d'évaluer mon travail de thèse, à savoir Patrick Legentilhomme et Xavier Frank.

Ma profonde reconnaissance revient ensuite tout naturellement au professeur Huai-Zhi Li, mon directeur de thèse, pour la confiance qu'il m'a accordée en me confiant ce sujet de thèse, son soutien permanent, sa rigueur, son envie de partager ses connaissances. Je tiens également à le remercier pour la sympathie qu'il m'a témoignée au cours de ces trois années de thèse.

Je remercie Madame Souhila Poncin, ma co-directrice de thèse, pour son aide précieuse, sa présence, sa gentillesse et sa disponibilité qui m'ont permis de travailler dans d'excellentes conditions et aussi pour ces nombreux conseils précieux concernant le métier d'enseignant-chercheur.

La thèse constitue une expérience intense, passionnante et marquante. Grâce à Huai-Zhi et Souhila, elle a été de plus agréable, vivante, et excitante. J'ai beaucoup appris au cours de ma thèse, tant du point de vue des expériences simples, des raisonnements en lois d'échelle que de la manière de présenter de manière attractive mes résultats. Merci pour toute cette énergie, ces idées, ces intuitions. Je souhaite à tous les doctorants d'avoir le même encadrement et la même interaction et liberté dont j'ai bénéficié.

Je tiens à remercier le professeur Noël Midoux, président du jury, d'une part d'avoir accepté de présider le jury et d'autre part pour l'intérêt qu'il a toujours porté à ce travail, pour les différentes discussions, les explications physiques des phénomènes étudiés et pour sa contribution très importante et riche concernant la formation de bulles.

Je voudrais remercier Michel Sardin, directeur du LSGC, et François Lapique, responsable du groupe SYSPOL (Systèmes Polyphasiques), pour m'avoir accueilli au laboratoire.

Merci aux personnes de l'administration, de l'atelier de mécanique du LSGC, des services techniques (SEMI) et de l'informatique (SIRC) pour permettre le bon fonctionnement du laboratoire.

Certains des résultats présentés sont à partager avec des étudiants de l'ENSIC, Sylvia Pheulpin (Projet de fin d'étude 2006) ; Nadia Mayoufi (MASTER Génie des Procédés 2007) et Junwei Qian (MASTER Génie des Procédés 2008) qui ont collaboré à ce travail en partie sous ma responsabilité, je vous remercie tous. Je tiens également à remercier Changwei Zhao de l'université de Tsinghua (Chine) pour sa collaboration précieuse sur l'effet Weissenberg.

Je tiens enfin à remercier mes amis doctorant qui m'ont aidé au cours des trois ans de cette thèse et plus particulièrement Hélène Debas avec qui j'ai partagé bureau et laboratoire pendant 3 ans. Je me rend compte aujourd'hui la chance que j'ai eu de pouvoir partager les découvertes ou les problèmes dans une excellente ambiance.

Un remerciement particulier pour Sébastien Gérard qui a en grande partie contribué à la relecture du manuscrit et à la préparation du pot de soutenance ainsi que pour son soutien pendant toutes ses années.

Une pensée au génie de Beethoven et Mozart - en particulier la 7ème symphonie - qui m'ont inspiré pendant toutes ces années et en particulier durant la rédaction de ce manuscrit.

Je tiens enfin à exprimer mes remerciements ainsi que mon affection à tous mes proches, qu'ils soient amis ou de la famille, pour leur patience et leur soutien parce qu'ils ont toujours cru en moi et m'ont toujours fait confiance.

À ma famille,

À ceux qui me sont chers

Table des matières

CHAPITRE I :Introduction, Dispositifs Experimentaux Et Techniques De Mesures.....	1
I.1. Introduction Générale.....	3
I.2. Dispositifs expérimentaux.....	5
I.2.1. Colonne pour les bulles/gouttes/sphères et les interfaces.....	5
I.2.2. Cellule de « Weissenberg ».....	6
I.2.3. Cellule de cisaillement orthogonale.....	6
I.2.4. Cellule de nucléation microscopique.....	7
I.2.5. Cellule de cisaillement de type « Couette ».....	8
I.2.6. Micro-mélangeurs.....	9
I.3. Techniques de mesures.....	10
I.3.1. Visualisation par caméra rapide.....	10
I.3.2. Vélocimétrie par Images de Particules (PIV).....	12
I.3.2.1. Le montage expérimental du système PIV.....	12
I.3.2.2 Principe de la technique PIV.....	15
I.3.3. Micro-Vélocimétrie par Images de Particules (μ -PIV).....	16
I.3.3.1. Principe de la technique μ -PIV.....	16
I.3.3.2. Le montage expérimental du système μ -PIV.....	16
I.4. Caractérisation des fluides utilisés.....	19
I.4.1. Notions de rhéologie.....	19
I.4.1.1. Viscosité.....	19
I.4.1.2. Mesure de la viscosité.....	22
I.4.2. Propriétés superficielles et interfaciales.....	22
I.4.2.1. Tension superficielle et interfaciale.....	22
I.4.2.2. Mesure de la tension superficielle et de la tension interfaciale.....	23
I.4.3. Fluides newtoniens utilisés.....	24
I.4.4. Fluides non newtoniens utilisés.....	25
I.4.5. Sphères rigides utilisées.....	29
CHAPITRE II : Interfaces Gaz-Liquide.....	32
II.1. Formation de bulles à un orifice immergé.....	33
II.1.1. Revue bibliographique.....	34
II.1.2. Bilan macroscopique des forces au voisinage du détachement.....	41
II.1.3 Formation de bulles à un orifice immergé.....	44
II.1.3.1. Formation d'une bulle d'air dans l'eau.....	44
II.1.3.2 Etude PIV de la formation d'une bulle d'air dans l'eau.....	45
II.1.3.3 Influence de la taille des orifices.....	47
II.1.3.4 Influence des propriétés physico-chimiques de la phase stagnante.....	48
II.1.3.5 Influence de la forme du dispositif d'injection.....	49
II.1.3.6 Comparaison globale des résultats expérimentaux aux différentes corrélations en l'absence d'écoulement extérieur.....	51
II.1.3.7. Corrélations de l'ensemble des résultats obtenus.....	55
II.1.4. Conclusion.....	58

II.2. Formation de bulles sous un écoulement orthogonal	59
II.2.1. Revue bibliographique	59
II.2.2. Résultats expérimentaux	61
II.2.2.1. Mesure de la vitesse de l'écoulement orthogonale par PIV	61
II.2.2.2. Visualisation par caméra rapide	62
II.2.2.3. Mesures des champs de vitesses par PIV	62
II.2.2.4. Evolution du volume de la bulle en fonction de l'écoulement latéral	63
II.2.2.5. Bilan de forces spécifique au domaine exploré	64
II.2.2.6. Evolution du coefficient de traînée	67
II.2.2.7. Corrélation de l'angle de déflexion	68
II.2.2.8. Corrélation du coefficient des forces capillaires	69
II.2.2.9. Corrélation des diamètres de bulle au détachement	70
II.2.2.10. Diamètres de bulle au détachement. Corrélation des résultats	71
II.3. Conclusion	73
III.3. Etude d'un train de bulles dans les milieux newtoniens.....	74
II.3.1. Revue bibliographique	74
II.3.1.a. Ascension d'une bulle isolée	74
II.3.1.b. Ascension d'un train de bulles	81
II.3.2. Ascension de bulles isolées dans des fluide visqueux	84
II.3.2.a. Ascension d'une bulle dans du HV45 50%	84
II.3.2.b. Ascension d'une bulle dans du HV45 65%	85
II.3.2.c. Formes des bulles dans les fluides visqueux	87
II.3.3. Ascension de trains de bulles dans des fluide visqueux.....	89
II.3.4. Champs de vitesse autour de bulles en interaction par PIV	90
II.3.5. Influence des interactions sur la forme de la bulle.....	99
II.3.6. Influence des interactions entre les bulles sur la vitesse de la bulle.....	102
II.3.7. Evaluation de la vitesse des bulles au sein du train	107
II.3.8. Conclusion	110
II.4. Dynamique des bulles à l'échelle microscopique.....	111
II.4.1. Nucléation de bulles et croissance à l'échelle microscopique	112
II.4.1.1. Revue bibliographique	112
II.4.1.2. Description des phénomènes de nucléation et coalescence.....	115
II.4.1.3. Visualisation par μ -PIV	118
II.4.1.4. Influence de la viscosité	122
II.4.1.5. Conclusion	125
II.4.2. Dynamique et formation de bulles dans des microréacteurs.....	126
II.4.2.1. Revue bibliographique	127
II.4.2.2. Ecoulement monophasique – Validation de la mesure par μ -PIV	132
II.4.2.3. Formation de bulles dans les micro-mélangeurs de type « flow-focusing »	134
II.4.2.4. Formation de bulles dans les micro-mélangeurs de « type Y » et de « type T »	148
II.4.2.5. Formation de bulles dans les micro-mélangeurs à courant latéraux.....	156
II.4.2.6. Comparaison des différentes configurations	159
II.4.2.7. Conclusion	162
CHAPITRE III : Interfaces Liquide-Liquide.....	169
III.1. Formation et déformation de gouttes.....	169
III.1.1. Synthèse bibliographique	169
III.1.1.1. Formation de gouttes à un orifice immergé	170
III.1.1.2. Formation de gouttes sous un champ de cisaillement orthogonal.....	174
III.1.1.3. Déformation de gouttes dans une cellule de cisaillement	175
III.1.1.4. Etude PIV des formations et déformations de gouttes	177
III.1.2. Formation de gouttes à un orifice immergé.....	178
III.1.2.1. Différences avec la formation de bulles.....	178
III.1.2.2. Formation d'une goutte d'huile dans de l'eau	179

III.1.2.3. Etude PIV de la formation d'une goutte d'huile dans de l'eau	180
III.1.2.4. Influence de la taille des orifices	182
III.1.2.5. Influence des propriétés physico-chimiques de la phase dispersée.....	183
III.1.2.6. Comparaison globale des résultats expérimentaux aux différentes corrélations en l'absence d'écoulement extérieur.	185
III.1.2.7. Corrélation de l'ensemble des résultats obtenus	192
III.1.3 Formation de gouttes sous un écoulement orthogonal.....	194
III.1.3.1. Mesure de la vitesse d'écoulement orthogonal par PIV.....	194
III.1.3.2. Visualisation par caméra rapide.....	194
III.1.3.3. Evolution du volume de la goutte en fonction de l'écoulement latéral.....	195
III.1.3.4. Evolution de l'angle de déflexion	196
III.1.3.5. Influence de la vitesse de la phase continue sur la taille des gouttes	197
III.1.4 Déformation de gouttes sous un champs de cisaillement pur	200
III.1.4.1. Mesure de la vitesse de cisaillement.....	200
III.1.4.2. Déformation de la goutte en fonction de la vitesse de cisaillement	200
III.1.4.3. Différents scénari de rupture de gouttes	207
III.1.5 Conclusion.....	210
III.2. Traversée d'Interfaces liquide-liquide par des inclusions	213
III.2.1. Synthèse bibliographique	213
III.2.1.1. Ascension de bulle en milieu newtonien	213
III.2.1.2. Sédimentation d'une sphère rigide en milieu newtonien.....	214
III.2.1.3. Notions sur les instabilités de surface Rayleigh–Taylor et Kelvin–Helmholtz.....	216
III.2.1.4. Traversée d'une interface liquide–liquide par une inclusion	220
III.2.2. Traversée d'une interface liquide-liquide par une bulle.....	229
III.2.2.1 Choix des systèmes liquide-liquide étudiés	229
III.2.2.2. Présentation des résultats	230
III.2.2.3. Paramètres influençant la traversée de l'interface liquide–liquide	231
III.2.2.4. Champs de vitesse autour d'une bulle à la traversée d'une interface	238
III.2.3. Traversée d'une interface liquide-liquide par une sphère	242
III.2.3.1. Présentation des résultats	242
III.2.3.2. Paramètres influençant la traversée de l'interface liquide–liquide	243
III.2.3.3. Champs de vitesse autour d'une sphère lors de la traversée d'une interface	248
III.2.4. Généralisation des résultats pour la traversée d'interfaces	250
III.2.5 Conclusions	253
III.3. Déformation d'interfaces - Etude de l'effet Weissenberg	255
III.3.1. Synthèse bibliographique	255
III.3.1.1. Déformation et déplacement d'interfaces	255
III.3.1.2. L'effet Weissenberg et ses variantes.....	257
III.3.1.3. Anisotropie des contraintes.....	259
III.3.1.4. Instabilités de type Taylor-Couette.....	260
III.3.2 Mise en œuvre à l'échelle macroscopique.....	262
III.3.2.1. Etude de l'effet Weissenberg	262
III.3.2.2. Effet Weissenberg amplifié	265
III.3.2.3. Instabilités d'écoulement de « Taylor-Couette »	272
III.3.3. Mise en œuvre de l'effet Weissenberg à l'échelle microscopique	273
III.3.3.1. Cas des fluides non-newtoniens.....	274
III.3.3.2. Cas des fluides newtoniens.....	285
III.3.4. Conclusion.....	295

CHAPITRE IV : Interfaces Solide-Liquide..... 300

IV Ecoulement autour de sphères rigides en sédimentation dans des solutions polymériques 301

IV.1 Synthèse bibliographique	302
IV.1.1 Coefficient de traînée d'une sphère en sédimentation	303
IV.1.2. Champs de vitesses autour d'une sphère et sillage négatif.....	304
IV.2. Sédimentation de sphères dans les milieux non newtoniens	307
IV.2.1 Coefficient de traînée d'une sphère en sédimentation.....	308
IV.2.2 Champ de vitesses autour d'une sphère isolée	309
IV.2.3. Caractéristiques du sillage d'une sphère dans le PAAm	313
IV.3. Etude du « dumping » du fluide dans les milieux non newtoniens	317
IV.4 Analogie avec le système « masse-ressort-amortisseur ».....	321
IV.5. Conclusion	324

CHAPITRE V : Conclusions Et Perspectives..... 332

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES..... 339

ANNEXES..... 355

A1- Formation de bulles sous un champ de cisaillement 356

A2- Formation de gouttes sous un champ de cisaillement 359

A3- Déformation de gouttes..... 360

A4- Traversée d'interfaces 364

A5- Etude de l'effet Weissenberg..... 371

Nomenclature

Symboles latins

d, D	distance, diamètre, [m]
d_0	diamètre d'orifice, [m]
d_2, d_1	dimension caractéristique de la cellule de type « Weissenberg », [m]
D_a	coefficient d'amortissement, [N s m ⁻¹]
d_b, d_g	diamètre de bulle ou de goutte équivalent en volume, [m]
d_{bb}, d_{bg}	diamètre de base, où d'attachement de bulle ou de goutte, [m]
d_c	longueur de col avant rupture, [m]
D_i	coefficient de diffusion des colloïdes, [m ² s ⁻¹]
d_I	longueur du sillage primaire, [m]
d_{II}	longueur du sillage secondaire, [m]
d_ϕ	coefficient de loi puissance, [m s ^{-1/3}]
f	fréquence, [Hz]
$\mathbf{F}, F$	force, module d'une force, [N]
$\mathbf{g}, g$	accélération de la pesanteur terrestre, [m s ⁻²]
G'	module élastique, [Pa]
G''	module visqueux, [Pa]
h_{max}	longueur d'étirement de l'interface, [m]
k	$= 1,380 \times 10^{-23}$, constante de Boltzmann, [m ² kg s ⁻² K ⁻¹]
K	indice de consistance d'un fluide, [Pa s ⁿ]
K_r	constante de raideur du ressort, [N/m]
L	longueur, [m]
l_c	$= \sqrt{\sigma/\rho_L g}$, échelle capillaire, [m]
L_{SN}	longueur du sillage négatif, [m]
M_W	masse molaire, [g mol ⁻¹]
m	masse, [kg]
$\dot{m}$	$= \dot{M}/A$ densité de flux massique, [kg m ⁻² s ⁻¹]
$\dot{M}$	flux ou débit massique, [kg s ⁻¹]
n	indice d'écoulement
N	vitesse de rotation du moteur, [tour secondes ⁻¹]
N_1, N_2	contraintes normales, [Pa]
p	pression, contrainte, [Pa]
$\mathbf{P}, P$	force de "portance", [N]
Q	débit volumique, [m ³ s ⁻¹]
Q_n	longueur initiale du ressort au repos, [m]
r, R	rayon, [m]
S, s	Section, [m ²]
t	temps, [s]
$\mathbf{T}, T$	force de traînée sur une particule, [N]
Ta	$= 41$, nombre de Taylor critique, [-]
t_c	temps caractéristique, [s]
t_f	temps final de l'expérience, [s]
t_{flow}	temps caractéristique de l'écoulement, [s]

t_p	temps de passage d'une particule sur une interface, [s]
$\mathbf{u}, u$	vitesse, [m s ⁻¹]
U_b	Vitesse ascensionnelle de la bulle, [m s ⁻¹]
U_s	Vitesse de sédimentation d'une particule, [m s ⁻¹]
u_t	vitesse terminale ascensionnelle d'une bulle unique, [m s ⁻¹]
V	volume, [m ³]
V_{g0}	volume de goutte à l'équilibre statique, [m]
$\dot{V}$	flux volumique où débit, [m ³ s ⁻¹]
W	largeur des microcanaux, [m]
w_b	vitesse ascensionnelle des bulles en train vertical, [m s ⁻¹]
x, y	abscisse le long de l'écoulement, [m]

Symboles grecs

α_c	angle du cône de la cellule de Couette, (rd)
β_d	angle de déflexion de l'axe des bulles sur la verticale, (rd)
ΔP	= $P_1 - P_2$, [Pa]
$\Delta \rho$	= $\rho_D - \rho_C$, [kg m ⁻³]
ε	erreur relative moyenne, [-]
ϕ	fonction d'écart, [-]
γ	déformation, [-]
$\dot{\gamma}$	vitesse de cisaillement, [s ⁻¹]
λ	temps de relaxation d'un fluide viscoélastique linéaire, [s]
λ_c, λ_t	temps caractéristique des modèles rhéologiques, [s]
μ	viscosité dynamique, [Pa s]
μ_∞	viscosité à cisaillement infini, [Pa s]
μ_0	viscosité à cisaillement nul, [Pa s]
ν	viscosité cinématique (diffusivité de quantité de mouvement), [m ² s ⁻¹]
θ	angle, (rd)
θ_c	angle de contact du liquide sur un support, (rd)
θ_d	angle de déflexion de l'axe des bulles sur la verticale, (rd)
θ_m	angle de mouillage, (rd)
ρ	masse volumique, [kg m ⁻³]
σ	tension superficielle ou interfaciale, [N m ⁻¹]
σ_p	écart type du déplacement aléatoire d'une particule, [m]
τ	contrainte tangentielle, [Pa]
ω	pulsation, fréquence, vitesse angulaire, [s ⁻¹]

Exposants

d	interactions de dispersion
m, n	exposant dans diverse relation
p	interactions polaires
$+$	grandeur réduite
0	régime stokesien
∞	régime inertiel
α, β	exposant dans diverse relation
a, b, c	exposant dans diverse relation

Indices

0	fondé sur le diamètre de buse.
0	orifice
$1, 2$	numéro de la phase
A	d'Archimède
al	à l'alimentation
b	bulle
B	de Basset
c	coalescence
C	phase continue
$calc$	valeur de corrélation
$corr$	valeur de corrélation
D	phase dispersée
e	à l'équilibre des forces
eq	équilibre
exp	valeur expérimentale
ext	externe
f	frottement
f, a	phase aqueuse
g	gaz
G	lié à la gravité terrestre
h	phase huileuse
I	inertiel
i	interaction
int	interne
j	jet
L, l	liquide
m	micro-mélangeur
max	maximum
n	relatif au fluide d'Ostwald d'indice n .
p	de pression
p	particule
ref	référence
S	solide
Y	selon Young
σ	Interfacial

Grandeurs adimensionnelles

Ar	$= \rho_c g \Delta \rho d^3 / \mu_c^2$, nombre d'Archimède
Ar_{D0}	$= \rho_D g \Delta \rho d_0^3 / \mu_D^2$, nombre d'Archimède d'orifice
Bo	$= g d^2 \rho_c / \sigma$, nombre de Bond.
Ca	$= \mu_c u d / \sigma$, nombre de capillarité.
C_E	coefficient d'entraînement ou de masse virtuelle
C_f	coefficient de forme du coefficient de portance
C_b, C_t	coefficient de l'expression du coefficient de traînée.
C_P	$= 2P / (\pi d_c^2 / 4) \rho_c u_{CD}^2$, coefficient de portance d'une particule isolée
C_T	$= 2T / (\pi d_D^2 / 4) \rho_c u_{CD}^2$, coefficient de traînée d'une particule isolée
$C_{\dot{V}}$	coefficient de débit
De	$= \lambda / t_{\text{flow}}$, nombre de Déborah
$Eö$	$= g d^2 \Delta \rho / \sigma$, nombre d'Eötvös
F_{HB}	$= g \Delta \rho V_{g0} / \pi \sigma d_0$, nombre de Harkins-Brown
Fr	$= u^2 / g d$, nombre de Froude
Ga	$= \rho_c^2 g d^3 / \mu_c^2$, nombre de Galilée
I	$= Ta_f / Ta_h$
k_a	coefficient de forme d'accélération de bulle
k_c	$= 0,5 + d_c / d_b$, coefficient de distance de rupture
k_o	$= d_{bD} / d_0$, coefficient d'orifice
k_u	coefficient de forme de vitesse de génération de bulle
k_σ	coefficient des forces interfaciales à l'orifice
k'_σ	coefficient correcteur de tension interfaciale
M_c	$= (Re De)^{1/2}$, nombre de Mach viscoélastique
Mo	$= g \mu_c^4 / \rho_c \sigma^3$, nombre de Morton
N_0	$= 1,82$, nombre de bulle et de goutte en régime quasi-statique
$N_{b,g}$	$= d / d_{\text{int}} Bo^{1/3}$, nombre de bulle et de goutte
N_u	$= u_c / u_D$, nombre de vitesse.
P	$= \rho_c^2 \sigma^3 / g \mu_c^4 \Delta \rho$, nombre de capillarité-poussée
$\mathcal{R}$	$= \rho_D / \rho_c$, rapport de masse volumique
Re	$= \rho u d / \mu$, nombre de Reynolds
Re_∞	nombre de Reynolds d'une particule isolée
Re_D	$= \rho_c u_{CD} d_D / \mu_c$, nombre de Reynolds de particule unique
Re_{D0}	$= \rho_D u_0 d_0 / \mu_D$, nombre de Reynolds d'orifice
Re_g	$= Re = \rho u^{2-n} d^n / K$, nombre de Reynolds généralisé
Re_γ	$= \dot{\gamma} d_p^2 / \nu_c$, nombre de Reynolds dans un champ de cisaillement
Ri	$= \rho_c u^2 / g d \Delta \rho$, nombre de Richardson
Ta	$= \sqrt{d_2 / d_1} Re$, nombre de Taylor
We	$= \rho u^2 d / \sigma$, nombre de Weber

$$\begin{aligned}
We^* &= (\rho_D + \rho_C) u_0^2 d_0 / 4\sigma, \text{ nombre de Weber défini par Kagan} \\
We_0 &= \rho_D u_0^2 d_0 / \sigma, \text{ nombre de Weber d'orifice} \\
X &= (Ri_0 E \ddot{o}_0^2)^{-1/3} \\
X' &= d/d_b \text{Re}_\infty^{-1/3} \\
Y &= (E \ddot{o}_0 / Ri_0)^{1/3} (V_g^+ / F'_{HB}) / 6k_o k_\sigma \\
\chi &= \dot{V}_G d_b / w_b V_b, \text{ coefficient d'espacement des bulles en train vertical} \\
\kappa &= \mu_D / \mu_C, \text{ rapport de viscosité}
\end{aligned}$$

Abréviations

μ -PIV Micro Particle Image Velocimetry
 CCD Charge-Coupled Device
 CMC Carboxy Méthyl Cellulose
 CMOS Complementary Metal Oxide Semiconductor
 HV 45 Emkarox (Poly Alkylene glycol)
 LASER Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation
 LB Lattice Boltzmann
 LDV Laser Doppler Velocimetry
 Nd Neodymium-doped
 PAAm Poly Acryl Amide AN 905 SH
 PIV Particle Image Velocimetry
 PMMA Polyméthacrylate de méthyle
 PVC Polychlorure de vinyle
 SDS Sodium Dodécyl Sulfate
 VOF Volum Of Fluid
 YAG Yttrium aluminium garnet

Chapitre I :
Introduction, Dispositifs
expérimentaux et Techniques
de mesures

I.1. Introduction Générale

Les phénomènes interfaciaux, couplés avec l'hydrodynamique, interviennent dans de nombreux procédés industriels mettant en jeu des écoulements polyphasiques. La complexité de ces écoulements est double : d'une part les interfaces peuvent se déformer, se fragmenter ou coalescer et d'autre part elles peuvent évoluer à des échelles très variées allant de quelques microns dans le cas de la microfluidique diphasique jusqu'à des échelles de quelques mètres dans le cas de vagues déferlantes (Figure I.01). Les travaux de recherche dans ce domaine sont encore rares et limités à une approche globale et systémique conduisant à des représentations sous forme de corrélations empiriques. Le principal objectif de cette thèse est de fournir de nouvelles connaissances pour la modélisation des procédés grâce à la compréhension physique des phénomènes locaux.

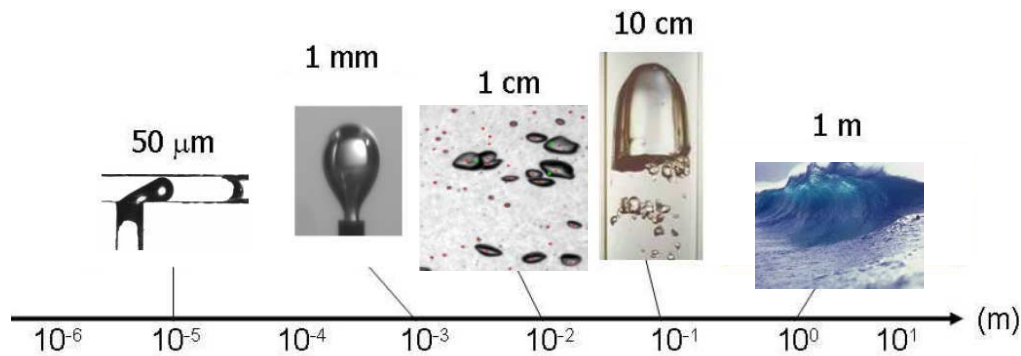


Figure I.01. *Écoulements polyphasiques à plusieurs échelles*

Les écoulements polyphasiques (gaz–liquide–solide) en milieu newtonien et non-newtonien interviennent dans de nombreux secteurs industriels pour favoriser les échanges de chaleur et de matières, parmi lesquels nous pouvons citer le dégazage des graisses, le crackage du pétrole, le traitement de l'eau, la dévolatilisation de polymères et de lubrifiants, les bio-procédés, les cosmétiques, la fermentation aérobie, l'élaboration de nouveaux matériaux, l'agroalimentaires, la pétrochimie, etc. Ces procédés sont généralement le siège de transferts de chaleur et de matière, le plus souvent accompagnés de réactions chimiques. Dans ce contexte, l'efficacité de ces transferts et transformations constitue un enjeu primordial qui dépend en premier lieu de la nature des interfaces gaz–liquide ou solide–liquide entre les phases présentes dans ces systèmes.

Dans ces systèmes polyphasiques, la phase dispersée peut être constituée de bulles ou de particules rigides, tandis que les phases continues sont liquides et peuvent être newtoniennes

comme l'eau par exemple ou non newtoniennes comme les fluides alimentaires ou pétroliers. Cependant, le comportement de ces inclusions dans ces fluides est souvent complexe et dépend de plusieurs paramètres dont la rhéologie du milieu et les interactions éventuelles avec d'autres particules. Ces interactions hydrodynamiques entre les particules sont souhaitables pour certains procédés et non pour d'autres. Dans le cas des bulles, elles peuvent conduire à des coalescences ou des fragmentations de bulles entraînant ainsi une diminution ou une augmentation de l'aire interfaciale.

Les problèmes liés à la simulation numérique de ces écoulements polyphasiques à inclusions sont loin d'être résolus et le recours à l'expérience s'avère donc nécessaire pour caractériser ces écoulements. Les techniques de mesures telles que la « *Particle Image Velocimetry* » (PIV, en français : Vélocimétrie d'image particulaire) permettent une détermination précise de l'écoulement d'un fluide dans une section bidimensionnelle. Elles nous permettent de mesurer au sein de ces écoulements des champs de vitesse qui représentent un paramètre clé pour l'étude de l'hydrodynamique au sein de ces écoulements. L'objectif fixé pour cette étude est de mieux appréhender les phénomènes physiques liés aux écoulements de particules dans des systèmes biphasiques et triphasiques comportant des fluides newtoniens ou non newtoniens, en utilisant des techniques de mesures de pointe, en particulier, la Vélocimétrie par Images de Particules (PIV) et la visualisation par caméra rapide. L'exploitation de l'ensemble des résultats expérimentaux permettra par ailleurs de réaliser, dans le cadre de travaux effectués au laboratoire, des simulations numériques basées sur la physique statistique – Lattice Boltzmann (LB), approche novatrice qui est largement avancée dans notre groupe et qui permet notamment d'intégrer les phénomènes physiques à différentes échelles.

Les différentes techniques de mesures expérimentales utilisées dans cette étude seront exposées dans ce qui suit. On portera une attention particulière aux deux techniques de mesure disponibles au L.S.G.C. et permettant de caractériser les différents écoulements, à savoir, la technique de visualisation avec un système vidéo numérique rapide et la vélocimétrie par images de particules. La caméra rapide a permis de visualiser des phénomènes très rapides que l'on ne peut voir à l'oeil nu, nous permettant ainsi de mieux les décrire et les comprendre. La technique PIV nous a notamment permis d'accéder aux champs de vitesses et de vorticités des divers écoulements obtenus dans les différents cas étudiés dans ce travail.

I.2. Dispositifs expérimentaux

Nous disposons de plusieurs montages pour l'étude des écoulements polyphasiques à différentes échelles, ceux ci seront tous exposés dans cette partie.

I.2.1. Colonne pour les bulles/gouttes/sphères et les interfaces

Nous disposons de trois colonnes en PMMA (polyméthacrylate de méthyle – Altuglas) de taille différente et construites par l'atelier de mécanique du L.S.G.C. Chacune de ces colonnes est munie d'une buse interchangeable et centrée en son fond. Les colonnes sont de section carrée et ont les dimensions suivantes :

- Grande colonne : 18 cm de côté et 100 cm de hauteur
- Colonne moyenne : 12 cm de côté et 70 cm de hauteur
- Petite colonne : 6 cm de côté et 50 cm de hauteur

Deux montages différents ont été utilisés afin de modifier le type d'injection du gaz, l'un permettant une injection continue et le second une injection discontinue. Lorsque l'électrovanne est reliée à l'ordinateur pour permettre de régler son temps d'ouverture et la période d'injection des bulles, il s'agit d'un montage à débit discontinu. On peut également utiliser, au lieu de l'électrovanne, un débitmètre relié directement à la bouteille de gaz pour obtenir un train de bulles, il s'agit dans ce cas d'un débit continu. Ces deux types de montage seront réalisés pour des études différentes selon que l'on cherche à étudier la dynamique d'une bulle isolée ou bien celle d'un train. Au pied de la colonne, un réservoir tampon (volume 1L) est monté afin de garantir une pression constante au niveau de l'orifice. Enfin, deux types d'orifices sont utilisés pour ces expériences, la buse plate de 10 mm de diamètre avec un orifice au centre de taille variable (0.5-5 mm) et la buse capillaire de taille variable (0,5-5 mm) avec une bordure de 200 μm (Figure I.02).



Figure I.02. Différentes formes de buses utilisées : plate et capillaire

Différents matériaux sont utilisés pour les buses : P.V.C. (Polychlorure de vinyle) et laiton.

I.2.2. Cellule de « Weissenberg »

Pour l'étude de la déformation et la perturbation d'interfaces de type « Weissenberg » (Karl Weissenberg, 1893-1976), nous disposons de colonnes en PMMA de faible hauteur pour diminuer les quantités de liquides utilisés et pour pouvoir y plonger un axe de rotation. Un moteur d'agitation est utilisé (IKA Eurostar, USA) pour imposer un écoulement circulaire. La colonne est de section carrée et mesure 12 cm de côté et 20 cm de hauteur. Pour l'étude horizontale, des conduites en PMMA de section carrée de 4 mm et de 10 cm de longueur ont été utilisées.

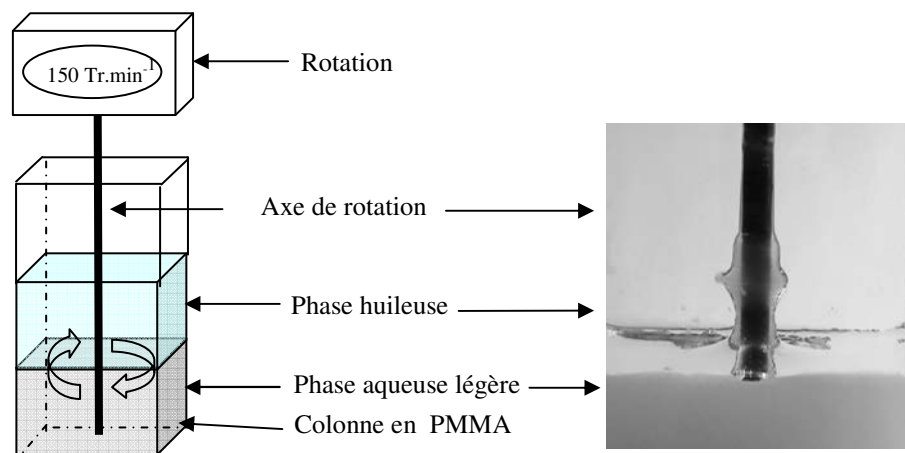


Figure I.03. : Cellule de « Weissenberg »

I.2.3. Cellule de cisaillement orthogonale



Figure I.04. Cellule de cisaillement orthogonale

Nous disposons d'une colonne à bulles/gouttes construite par l'atelier de mécanique du L.S.G.C. (Figure I.04.), de forme cylindrique en PMMA avec une hauteur de 20 cm et un diamètre de 19 cm. La colonne est entourée d'une cuve carrée, également en PMMA, pour éviter toute déformation optique lors de la visualisation. L'alimentation en huile ou en air

selon qu'il s'agisse de la formation de bulles ou de gouttes se fait à partir d'un réservoir sous pression (1 à 2 bars). L'injection d'air ou d'huile s'effectue à travers une buse en PVC ou en laiton interchangeable placée au fond de la colonne. Le champs de cisaillement est crée par un disque rotatif en inox ayant un diamètre de 15 cm placé à une hauteur de 10 cm de l'orifice d'injection et l'injecteur est placé à une distance de 7 cm du centre de la colonne.

I.2.4. Cellule de nucléation microscopique

L'objet de ce montage est de visualiser la nucléation de bulles et leur croissance dans différents milieux (newtoniens et complexes). La chambre de visualisation est un parallélépipède rectangle de faible profondeur (1 mm), de 4 cm de largeur et 7 cm de longueur. Les parois en PMMA des deux faces principales permettent la visualisation. Une vanne « quart de tour » permet de réaliser une détente rapide du gaz mis en pression dans la chambre. Les caractéristiques des matériaux de construction de la chambre permettent de travailler avec une différence de pression maximale d'environ 2 bars.



Figure I.05. *Cellule de visualisation de la nucléation*

La diffusion du gaz (CO₂ dans notre étude) étant très faible (le coefficient de diffusion dans l'eau étant de l'ordre de $2 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$), il est nécessaire de créer un mouvement de convection au sein du fluide pour accélérer la sursaturation de celui-ci par le gaz. Typiquement le temps de sursaturation est de 30 min. Les résultats obtenus sont reproductibles

I.2.5. Cellule de cisaillement de type « Couette »

En mécanique des fluides, un écoulement de Couette désigne l'écoulement d'un fluide visqueux entre deux surfaces dont l'une est en mouvement par rapport à l'autre. L'écoulement est dû à la force d'entraînement visqueuse qui agit sur le fluide. Le nom de cet écoulement se réfère au physicien français du XIX^{ème} siècle Maurice Couette.

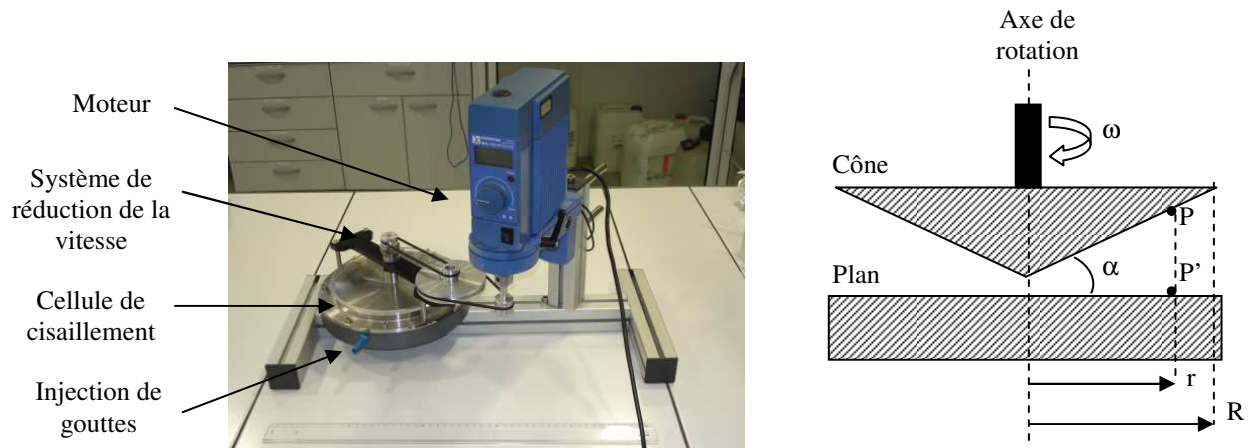


Figure I.06. Montage expérimental de la cellule de cisaillement de type « Couette »

La cellule étudiée ici est constituée d'un disque conique dont l'angle α_c est de 1° en PMMA et d'un disque plan fixe en acier placé perpendiculairement à l'axe du cône, ces deux disques ayant 10 cm de diamètre. L'entrefer est variable, il est fixé à 4 mm dans cette étude. Le cône est mis en rotation sous l'action d'une vitesse angulaire constante. Les gouttes sont injectées par un septum au centre de l'entrefer des deux disques. Le champ de cisaillement est créé par le mouvement du disque supérieur induit par un moteur et un système de réduction de la vitesse de rotation est utilisé. En un point P de la surface du cône situé à la distance r de l'axe de rotation, la vitesse est $r\omega$. En P', projection de P sur le plan fixe, cette vitesse est nulle. Si α_c est faible (moins de 5°), l'épaisseur PP' étant $r\alpha_c$, le gradient de vitesse peut s'écrire :

$$\dot{\gamma} = \frac{\omega}{\alpha_c} = \text{Cste} \quad (I.01)$$

C'est la caractéristique principale de ce type de cellule, le cisaillement est constant dans la cellule à vitesse donnée. L'utilisation d'une réduction de vitesse du moteur peut ainsi nous permettre d'atteindre facilement et de manière contrôlée de faibles contraintes de cisaillement.

I.2.6. Micro-mélangeurs

Plusieurs micro-mélangeurs ont été utilisés dans cette étude. Ils peuvent être séparés selon leur utilisation en deux catégories. La première utilisation, l'analyse qualitative, permet de vérifier, en écoulement monophasique et diphasique, la validité de la méthode des appareils de mesure. Une fois cette validité effectuée, elle peut être mise en application sur les micro-mélangeurs de la seconde catégorie pour une analyse quantitative. Afin d'obtenir des champs de vitesse permettant de comprendre les mécanismes de formation de microbulles, il est important que tous les micro-mélangeurs soient transparents.

- **Analyse qualitative** : Le micro-mélangeur utilisé pour notre étude est un micro mélangeur fabriqué en PMMA par Dantec Dynamics, composé d'une section en Y et de 5 rétrécissements (Figure I.07). Les canaux ont une section circulaire de 800 μm au niveau du Y et de 600 μm au niveau des canaux.

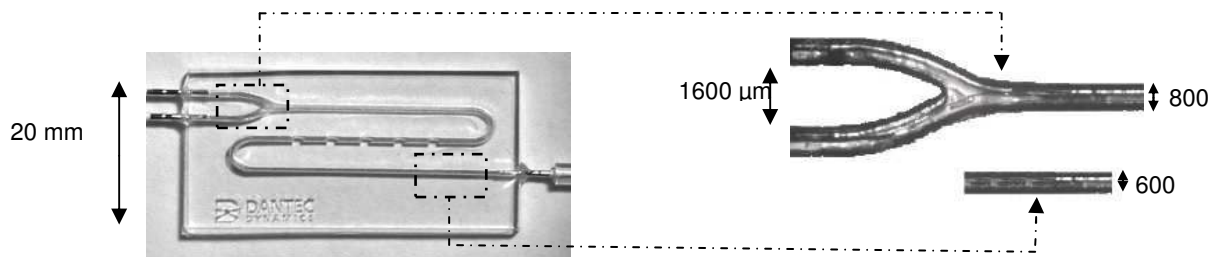


Figure I.07. Micro-mélangeur de « type-Y »

- **Analyse quantitative** : Afin d'entreprendre une étude quantitative, différents mélangeurs de type « *flow focusing* » et en PMMA ont été fabriqués par l'atelier de mécanique du L.S.G.C.. Ils comportent trois sections d'entrée et une de sortie comme le montre la figure I.08 :
 - **Section d'entrée du gaz** : Canal central de section circulaire et d'un diamètre de 200 μm , 350 μm ou 500 μm .
 - **Section d'entrée du liquide** : Canaux latéraux de section carrée, permettant une meilleure visualisation de l'écoulement, de largeur et profondeur de 500 et 1000 μm respectivement.

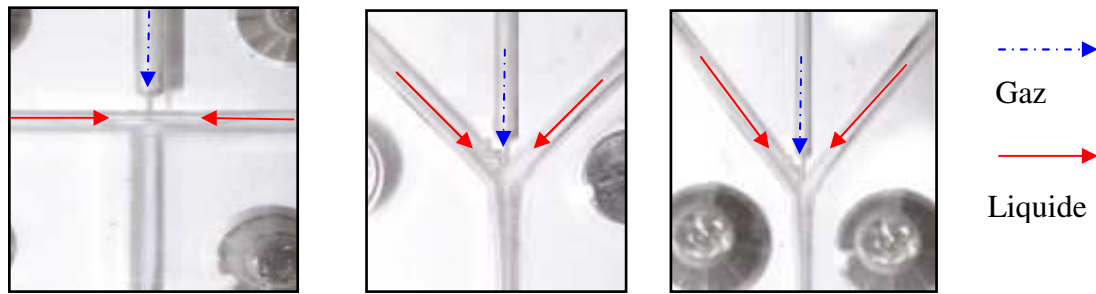


Figure I.08. Micro mélangeur de type « flow-focusing »

De plus, trois configurations de micro-mélangeurs de différentes géométries ont été utilisées avec des angles entre les deux arrivées de liquide de 60° , 90° et 180° . Enfin, en fermant l'arrivée centrale, ces micro-mélangeurs peuvent aussi être étudiés en configuration « type T » et « type Y » ce qui permet de plus travailler avec une arrivée de liquide et une arrivée de gaz dans des canaux de même géométrie.

I.3. Techniques de mesures

Les différentes techniques de mesures expérimentales utilisées dans cette étude seront exposées dans ce qui suit. On portera une attention particulière aux deux techniques de mesure disponibles au L.S.G.C. et permettant de caractériser les différents écoulements, à savoir, la technique de visualisation avec un système vidéo numérique rapide et la vélocimétrie par images de particules

I.3.1. Visualisation par caméra rapide

La visualisation des différents phénomènes rencontrés lors de cette étude a été réalisée à l'aide de deux systèmes vidéo rapides :

- Vidéo Numérique Rapide VNR 950 de SYSMA INDUSTRIE) qui comprend un ordinateur de contrôle muni d'un logiciel d'acquisition pour commander les prises de vue et stocker les films et une caméra numérique rapide de type CCD (*Charge-Coupled Device*, ou détecteurs à couplage de charge) avec une résolution de 256×256 pixels. Ce système vidéo permet d'enregistrer jusqu'à 950 images par seconde à 255 pixels en niveau de gris, sur 8 bits. Chaque prise de film est limitée à 3283 images en raison de la mémoire de la carte.

- Caméra rapide numérique Optronis CamRecord 600. Le système se compose de la caméra et d'un logiciel d'acquisition. Le logiciel permet de capturer, de stocker et de lire des séquences. La caméra a une résolution haute de 1280 x 1024 pixels à une fréquence d'enregistrement qui peut atteindre 500 images par seconde en pleine résolution et jusqu'à 100 000 images par secondes à résolution réduite. Le capteur CMOS (*Complementary Metal-Oxide Semiconductor*) permet des enregistrements de faible niveau de bruit de fond ainsi qu'une très bonne qualité d'image. Les caméras CMOS fonctionnent à des tensions plus faibles que les caméras CCD, réduisant ainsi la consommation d'énergie pour les applications portables.

De plus, une gamme d'objectifs et un zoom peuvent être placés sur la caméra selon l'échelle du phénomène. D'autre part, compte tenu de la vitesse de prise de vue, l'éclairage doit être assez important, c'est pourquoi on utilise un projecteur halogène de 800 W muni d'un variateur de puissance nous permettant de réajuster l'éclairage selon la fréquence de prise de vue.

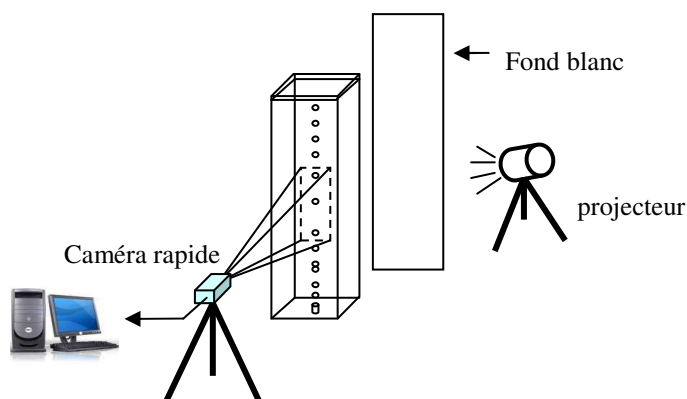


Figure I.09. Système de visualisation numérique rapide

Par ailleurs, sachant que le contraste entre l'inclusion et le reste du fluide doit être conséquent, nous avons été amenés à filmer les inclusions (bulles ou sphères rigides) en présence de lumière indirecte, de sorte que le contour de l'inclusion plus sombre que le milieu soit plus net. On éclaire ainsi avec le projecteur une plaque blanche située derrière la colonne et qui réfléchit la lumière vers la colonne et la caméra (figure I.09.). Les images prises sont ensuite traitées à l'aide d'un logiciel d'analyse d'image. Pour les expériences utilisant la cellule de couette, la caméra n'est plus disposée horizontalement mais verticalement, et le fond blanc, placé latéralement à la cellule, est alors utilisé pour réfléchir la lumière sur la zone d'étude.

I.3.2. Vélocimétrie par Images de Particules (PIV)

La vélocimétrie par images de particules (PIV) est une technique optique non intrusive permettant d'évaluer un champ instantané de vitesses en fonction du temps dans un plan de l'écoulement étudié. Cette aptitude à accéder à la répartition spatiale du vecteur vitesse en fait une technique de vélocimétrie complémentaire aux techniques déjà existantes telle que la LDV (Vélocimétrie Laser à effet Doppler) par exemple. Elle a fait son apparition dans le monde scientifique depuis une quinzaine d'années, notamment en mécanique des fluides et en génie des procédés pour des études d'écoulements de gaz, de liquide et gaz/liquide.

I.3.2.1. Le montage expérimental du système PIV

Voici ci-dessus le descriptif du montage utilisé pour l'analyse par PIV, il est composé par :

- Les deux lasers : ils sont de type Nd-Yag pulsés (solo 1 15 Hz, New Wave Research). Leur puissance est de 15 mJ. Chaque faisceau laser est transformé en une nappe laser fine grâce à une lentille sphérique.
- Deux caméras (Flowgrabber Doubleimage 700, Dantec MT) d'une résolution de 768×484. Elles permettent l'enregistrement de 30 paires d'images par seconde en niveau de gris, sur 8 bits.
- Le processeur d'images et de synchronisation, ainsi que le logiciel de traitement d'images : le processeur (Flowmap 1500, Dantec MT) permet de synchroniser la prise d'image sur le flash laser (intensité lumineuse maximale), la durée de ce flash, ainsi que le temps séparant deux prises d'images consécutives. Le logiciel de traitement d'images (Flow Manager version 4.6) permet le calcul des champs de vitesses et autres grandeurs associées.
- Le traceur (particules argentées ou fluorescentes)

Voici, sur la figure I.11 le schéma du montage de PIV :

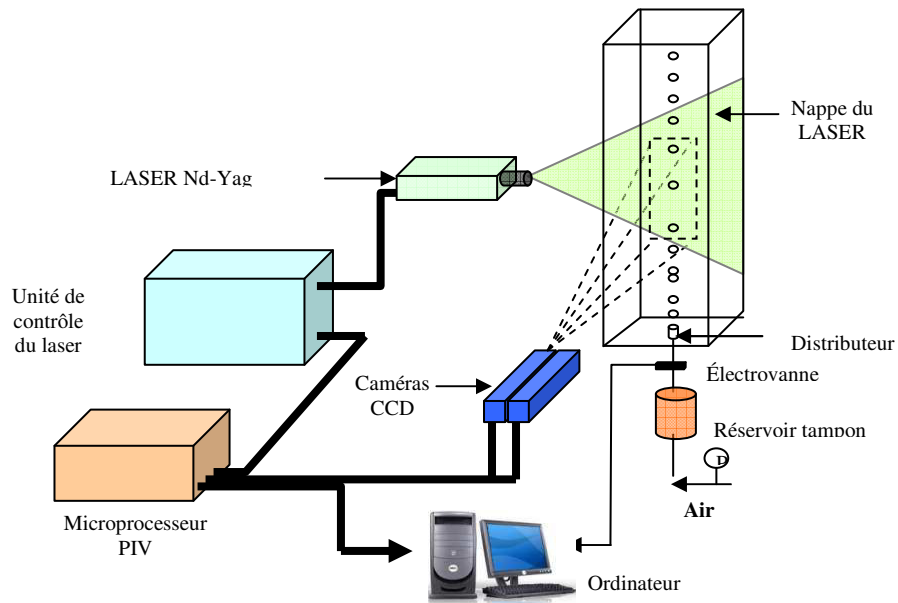


Figure I.11 : Montage de la Vélocimétrie par Image de particules

- *Ensemencement des particules traçantes :*

Les particules traçantes ne doivent pas perturber l'écoulement. Il ne faut donc pas en ajouter en trop grande quantité. De plus, lors de l'analyse d'image et de la détermination du champ de vitesse, il faut un nombre raisonnable de particules traçantes par aire d'intégration pour obtenir un champ de vitesse acceptable. Ce nombre doit être proche de 4 ou 5. Il existe deux types de traceurs fréquemment utilisés :

- Les particules sphériques de verre creuses ($15\mu\text{m}$).
- Un traceur fluorescent dérivé de la rhodamine qui réfléchit la lumière à une longueur d'onde différente de celle d'excitation (longueur d'onde du laser 532nm). Dans ce cas, l'utilisation d'un filtre permettra de visualiser seulement le rayonnement émis par ces particules.

- Logiciel :

Le logiciel FlowManager 4.6 donne la possibilité de régler certains paramètres :

- o La taille des aires d'interrogation (de 16×16 à 128×128 pixels), une aire d'interrogation plus petite demande plus de temps de calcul mais la résolution du champ de vitesse est meilleure.
- o Le choix du recouvrement (*overlap*) qui peut être de 0 ; 25 ; 50 ou 75%). Lorsqu'il est de 50% par exemple, la zone de recherche des particules traçantes est élargie de 50 % sur les aires voisines. Ceci introduit une interdépendance des aires d'interrogation et permet de suivre des particules qui, initialement, sortaient du champ d'étude.
- o Le temps entre deux images successives de la caméra. Ce temps doit être tel que les particules traçantes n'aient pas bougé de plus de 25% de la taille des domaines d'interrogation.
- o Le temps entre deux enregistrements (deux pulses) du LASER. Le temps entre deux pulses est quant à lui fixé selon la vitesse du phénomène étudié.

- *Réglages du LASER* (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation) :

Les deux lasers sont de type Nd-Yag (*Yttrium Aluminium Garnet*) pulsés (solo 1 15 Hz, New Wave Research). Leur puissance est de 15 mJ. Chaque faisceau laser est transformé en une nappe laser fine grâce à une lentille sphérique. Il faut vérifier à chaque utilisation le niveau de refroidissement. Le niveau doit être à 80% du volume de contenance (800mL). On doit veiller à ce que la nappe du laser soit fine en ajustant les lentilles sphériques. Cette nappe doit passer dans le plan d'ascension des bulles et être dans le même plan que le champ de vision de la caméra pour que celle-ci puisse filmer le traceur.

I.3.2.2 Principe de la technique PIV

Le principe général de ce qui est appelé couramment PIV (*Particle Image Velocimetry* ou en français Vélocimétrie par image de particules VIP) consiste à enregistrer des images de particules éclairées par un plan laser à des instants successifs. Le déplacement local de chacune des particules dans le fluide donne accès à un vecteur instantané de vitesse.

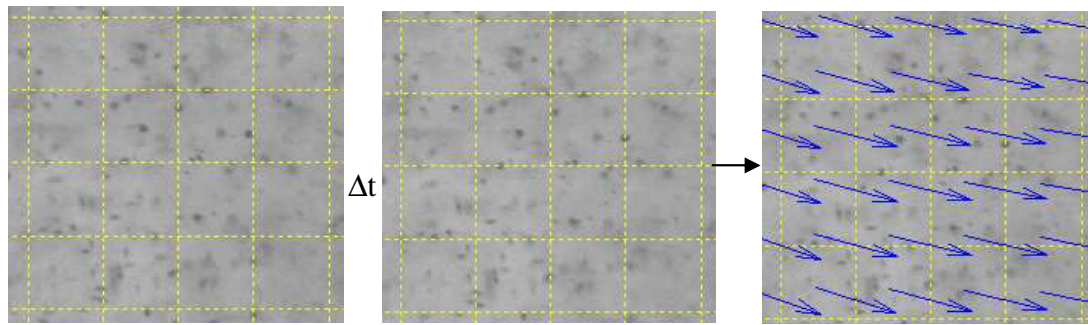


Figure I.10. Principe de la vélocimétrie par image particulaire (PIV)

En considérant le déplacement de plusieurs particules, on accède alors au champ instantané des vitesses (Figure I.10). Le principe de base de la PIV est donc simple : la vitesse instantanée d'un fluide est mesurée par la détermination des déplacements de traceurs illuminés par une nappe laser. La Vélocimétrie par Image de Particules (PIV) est un outil puissant qui permet de cartographier l'écoulement dans les microstructures et valider les simulations. La condition essentielle est, qu'entre les instants de prise de vue, la particule doit rester dans l'épaisseur du plan d'éclairage. Généralement, la source laser utilisée est un laser impulsionnel délivrant deux impulsions espacées d'un intervalle de temps Δt (réglable en fonction des vitesses à mesurer), ayant chacune une énergie de plusieurs centaines de milli joules. Les images sont enregistrées par un appareil photographique ou par une caméra vidéo. Selon la densité des particules dans l'écoulement et selon le type d'enregistrement, le traitement des images est différent. Néanmoins, dans tous les cas, le résultat obtenu est une cartographie instantanée du champ de la projection du vecteur vitesse dans le plan d'éclairage.

I.3.3. Micro-Vélocimétrie par Images de Particules (μ -PIV)

I.3.3.1. Principe de la technique μ -PIV

La technique de PIV appliquée à la micro-fluidique est souvent appelée micro-PIV (μ -PIV). Le principe reste le même mais un objectif microscopique est ajouté sur une caméra CCD. L'éclairement peut se faire de deux façons différentes :

- o A l'aide de nappes laser lumineuses très minces permettant d'illuminer les particules et de suivre leur écoulement. On parle alors de méthode par « diffusion ».
- o Par un micro stroboscope de longueur d'onde 532 nm qui illumine l'écoulement, les particules traçantes visualisées sont sombres dans ce cas. On parle alors d'ombroscopie.

C'est cette seconde méthode que nous avons utilisée dans cette étude.

I.3.3.2. Le montage expérimental du système μ -PIV

On utilisera pour la visualisation microscopique, un système de μ -PIV composé d'un microscope Leica inversé muni d'objectifs de grossissements de 100 $\times$, 400 $\times$ et 630 $\times$, d'un micro-stroboscope de longueur d'onde émise de 530 nm permettant d'éclairer le micro mélangeur, d'une caméra d'une résolution de 2048 $\times$ 2048 Flowsense Dantec de 15 Hz qui permet une acquisition pouvant aller jusqu'à 7 paires d'images par seconde sur 8 niveau de gris.

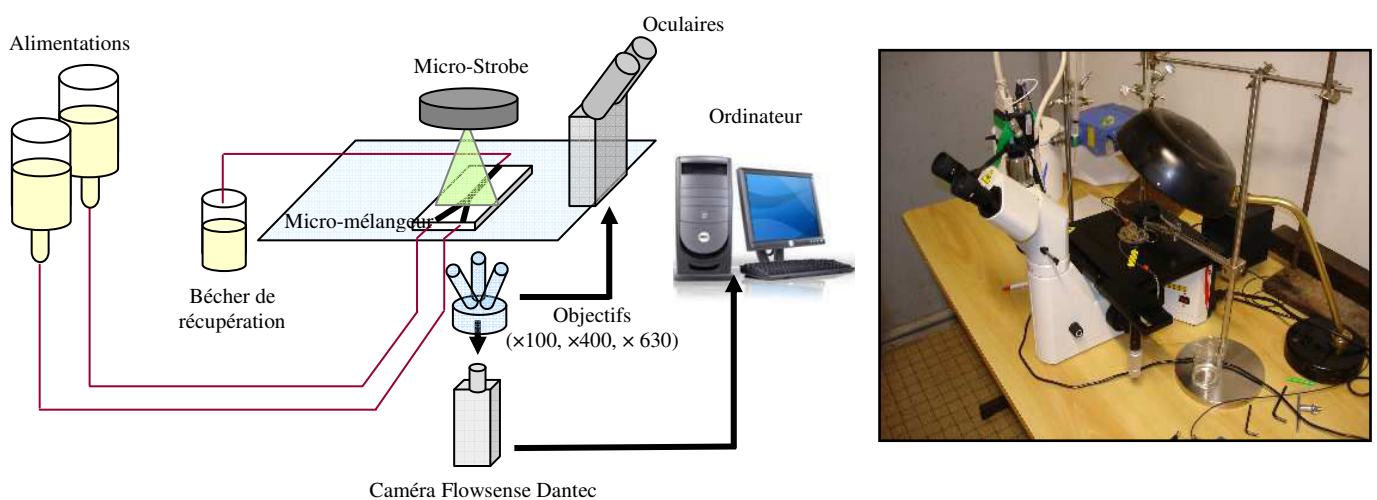


Figure I.12 : Système μ -PIV

Le processeur permet de synchroniser la prise d'images avec le flash du stroboscope, la durée de ce flash ainsi que le temps séparant deux prises d'images consécutives. Le logiciel de traitement (Flow Manager version 4.6) divise les images en milliers de petites aires d'intégration de 32×32 pixels. Une corrélation croisée est effectuée et permet le calcul des champs de vecteurs vitesses. La profondeur de champ (*i.e.* où les particules visualisées seront nettes), est comprise entre 10 et 40 µm, ainsi une mesure effectuée n'est pas faite sur un plan mais sur une tranche du micro-mélangeur. Toutefois, cette valeur est négligeable en comparaison de l'épaisseur du canal. Afin d'obtenir des champs de vecteurs vitesses précis, les particules traçantes doivent parfaitement suivre l'écoulement. L'ensemencement doit être uniforme et raisonnablement concentré pour suivre au mieux l'écoulement. Dans ce but, la masse volumique doit être voisine de celles du fluide étudié (inertie négligée). Si le traceur utilisé est constitué de particules trop petites, il peut advenir une erreur relative dû au mouvement brownien (Robert Brown, 1927). Ce mouvement aléatoire des particules établit une limite inférieure à la réalisation de la technique µ-PIV. A partir de l'équation d'Einstein-Sutherland (1905), on peut estimer l'influence de ce mouvement brownien. L'équation (I.02) établit la relation entre le coefficient de diffusion d'un colloïde D_i (rapport entre l'agitation thermique et les forces visqueuses) et les propriétés du colloïde.

$$D_i = \frac{kT}{6\pi\eta r} \quad (I.02)$$

T est la température, η la viscosité du fluide, r le rayon de la particule et k, la constante de Boltzmann. Ainsi plus le rayon de la particule est faible plus le mouvement brownien sera important. L'écart type du déplacement aléatoire d'une particule est donné par l'équation (I.03).

$$\sigma_p = \Delta x_p \approx \sqrt{2D_i \delta t} \quad (I.03)$$

Ainsi, à 4Hz et pour une particule de 200 nm de diamètre, le déplacement aléatoire est estimé à 3µm/s. La vitesse des écoulements étudiés étant de l'ordre de quelques millimètres par secondes, cela constitue une erreur non-négligeable sur la vitesse. Il faut donc privilégier des particules plus grosses pour éviter les problèmes dus au mouvement brownien. Cependant plus la particule est grosse et plus elle risque de sédimenter. La vitesse de sédimentation d'une

particule de diamètre d est atteinte lorsque la force de résistance visqueuse équilibre son poids. On obtient alors l'expression (I.04).

$$V_s = \frac{d^2 g (\rho_g - \rho_p)}{18\mu} \quad (I.04.)$$

Pour des particules traçantes de $5 \mu\text{m}$, la vitesse de sédimentation est de l'ordre de $1,5 \mu\text{m/s}$, les vitesses minimales mesurées étant de l'ordre d'une centaine de $\mu\text{m/s}$. Il faut donc contenir la contribution de ces deux phénomènes à moins de 1 % pour s'assurer de maîtriser au mieux ces deux phénomènes. La figure I.13 représente les vitesses dues à ces deux effets (brownien et sédimentation) ainsi que la somme de ces deux effets. Ainsi, la taille optimale permettant de minimiser ces deux effets est de $2 \mu\text{m}$. De plus, pour s'assurer d'avoir des résultats précis à 0,5% sur des vitesses minimales mesurées de l'ordre de $400 \mu\text{m/s}$, il faudra limiter ces vitesses à $2 \mu\text{m/s}$, ce qui permet de travailler avec des particules de tailles comprises entre $0,5$ et $5 \mu\text{m}$. C'est la taille de la géométrie du dispositif microscopique, des fenêtres de visualisation et des objectifs qui va permettre d'affiner la valeur du diamètre des particules.

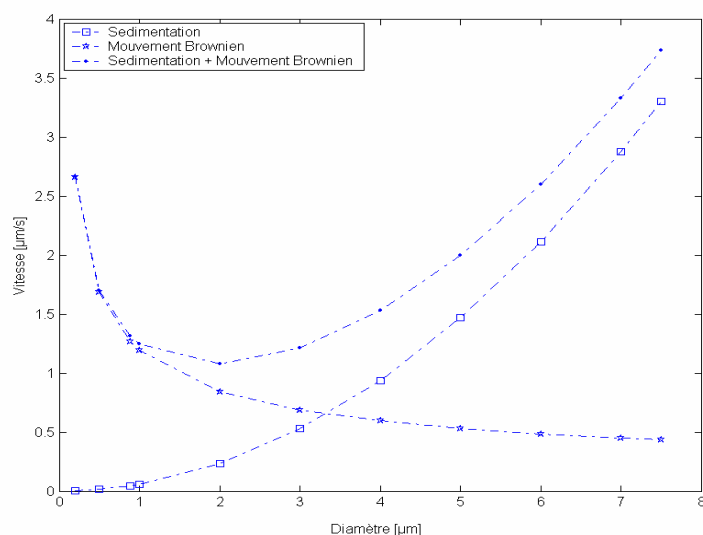


Figure I.13 : Influence de la vitesse de sédimentation et du mouvement Brownien sur l'écoulement.

En l'occurrence, pour travailler avec un grossissement de 100, dans une conduite de $800 \mu\text{m}$, notre choix s'est porté sur des particules de latex (diamètre = $0,88 \mu\text{m}$ et masse volumique = $1,056 \text{ g/l}$).

I.4. Caractérisation des fluides utilisés

Plusieurs fluides ont été utilisés dans les différentes expériences réalisées dans le cadre des études menées dans ce travail. Ces fluides présentent certains comportements rhéologiques qu'il est nécessaire de caractériser à travers quelques notions de base de rhéologie, et ce, afin de pouvoir cerner davantage les résultats des expériences réalisées. Les propriétés physiques et rhéologiques des fluides utilisés dans ce travail sont mesurées sur les appareillages suivants : un rhéomètre à contrainte imposée, AR 2000 (Advanced Rheometer, TA instruments), un rhéomètre à vitesse imposée, RFS II (Rheometrics Fluid Spectrometer, Rheometrics) et un tensiomètre à bulle Tracker (IT Concept).

I.4.1. Notions de rhéologie

I.4.1.1. Viscosité

La viscosité (du latin *viscum*) désigne la capacité d'un fluide à s'écouler. Lorsque la viscosité augmente, la capacité du fluide à s'écouler diminue. Le comportement rhéologique d'un matériau peut être abordé en considérant la déformation de celui-ci sous l'influence d'une force donnée, selon le cas présenté sur la figure I.14. Deux plans sont séparés d'une épaisseur dy , tandis qu'une force dF est exercée dans la direction x . Il en résulte une déformation suivant la surface dS . En supposant que le matériau se déforme en adhérant aux deux plans parallèles, il subit un déplacement dx le long du plan supérieur.

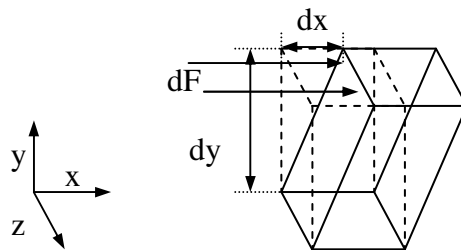


Figure I.14. Déformation d'un élément de volume sous la force dF appliquée tangentiellement à la surface dS .

On définit alors deux grandeurs :

- τ , la contrainte, avec $\tau = \frac{dF}{dS}$. (I.05)

- γ , la déformation, avec $\gamma = \frac{dx}{dy}$. (I.06)

En considérant que le matériau se déforme de dx au cours d'une sollicitation mécanique durant un intervalle de temps dt , on définit la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ (en s^{-1}), avec : $\dot{\gamma} = \frac{d\gamma}{dt}$

Le fluide exerce cependant une résistance à la déformation imposée par la force dF . Cette résistance s'exprime à travers sa viscosité η , avec : $\tau = \eta \dot{\gamma}$ (I.07)

À partir de ces expressions, on distingue différents comportements rhéologiques. Le comportement mécanique d'un fluide visqueux idéal est le comportement dit "newtonien". Les fluides newtoniens ont une viscosité indépendante du cisaillement qu'ils subissent suivant la loi de Newton $\tau = \eta \dot{\gamma}$, où η est indépendante de $\dot{\gamma}$. Cependant, de nombreux fluides ont un comportement non-idéal : où la viscosité n'est pas indépendante de la vitesse de cisaillement imposée $\dot{\gamma}$. Ce sont des fluides "non newtoniens" pour lesquels on a : $\eta = \eta(\dot{\gamma}, \gamma, t)$. Pour représenter l'évolution de la viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement, il existe des modèles empiriques qui décrivent la relation entre les contraintes, la viscosité et la vitesse de cisaillement. Les plus employés sont les modèles d'Ostwald (dit à loi de puissance), de Carreau et de Maxwell.

Modèle de loi de puissance : $\tau = \eta \dot{\gamma}$ avec $\eta = K \dot{\gamma}^{n-1}$ $\tau = K \dot{\gamma}^n$ (I.08)

où K est l'indice de consistance du fluide (en $Pa.s^n$) et n l'indice d'écoulement. Selon les valeurs de l'indice d'écoulement, on peut différencier plusieurs comportements rhéologiques :

- si $n < 1$, la viscosité décroît lorsque la vitesse de cisaillement augmente. Il s'agit alors de fluides rhéofluidifiants ou pseudo-plastiques.
- si $n = 1$, on retrouve la loi $\tau = \eta \dot{\gamma}$ propre aux fluides newtoniens.
- si $n > 1$, la viscosité augmente avec la vitesse de cisaillement. Le fluide est dilatant ou rhéoépaississant.

La viscosité des solutions rhéofluidifiantes est également bien représentée par le modèle à 4 paramètres établi par Pierre Carreau et défini comme suit :

$$\frac{\mu - \mu_{\infty}}{\mu_0 - \mu_{\infty}} = \left[1 + \left(\lambda \dot{\gamma} \right)^2 \right]^{\frac{n-1}{2}} \quad (I.09)$$

Où μ , μ_0 et μ_∞ représentent respectivement les viscosités dynamiques de la solution à vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$, à vitesse de cisaillement nulle et à vitesse de cisaillement infinie ; n étant l'indice de rhéo-fluidification du fluide et λ le temps caractéristique du fluide.

Après avoir quantifié le caractère rhéofluidifiant de nos solutions, le caractère élastique de ces solutions peut être mis en évidence par différents tests rhéologiques tels que :

- le balayage en déformation : un balayage à une fréquence d'oscillation donnée, permet de connaître l'importance relative du module de stockage G' et du module de perte G'' , ainsi que le domaine d'élasticité linéaire.
- la mesure des contraintes normales. En effet la première différence des contraintes normales N_1 n'est pas nulle. Le test rhéologique qui a été choisi dans cette étude est l'un des plus utilisés pour mesurer l'importance de l'élasticité d'un fluide.

Si les solutions sont très élastiques, elles présentent des premières différences de contraintes normales mesurables. Pour cette mesure, une géométrie cône-plan a été utilisée. La première différence des contraintes normales N_1 s'obtient alors à partir de la mesure de la force normale :

$$N_1 = \frac{2 F}{\pi R^2} \quad (I.10)$$

où R est le rayon du plateau cône-plan [m] et F la force normale [N]. Dans ce travail, nous avons utilisé, selon le type d'expérience, des fluides newtoniens (l'eau et des solutions de Emkarox dans l'eau pure) ainsi que des fluides non newtoniens au comportement viscoélastique et rhéofluidifiant (solutions polymériques de PolyacrylAmide dans l'eau pure), ayant un comportement intermédiaire entre les fluides newtoniens et les solides élastiques. Cette élasticité peut se représenter par l'aptitude du fluide à reprendre sa forme initiale après avoir subi une déformation et se traduit donc par une relaxation de la contrainte dans le temps. Par ailleurs, si on impose au fluide une contrainte sous laquelle il se déforme, le fluide reviendra progressivement à sa conformation initiale lorsque la contrainte cessera d'être exercée.

I.4.1.2. Mesure de la viscosité

Les mesures rhéologiques ont été effectuées sur deux rhéomètres : un rhéomètre à vitesse imposée (RFS II Rheometric Fluid Spectrometer, Rheometrics) et un rhéomètre à contrainte imposée (AR 2000 Advanced Rheometer, TA Instruments). Une géométrie cône-plan a été utilisée pour ces mesures. Ces mesures ont été réalisées à une température de 20°C. La viscosité de ces fluides a été représentée par les modèles de loi de puissance et de Carreau à 4 paramètres.

I.4.2. Propriétés superficielles et interfaciales

I.4.2.1. Tension superficielle et interfaciale

La tension superficielle, ou énergie d'interface, ou encore énergie de surface, est la tension qui existe à la surface de séparation de deux milieux. Cet effet permet par exemple aux insectes de marcher sur l'eau, à la rosée de ne pas s'étaler sur les pétales de fleurs, et explique la capillarité. La tension superficielle explique aussi la formation des bulles de savon. Au sein d'un fluide (liquide ou gaz), les molécules exercent entre elles des forces d'attraction ou de répulsion : force de Van der Waals (attraction), force électrostatique (attraction ou répulsion). On parle alors de « forces intermoléculaires ». Si l'on considère un corps pur liquide, composé d'un seul type de molécules, les molécules s'attirent (sinon, elles ne formeraient pas une phase). Au sein du liquide, chaque molécule est tirée dans toutes les directions par les molécules voisines de liquide : la résultante des forces est nulle. Dans le vide en revanche, une molécule n'est attirée par rien. Donc, à la frontière liquide/vide, les molécules sont attirées côté liquide mais pas côté vide ; la résultante des forces s'exerçant sur les molécules de la surface est donc dirigée vers l'intérieur du liquide. Ceci tend la surface. On parle alors de tension superficielle. La tension superficielle se mesure en newtons par mètre [N.m^{-1}]. On la définit comme la force qu'il faut appliquer à l'unité de longueur le long d'une ligne perpendiculaire à la surface d'un liquide en équilibre pour provoquer l'extension de cette surface, ou comme le travail exercé par cette force par unité de surface. L'unité de tension superficielle est équivalente à des joules par mètre carré [J.m^{-2}] qui correspondent à une unité d'énergie de surface. On peut définir cette énergie d'interface comme étant le surplus d'énergie chimique par rapport au cas où les molécules de surface se trouveraient à l'intérieur du liquide. Le système tend toujours à minimiser l'énergie de surface.

I.4.2.2. Mesure de la tension superficielle et de la tension interfaciale

Afin de déterminer la tension superficielle et interfaciale, le laboratoire dispose d'un tensiomètre PROLABO à équilibrage automatique (par la méthode de l'étrier AFNOR T 73 060), qui permet de donner un ordre de grandeur de la tension superficielle et interfaciale. Afin de déterminer la tension superficielle et interfaciale avec plus de précision, le laboratoire dispose d'un tensiomètre de marque ITC concept. La goutte est formée à l'extrémité d'un capillaire relié à une seringue dont le piston est commandé par un moteur. La verticalité de l'extrémité du capillaire est réglable pour pouvoir former des gouttes rigoureusement axisymétriques. Ce réglage est assisté par ordinateur. L'aiguille est droite pour former des gouttes pendantes et recourbée à 180° pour des gouttes montantes. Cette flexibilité offerte par l'appareil permet de faire face à pratiquement toutes les configurations de densité et d'opacité des liquides. La goutte est formée automatiquement par l'appareil. Il suffit de définir son volume et sa vitesse de formation. Comme pour la cuvette, la seringue est thermostatée par bain circulant. Différents accessoires permettent de réaliser des mesures à plus hautes températures (jusqu'à plus de 200°C) et/ou sous pression. L'optique est de type télécentrique. Ainsi l'agrandissement du système optique ne dépend pas de la distance de l'objectif à la goutte et la calibration optique peut être faite une fois pour toute, alors qu'avec tout autre type d'objectif, il serait nécessaire de reprendre la calibration avant d'effectuer toute mesure. De plus, il est à très faible distorsion. Par ailleurs le logiciel effectue une ultime correction optique afin d'obtenir la plus grande précision sur la forme du contour de la goutte. La camera CCD est à la norme CCIT analysant 25 images par seconde au format 640x512 pixels. La tension interfaciale entre deux fluides est calculée à partir de la forme du profil d'une goutte d'un premier fluide formée à l'extrémité d'un capillaire qui plonge dans une cuvette contenant le second fluide. La goutte est en équilibre entre la tension interfaciale et la pesanteur. Ces forces sont antagonistes. La tension interfaciale tend à lui donner une forme sphérique tandis que la pesanteur tend à l'allonger, si bien que sa forme d'équilibre ressemble à celle d'une poire. Le traitement s'appuie sur les deux équations fondamentales:

- o L'équation de Laplace-Young qui traduit que la différence de pression causée par la courbure de la surface est proportionnelle à la courbure moyenne, le coefficient de proportionnalité étant justement la tension interfaciale:

$$\Delta P = \sigma \left(\frac{1}{R} + \frac{1}{R'} \right) \quad (I.11)$$

- o La deuxième équation résulte de l'écriture d'un équilibre des forces au travers de tout plan horizontal:
$$2\pi x \sigma \sin \theta = V(\rho_h - \rho_l)g + \pi x^2 \Delta P \quad (I.12)$$

où p est la pression due à la courbure, g la tension interfaciale, R et R' les rayons de courbures principaux de la surface, x l'abscisse du point de la méridienne d'ordonnée, θ l'angle entre la normale et l'axe de révolution, V le volume du fluide sous le plan, ρ_h et ρ_l les masses volumiques respectives des deux fluides et g l'accélération terrestre.

I.4.3. Fluides newtoniens utilisés

En plus de l'eau pure, des fluides newtoniens visqueux ont été utilisés dans ce travail lors de l'étude de la traversée de l'interface liquide-liquide par une bulle ou une sphère rigide constituant ainsi les deux phases huileuses et aqueuses de part et d'autre de l'interface. Ces fluides newtoniens sont :

- le lubrifiant Emkarox HV 45, qui est un copolymère de PolyAlkylène glycol. Des solutions diluées d'Emkarox dans l'eau de différentes concentrations (25%, 50% et 65%) ayant par conséquent différentes viscosités ont été utilisées dans cette étude. Les propriétés de l'eau et des trois solutions d'Emkarox dans l'eau mesurées à la température ambiante de 20°C et à la pression atmosphérique sont présentées sur le tableau ci dessous.

Phase aqueuse	HV45 100%	HV45 80%	HV45 65%	HV45 50%	HV45 35%	HV45 25%	HV45 10%	Eau
ρ (kg/m ³)	1070	1060	1050	1030	1025	1010	1005	996
μ (mPa.s)	4600	2200	600	235	90	30	10	1
σ (mN/m)	36,5	37,3	37,8	37,9	39,6	40,8	50,4	72,5
θ_{contact}	-	-	-	-	-	46°	56°	66°

Tableau I.01. Propriétés des solutions de Emkarox à 20°C

- le Sodium Dodécyl Sulfate de la société Amersco (SDS ou NaDS) (I2H25NaO4S), aussi connu sous le nom de Laurylsulfate de sodium (en anglais, *sodium lauryl sulfate* ou SLS), est un surfactant ionique qui est utilisé dans les produits ménagers tels que les dentifrices, shampooings, mousses à raser ou encore bains moussants pour ses effets épaississants et sa capacité à créer une mousse. La molécule est composée d'une chaîne de 12 atomes de carbone, rattachée à un groupement sulfate conférant à la

molécule les propriétés amphiphiles requises pour un détergent. Différentes concentrations ont été utilisées.

Phase aqueuse	Eau +0,1% SDS	Eau +0,15% SDS	HV45 10% +0,05%SDS
ρ (kg/m ³)	996	996	1005
μ (mPa.s)	1	1	10
σ (mN/m)	50,3	40,6	40,2
θ_{contact}	64°	63°	53°

Tableau I.02. Propriétés des solutions de SDS à 20°C

- L'huile de silicone (Rhodorsil 47 V) de Prolabo, avec six viscosités différentes : 0,005 (HS5), 0,01 (HS10), 0,05 (HS50), 0,1 (HS100), 0,5 (HS500) et 1 Pa.s (HS1000). Les propriétés physiques de chaque huile sont présentées dans le tableau :

Huiles	Huile de tournesol	HS 5	HS10	HS50	HS100	HS500	HS1000
ρ (kg/m ³)	902	915	920	955	960	961	970
μ (mPa.s)	70	6	11	57	111	500	1000
σ (mN/m)	24,6	18,5	19,7	20,1	20,2	20,2	20,5

Tableau I.03. Propriétés des huiles de silicone à 20°C

Les tensions interfaciales des différents fluides aqueux avec les différentes huiles sont représentés ci dessous : (exprimé en mN/m)

	Huile tournesol	HS5	HS10	HS50	HS100	HS500	HS1000
Eau	36,2	33,1	22,2	20,2	17,6	17,1	17
Emkarox 25%	20,6	19,2	18,2	17,9	16,9	16,9	16,8
Emkarox 50%	17,23	15,1	15,2	16,5	15,5	15,4	15,5
Emkarox 65%	16,44	15,7	14,9	15	15,1	15,2	15,1

Tableau I.04. Tensions interfaciales à 20°C

I.4.4. Fluides non newtoniens utilisés

Le Poly Acryl Amide AN 905 SH (PAAm) est un produit de la société SNF Floeier. C'est un polymère linéaire, de masse molaire élevée, obtenu par polymérisation de l'acrylamide et de l'acide acrylique. La masse molaire moyenne du PAAm AN 905 SH est de $M_w = 6,96 \times 10^3$ kg/mol. Les solutions de PAAm présentent un comportement viscoélastique et rhéofluidifiant.

Elles sont en régime semi dilué et leurs chaînes de polymères forment un réseau fortement enchevêtré. Par conséquent, ces solutions présenteront trois caractéristiques rhéologiques principales, une rhéofluidification importante, une élasticité importante et un effet de mémoire du fluide

Les propriétés rhéologiques (en particulier la viscosité, l'élasticité et la relaxation du fluide) des solutions de PAAm sont présentées ci-dessous.

$$\tau = K \dot{\gamma}^n \text{ (I.08.)}$$

Fluide non-newtonien	K (Pa.s ⁿ)	n
PAAm 0,25%	1,376	0,377
PAAm 0,5%	1,98	0,355
PAAm 0,75%	2,27	0,336
PAAm 1%	3,89	0,313
PAAm 1,25%	6,14	0,299

Tableau I.05. Propriétés rhéologiques des solutions de PAAm à 20°C

Les viscosités des solutions de PAAm en fonction de la vitesse de cisaillement sont présentées sur la figure I.15. Celle-ci permet d'observer à vitesse de cisaillement croissante :

- un premier plateau newtonien pour les faibles vitesses de cisaillement,
- une zone de forte rhéofluidification du fluide,
- le début d'un deuxième plateau newtonien pour les fortes vitesses de cisaillement.

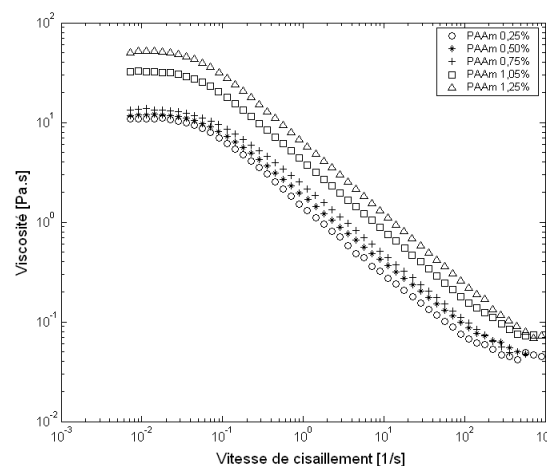


Figure I.15. Viscosité pour les solutions de PAAm en fonction de la vitesse de cisaillement

Les tensions superficielles des différentes solutions de PAAm sont représentées ci-dessous : (exprimées en mN/m)

PAAm	0,25%	0,50%	0,75%	1%	1,25%	1,50%	2%
ρ (kg/m ³)	996	996	996	996	996	996	996
σ (mN/m)	70,29	69,6	69,3	67,7	67,2	66,9	66,2

Tableau I.06. Propriétés des solutions de PAAm à 20°C

Les tensions interfaciales des différents fluides aqueux avec les différentes huiles sont représentés ci dessous : (exprimées en mN/m)

	HT	HS5	HS10	HS50	HS100
PAAM0,25%	28,94	28,99	29,21	29,65	29,81
PAAM0,75%	31,67	30,8	30,8	30,2	30,05
PAAM1,25%	32,93	30,9	30,9	30	29,87

Tableau I.07. Propriétés des tensions interfaciales à 20°C

La viscosité des solutions de PAAm est bien représentée par le modèle suivant de Carreau à 4 paramètres :

$$\frac{\eta - \eta_{\infty}}{\eta_0 - \eta_{\infty}} = \left[1 + \left(\lambda \cdot \dot{\gamma} \right)^2 \right]^{\frac{n-1}{2}} \quad (I.09)$$

	η_0	η_{∞}	λ	n
Solution	[Pa.s]	[Pa.s]	[s]	-
0,25% PAAm	10,80	0,041	26,4	0,268
0,50% PAAm	12,05	0,045	38,9	0,291
0,75% PAAm	13,35	0,057	58,4	0,300
1,00% PAAm	33,32	0,07	65,1	0,303
1,25% PAAm	50,12	0,08	70,0	0,308

Tableau I.08. Modèle de Carreau pour les solutions polymériques de PAAm à 20°C

Les résultats des mesures de première différence des contraintes normales N_1 sont représentés en fonction de la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ sur la figure I.16.

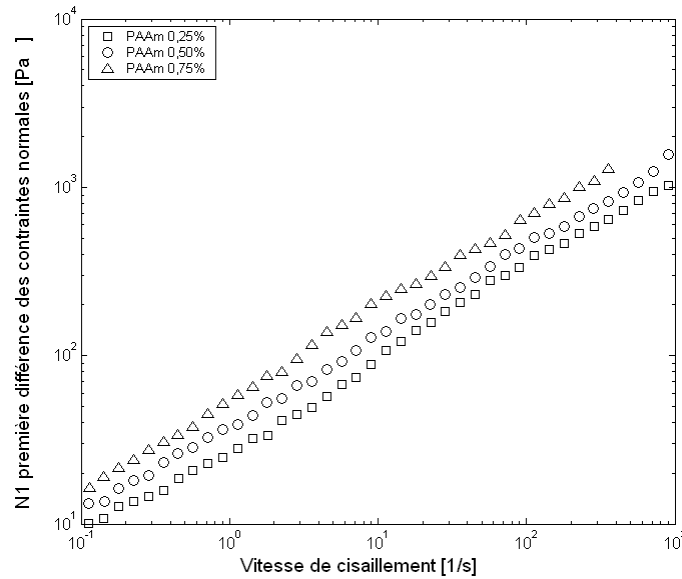


Figure I.16. Premières différences des contraintes normales pour les solutions de PAAm.

Les premières différences des contraintes normales augmentent avec la concentration en polymère. Ces contraintes normales peuvent s'exprimer sous la forme d'une loi puissance en fonction du cisaillement selon la loi I.13 :

$$N_1 = m' \left(\dot{\gamma} \right)^{n'} \quad (I.13)$$

Le tableau I.09 résume les valeurs des différents paramètres.

solution	m'	n
0,25% PAAm	28,12	0,538
0,50% PAAm	38,1	0,529
0,75% PAAm	54,51	0,5419
1,00% PAAm	67,83	0,558
1,25% PAAm	78,83	0,571

Tableau I.09. Modélisation des solutions de PAAm par la loi de puissance

On peut constater quelques dispersions dans ces mesures, ceci peut être dû au glissement du fluide entre le plateau et le cône ou éventuellement au parallélisme de l'axe de rotation du rhéomètre.

I.4.5. Sphères rigides utilisées

Dans notre étude, nous avons utilisé des sphères rigides de différentes tailles, en verre, en céramique et en acier. Les masses volumiques de ces sphères sont présentées dans le tableau I.10. Différents diamètres de sphères sont utilisés, allant de 1 mm à 20 mm pour les plus grosses sphères.

matériau	Verre	Acier	Céramique
ρ masse volumique (kg/m ³)	2520	7800	2400

Tableau I.10. Masses volumiques des sphères rigides utilisées.

Chapitre II :
Interfaces Gaz-Liquide

Chapitre II

II.1. Formation de bulles à un orifice immergé

L'étude du comportement des bulles dans un milieu liquide relève d'un intérêt général tant sur le plan de la recherche fondamentale que sur le plan des applications industrielles. Parmi les champs d'applications, on peut citer : les colonnes à bulles, les fermenteurs aérés, les procédés de dévolatilisation des polymères et de lubrifiants, l'élaboration de nouveaux matériaux, la sûreté, l'industrie du verre, les bioprocédés, l'industrie pétrolière etc.

Dans la plupart de ces équipements, l'établissement et la validation de modèles hydrodynamiques, de transfert de chaleur et de matière en milieu diphasique nécessitent la connaissance exacte du volume de la phase dispersée. En outre, les propriétés physico-chimiques de la phase liquide (viscosité, tension superficielle, densité, etc) et quelques unes des caractéristiques de la phase gazeuse influencent l'hydrodynamique, ainsi que l'ensemble du procédé.

Dans cette étude, nous nous intéresserons au comportement de bulles en formation dans les fluides newtoniens et particulièrement dans de l'eau. Dans la première partie, nous présenterons une revue bibliographique des différents travaux existants dans le domaine de la formation des bulles dans des milieux newtoniens. La seconde partie sera consacrée à l'étude expérimentale de la formation des bulles dans des fluides newtoniens. Pour établir nos résultats, nous avons utilisé deux techniques de mesures : la caméra rapide afin de mettre en évidence les phénomènes liés aux interactions des bulles durant leur formation, et la technique PIV qui permet de décrire l'écoulement local autour de bulles à travers des mesures de champs de vitesses instantanés. L'utilisation de la technique PIV dans la dynamique des bulles en formation dans des fluides newtoniens a permis de lever le voile sur plusieurs phénomènes qui restaient incompris. Enfin, la dernière partie portera sur l'établissement de corrélations et la vérification de celles proposées dans la littérature.

II.1.1. Revue bibliographique

Dans cette partie, nous ferons essentiellement un rappel des différentes caractéristiques concernant la formation de bulles dans des milieux newtoniens. Il existe un certain nombre de travaux sur la génération des bulles à un orifice, rapportés récemment par Kulkarni et Joshi (2005). Certains font intervenir des modèles dynamiques pour essayer de prendre en compte l'influence de la pression à l'orifice ou les différentes phases obtenue entre la formation et le détachement de la bulle. Cependant tous ces modèles, obligatoirement simplifiés ne parviennent pas à rendre compte de la complexité du phénomène sur l'ensemble du domaine couvert par les différents paramètres. Il apparaît ainsi, assez curieusement, que ce sont finalement les modèles les plus simples qui sont les plus représentatifs. Nous ne représenterons pas ici la totalité de ces corrélations, reprises quasi exhaustivement par Kulkarni et Joshi (2005). Il existe des régimes particuliers où, seul un nombre limité de forces conditionne la taille de la bulle. Il est possible d'effectuer une analyse simplifiée de ces régimes pour déterminer le type de comportement vis-à-vis des variables principales.

- **Régime quasi statique.**

Les premières études sur la formation de bulles ont été publiées par Tate (1864) et Bashforth et Adams (1883). Bashforth et Adams ont déterminé la forme des ménisques liquides pour différentes conditions d'équilibre de forces et ont publié leurs résultats sous forme de tableaux. A partir de leurs données, l'évolution de la taille des bulles peut être calculée dans le régime quasi-statique. L'égalisation de la force de poussée F_A et de la force capillaire F_σ à l'orifice (relation II.01) conduit à la relation bien connue :

$$\left(\frac{d_b}{d_0}\right)^3 = \frac{6}{E\ddot{o}_0} \quad (II.01)$$

Cette expression néglige totalement l'effet de pincement au niveau du col de la bulle et l'expression de d_b fournie par la relation (II.01) est généralement considérée comme un maximum pouvant conduire à une surévaluation du volume V_b d'un facteur de l'ordre de 2, soit environ 25% pour d_b (Bhavaraju *et al.*, 1978). En tenant compte des effets visqueux et inertiels, différents modèles de complexité variable ont été proposés.

- **Le modèle de Kumar et Kuloor (1970)**

Il s'agit de l'un des modèles intégraux le plus complet dans lequel on retrouve les différents comportements asymptotiques. Ce modèle est un modèle à deux étapes. La première étape conduit à un diamètre de bulle V_{be} sous l'influence de l'équilibre des forces extérieures qui incluent la force de poussée, la traînée, la tension superficielle avec prise en compte du diamètre de l'orifice et de l'angle de mouillage, et les forces d'inertie avec la masse de liquide associée. La seconde étape appelée étape de détachement correspond à une accélération de la bulle sous l'influence du déséquilibre des forces extérieures. La bulle se détache lorsqu'elle a parcouru une distance égale à r_{be} , rayon de la bulle à l'équilibre. Ce modèle, très réaliste quant à ses hypothèses, est limité par deux importantes contraintes :

- les forces capillaires calibrées sur d_0 ,
- la distance imposée de détachement.

Ce sont vraisemblablement ces contraintes qui statistiquement ne rendent pas ce modèle meilleur que les modèles empiriques plus simples bien que moins physiques.

$$\left(\frac{d_{be}}{d_0}\right)^5 = \frac{6\cos\theta_m}{Bo_0}\left(\frac{d_{be}}{d_0}\right)^2 + \frac{9}{2}\left(\frac{Fr_0}{Ga_0}\right)^{1/2}\left(\frac{d_{be}}{d_0}\right) + \frac{11}{128}Fr_0 \quad (II.02)$$

$\cos\theta_m$ est censé rendre compte de l'angle de mouillage à l'orifice. Ce terme ne prend pas en compte l'élargissement possible de la base de la bulle.

La valeur de d_{bd} au détachement est obtenue en supposant que la bulle accélère conformément à la loi de Newton. Le détachement est supposé se produire lorsque la base de la bulle a parcouru la distance $d_{be}/2$. La force de traînée est prise en compte et décomposée en un terme inversement proportionnel au nombre de Reynolds pour le régime de Stokes et un terme constant pour le régime inertiel.

En pratique, comme l'ont montré Orguz et Prosperetti (1993) par simulation numérique, le résultat reste très voisin de la valeur à l'équilibre fournie par la relation (II.02) si :

$$Fr_0 < \frac{8,8}{Bo_0^{5/3}} \quad (II.03)$$

Par ailleurs, au-delà d'une certaine vitesse du fluide, l'inertie du gaz doit être prise en compte et la bulle est assez fortement déformée. Ainsi, le modèle qui précède ne serait applicable que jusqu'à une valeur maximale du nombre de Froude telle que :

$$Fr_{0,\max} < \frac{8}{Bo_0} \frac{\rho_L}{\rho_G} \quad (II.04)$$

- **Le modèle de Gaddis et Vogelpohl (1986).**

Le modèle proposé par Gaddis et Vogelpohl repose sur un certain nombre d'hypothèses simplificatrices. Si ces hypothèses peuvent sembler dans certains cas éloignées de la réalité observée, elles suffisent pour élaborer un modèle de tendance et proposer une adimensionnalisation de la base des variables dimensionnelles qui gèrent le processus.

- le débit de gaz $\dot{V}_G$ est supposé constant,
- la phase liquide externe est globalement immobile et illimitée,
- les bulles restent à peu près sphériques,
- le détachement est lié à un équilibre des forces extérieures.

Les forces considérées au détachement par les auteurs sont :

- verticales ascendantes : forces de poussée F_A , de pression F_p à l'orifice, d'inertie de l'alimentation gazeuse F_j ,
- verticales antagonistes : force superficielle d'accrochage au col F_σ , la force de traînée T , la force d'inertie de la bulle et de la masse de liquide associée F_I .

On suppose que lorsque la bulle se détache, l'équilibre des forces permet d'écrire, en négligeant la force de pression :

$$F_A + F_j = F_\sigma + T + F_I \quad (II.05)$$

Une telle écriture est éminemment critiquable. En particulier, il est vraisemblable que la force F_σ ne joue pas de rôle au moment de la rupture qui s'effectue par rupture du col dès lors que la fréquence de formation est suffisante. Du point de vue de l'analyse dimensionnelle, le fait est moins critiquable puisque le volume initial de la bulle est généré sans formation de col.

La corrélation proposée par Gaddis et Vogelpohl est :

$$\frac{d_b}{d_0} = \left[\left(6 \frac{\sigma}{g \rho_L d_0^2} \right)^{4/3} + \frac{81}{\pi} \frac{v_L \dot{V}_G}{g d_0^4} + \left(\frac{135}{4\pi^2} \frac{\dot{V}_G^2}{g d_0^5} \right)^{4/5} \right]^{1/4} \quad (II.06)$$

La corrélation proposée a été vérifiée par les auteurs sur le domaine :

$$\left| \begin{array}{ll} \rho_L \in [1000; 1320] \text{ kg m}^{-3} & \mu_L \in [10^{-3}; 1] \text{ Pa s} \\ \sigma \in [0,06; 0,08] \text{ N m}^{-1} & d_0 \in [0,2; 6] \text{ mm} \end{array} \right.$$

- Corrélation de Jamialahmadi et al. (2001).

Ces auteurs ont utilisé une approche neuronale pour traiter une banque de données regroupant de nombreux résultats expérimentaux obtenus dans le domaine de conditions opératoires suivant :

$$\left| \begin{array}{lll} \dot{V}_G \in [0; 1,5 \cdot 10^{-5}] \text{ m}^3 \text{ m}^{-1} & \mu_L \in [10^{-3}; 0,09] \text{ Pa s} & \sigma \in [0,02; 0,08] \text{ N m}^{-1} \\ d_0 \in [0,5; 4] \text{ mm} & \rho_L \in [1000; 13000] \text{ kg m}^{-3} & \end{array} \right.$$

Cette approche leur a permis de corréler leurs propres résultats ainsi que ceux de sept auteurs différents avec une précision moyenne de 2,2%. La corrélation de Gaddis et Vogelpohl conduit à un écart de 13%, le plus faible de l'ensemble des autres corrélation testées. Jamialahmadi *et al.* proposent, pour représenter leurs résultats, une formulation du type de la relation (II.07) avec des coefficients et exposants issus des valeurs de 900 points interpolés sur la banque de donnée neuronale.

$$\frac{d_b}{d_0} = \left(\frac{5,0}{Bo_0^{1,08}} + 9,261 \frac{Fr_0^{0,36}}{Ga_0^{0,39}} + 2,147 Fr_0^{0,51} \right)^{1/3} \quad (II.07)$$

Il convient de remarquer que, hormis le choix des rapports adimensionnels, la corrélation est purement numérique. Il est cependant remarquable de retrouver sensiblement les formes asymptotiques des différents régimes. Les écarts obtenus sur les exposants des différents termes et sur les coefficients peuvent être attribués aux phénomènes de couplage entre les différentes forces ainsi qu'à des phénomènes non maîtrisés, comme les effets de lift liés par exemple à la recirculation du liquide, plus ou moins occultée par l'orifice de distribution.

- **Les modèles inertiels.**

Une des premières modélisations en l'absence de viscosité est celle proposée par Davidson et Schuler (1960). Ces auteurs supposent qu'à chaque instant la force de poussée F_A sert à accélérer la masse de liquide associé au mouvement de la bulle. Il vient ainsi si y_0 est la position du centre de la bulle :

$$\frac{d}{dt} \left(C_E \rho_L V_b \frac{dy_0}{dt} \right) = g \Delta \rho V_b \quad (II.08)$$

Le détachement se produit lorsque $y_0 = k_c d_b$ (k_c et C_E sont des constantes). Posant :

$$\frac{d}{dt} = \frac{d}{dV_b} \frac{dV_b}{dt} = \dot{V}_G \frac{d}{dV_b} \quad (II.09)$$

Il est alors simple, à débit supposé constant d'intégrer la relation jusqu'au détachement. On obtient alors :

$$\boxed{\frac{d_b}{d_0} = (9k_c C_E)^{1/5} Fr_0^{1/5}} \quad (II.10)$$

Un grand nombre de modèles concernent le détachement des bulles dans un fluide peu visqueux. La plupart de ces modèles se présentent sous la forme classique correspondant à la relation (II.11) suivante :

$$\boxed{\frac{d_b}{d_0} = (9k_c C_E)^{1/5} Fr_0^{1/5} = Cte Fr_0^{1/5}} \quad (II.11)$$

<i>auteurs</i>	<i>Cte</i>	ρ_L (kg m ⁻³)	μ_L (mPa s)	σ (mN m ⁻¹)	d_0 (mm)
Davidson <i>et al.</i> (1960)	1,25	810-1000	1	27-73	1-3
Davidson <i>et al.</i> (1963)	1,17	780-1100	0,1-1	37-80	1,5-3
Kumar <i>et al.</i> (1971)	1.11	700-1300	0,8-1	18-90	1,1-3
Van Krevelen <i>et al.</i> (1950)	1,35	1000	1	72	<6
Wraith (1968)	1,15	théorique (écoulements à potentiel)			
Acharya <i>et al.</i> (1976)	1,11	théorie ondulatoire			

Tableau II.01. Coefficients de la relation (II.11)

La corrélation (II.06) de Gaddis et Vogelpohl conduit à une valeur de 1,161 soit dans la moyenne des valeurs du tableau (II.01).

Une quantité importante de travaux (Tsuge *et al.* 1982, Buwa *et al.*, 2007) dans le domaine de la formation de bulles à un orifice submergé est apparue dans la littérature, balayant un large éventail de paramètres. Ouz et Prosperetti (1993) ont réalisé des travaux sur la dynamique de croissance de la bulle au bout d'une aiguille. L'importance du volume de la chambre de pression dans le cas d'un orifice submergé a été mise en évidence par Marmur et Rubin (1976). Les modèles précédents ignorent l'influence de la fréquence de détachement des bulles sur la taille de ces dernières. Il s'agit de l'effet de l'aspiration de sillage provoquée sur une bulle en formation par la bulle précédente, aspiration qui modifie l'hydrodynamique globale par modification du champ des pressions. Nabre et Magnifotcham (1998) ont étudié ce phénomène et ont proposé un modèle qui tenait compte du sillage. La corrélation empirique de Jamialahmadi *et al.* (2001) le prend aussi en compte cet effet contrairement aux autres modèles de la littérature.

La plupart des études citées se sont focalisées sur de nombreux paramètres rentrant en compte dans le processus de formation. Mais les nombreux modèles proposés ne sont pas concordants, en raison des différences dans les conditions opératoires (propriétés physiques), le type de buse ou encore les paramètres de fonctionnement (vitesse du gaz, pression du système, etc). Cela met en évidence la nécessité d'améliorer les observations expérimentales sur le sujet. En analysant les images obtenues à l'aide d'une caméra rapide, Ghosh et Ulbrecht (1989) ont identifié trois phases de formation d'une bulle au niveau d'un orifice : une phase de croissance, et une phase d'allongement qui correspondent à la formation complète de la bulle et une phase d'attente qui correspond au temps de montée en pression dans le circuit d'injection pour la formation d'interface à l'orifice. La phase d'allongement se termine lorsque le cou qui relie la bulle à l'orifice se rompt.

L'analyse dont découle le modèle de Ghosh et Ulbrecht est basée sur les hypothèses suivantes :

- le fluide autour de la bulle est incompressible et étendu à l'infini ;
- la pression dans la bulle est uniforme à tout instant ;
- l'écoulement du gaz est adiabatique ;
- les effets de bord de l'orifice sont négligés.

Davidson et Schuler (1960) ont également étudié l'influence du débit de gaz sur le volume des bulles formées à un orifice dans un liquide non visqueux. Ils ont observé que le volume de la bulle V_b augmente par augmentation du débit de gaz. Pour de faibles débits de gaz, $Q_g <$

3 mL/s, ils ont constaté que l'écart entre les estimations expérimentales et théoriques du volume V_b est très important. Pour $3 < Q_g < 15$ ml/s les résultats expérimentaux sont en accord avec les résultats théoriques. Pour $Q_g > 20$ ml/s les volumes V_b expérimentaux sont nettement inférieurs à ceux obtenus théoriquement. Ces auteurs constatent que les bulles de gaz induisent un courant ascendant et de plus, elle se déforment et deviennent de moins en moins sphériques. Les bulles sont en fait entraînées par ce courant ascendant et ont des volumes inférieurs à ceux qu'elles sont supposées avoir dans une eau stagnante.

Pour améliorer la compréhension des mécanismes de formations de bulles, la technique PIV pourrait apporter des informations importantes. En effet la visualisation par la technique PIV permettrait de mieux comprendre la formation de la bulle à travers un orifice. Cependant les exemples d'images qui sont présentés par la littérature ne sont pas assez précis et ne renseignent pas suffisamment sur les champs de vitesse autour de la bulle. Cela est dû aux difficultés liées à la limitation de la fréquence de prise de vue de la caméra par rapport à la rapidité du phénomène (figure II.01). En effet il est difficile de mesurer un phénomène aussi rapide que la formation, compte tenu du temps de rupture de la bulle qui est de l'ordre de quelques microsecondes seulement. Les champs de vitesses obtenus lors de la formation de bulles sont très rares dans la littérature et, ceux-ci sont généralement très limités comme le montre la figure II.01. Le passage de la bulle précédente empêche en partie de visualiser le champ de vitesse autour de la bulle en formation créant un bruit de fond gênant pour la compréhension du mécanisme global de formation de la bulle. Scarano (1997) a étudié la formation de bulles dans des fluides newtoniens avec un effet important du sillage de la bulle, masquant l'ensemble de l'écoulement.

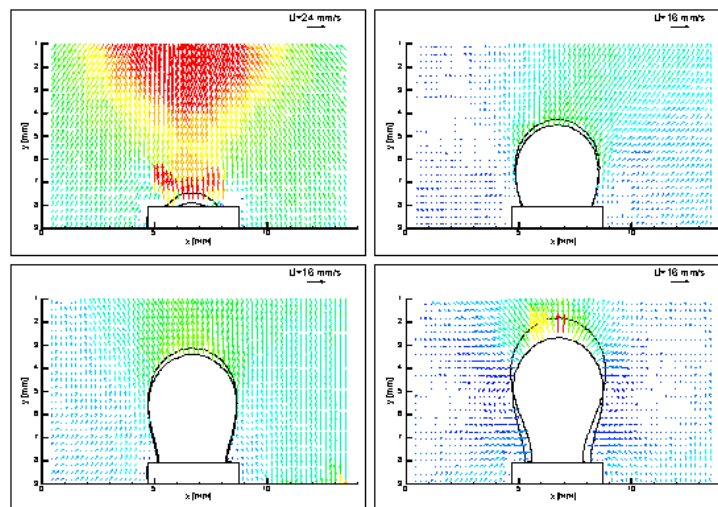


Figure II.01. Champs de vecteur vitesse à la formation d'une bulle Scarano(1997).

Li *et al.* (1999) ont étudié la formation de bulle dans des fluides newtoniens par PIV lors de la phase d'expansion de la bulle.

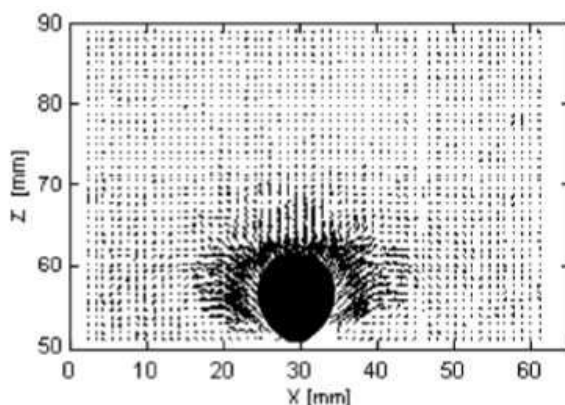


Figure II.02. Champs de vecteur vitesse à la formation d'une bulle (Funfshilling et Li, 1999).

Par ailleurs, à notre connaissance, la mesure des champs lors de la rupture de la bulle n'a jamais été reportée dans la littérature. Une connaissance approfondie du mécanisme de formation de la bulle reste indispensable pour compléter les prévisions et les modèles expérimentaux basés sur les écoulements diphasiques gaz-liquide.

II.1.2. Bilan macroscopique des forces au voisinage du détachement.

Avant de traiter les expériences réalisées dans cette étude, il est utile de faire un bilan global de toutes les forces présentes dans notre étude. La configuration du système étudié est schématisée sur la figure II.03.

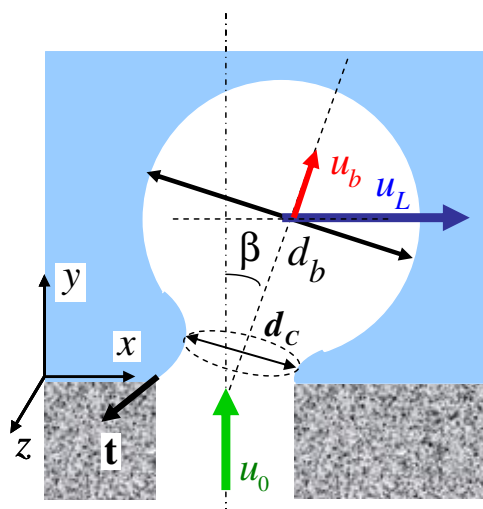


Figure II.03. Bulle à un orifice dans un écoulement orthogonal. (Source Midoux, 2008).

Les bilans de forces sont très compliqués du fait de la nécessité d'utiliser une vitesse relative ($\mathbf{u}_b - \mathbf{u}_L$) dont l'expression n'est pas simple compte tenu de l'angle d'inclinaison β de l'axe moyen de la bulle. Il convient de remarquer en outre que l'angle β évolue lors de la croissance de la bulle. L'hypothèse de la quasi stationnarité semble raisonnable si l'on s'intéresse seulement à la probabilité de détachement de la bulle sans chercher à décrire le phénomène dans le détail.

Dans l'écriture du bilan dynamique, certains termes sont plus ou moins importants, notamment en fonction des conditions de l'écoulement tels que le débit de gaz et la viscosité de la phase continue. Dans ce qui suit, $\mathbf{u}_b$ est considéré comme la vitesse du centre de gravité de la bulle.

En ne tenant compte que des effets considérés comme prépondérants, le bilan des forces en présence peut s'écrire formellement selon :

$$\mathbf{F}_I = \mathbf{F}_A + \mathbf{F}_\sigma + \mathbf{T} + \mathbf{P} + \mathbf{F}_p + \mathbf{F}_j$$

De façon classique:

- $\mathbf{F}_I$ est la pseudo force d'inertie qu'oppose à l'écoulement la masse de l'élément de phase dispersée et la masse de phase continue associée.
- $\mathbf{F}_A$ est la force de poussée gravitaire qui est une force de détachement,
- $\mathbf{F}_\sigma$ est la force capillaire qui traduit l'interaction de la base de la phase dispersée avec son support matériel, il s'agit d'une force stabilisatrice,
- $\mathbf{T}$ est la force de traînée qui s'exerce dans la direction de la vitesse relative, il s'agit d'une force de détachement,
- $\mathbf{P}$ est la force de poussée, orthogonale à la direction relative du déplacement ; elle peut selon les cas apparaître comme une force de détachement ou une force de stabilisation par inversion de sens. Cette force est liée à l'existence d'une vitesse de déformation angulaire notable dans l'écoulement extérieur,
- $\mathbf{F}_p$ est la force de pression, force de détachement liée à la différence de pression entre la phase dispersée à l'orifice et la phase continue,
- $\mathbf{F}_j$ est la force du jet, force de détachement liée à l'inertie éventuelle du jet d'alimentation en phase dispersée.

Les variables retenues dans l'analyse du problème sont:

Géométriques : - d_0 , diamètre de l'orifice générateur,

- d_D , diamètre de particule sphérique équivalent en volume ;

Cinématiques : - $\dot{V}_D$, débit volumique de phase dispersée, supposé constant,

- u_C , vitesse de la phase continue au niveau du centre de gravité de la particule,

- $\dot{\gamma}$ vitesse de déformation angulaire dans l'écoulement extérieur ;

Dynamiques : - ρ_D, ρ_C , masses volumiques des phases,

- μ_D, μ_C , viscosités dynamiques des phases,

- σ tension superficielle ou interfaciale,

- g accélération de la pesanteur.

Il est intéressant d'utiliser pour certaines expressions la différence des masses volumiques

avec: $\Delta\rho = |\rho_C - \rho_D|$ (II.12)

Il sera de même intéressant de normer les vitesses par la vitesse à l'orifice u_0 . Dans le problème complet, on se retrouve en présence de 10 variables indépendantes (en l'absence de phénomènes de mouillage) pour corréler le diamètre de la bulle. La solution du problème dépend donc en principe de 7 rapports adimensionnels indépendants qui constituent une base de l'espace vectoriel correspondant. Dans le cas minimal, pour les bulles dans les liquides, en supposant que μ_G et ρ_G n'interviennent pas, et en l'absence d'écoulement extérieur (u_L et $\dot{\gamma}$ n'interviennent pas), la corrélation du diamètre de bulle d_b au détachement nécessite quatre rapports adimensionnels. On conçoit la complexité du problème s'il est traité dans son ensemble. Il convient de s'intéresser aux comportements asymptotiques lorsque l'hydrodynamique est tributaire d'un nombre de forces plus restreint.

II.1.3. Formation de bulles à un orifice immergé

II.1.3.1. Formation d'une bulle d'air dans l'eau

La formation des bulles à un orifice est étudiée à l'aide d'une caméra rapide et d'un système PIV. L'évolution de la forme de la bulle au cours de sa formation est représentée sur la figure II.04.

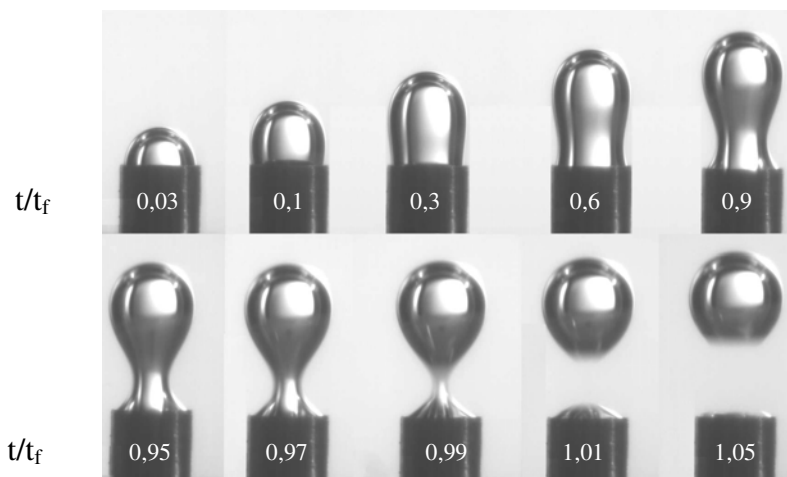


Figure. II.04 Formation d'une bulle d'air de $150 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ à un orifice en laiton de $4 \times 10^{-3} \text{ m}$ dans de l'eau pure. Images prises par caméra rapide à la vitesse de 500 images/s. Débit de phase gazeuse $Q_g = 1,5 \cdot 10^{-6} \text{ kg s}^{-1}$. Le temps de formation t_f est d'environ 0,250 s. En haut, de gauche à droite, $t/t_f = 0,03 ; 0,1 ; 0,3 ; 0,6 ; 0,9$. En bas de gauche à droite, $t/t_f = 0,95 ; 0,97 ; 0,99 ; 1,01 ; 1,05$.

A partir de ces images on peut distinguer deux phases lors de la formation de la bulle ; une phase d'expansion ou phase de grossissement de la bulle, puis une phase d'élongation au cours de laquelle la bulle continue à se développer et à se soulever vers le haut tout en restant reliée à l'orifice par son cou. Après le détachement et dès qu'elle atteint une certaine vitesse, la bulle monte hélicoïdalement dans le liquide (ici de l'eau). Dans tous les cas rencontrés, que ce soit dans l'eau ou dans des solutions visqueuses, la bulle augmente initialement de façon sphérique puis s'allonge dans la direction verticale pour prendre la forme d'une poire symétrique à l'axe vertical passant par l'orifice. Ceci s'explique par le fait que la tension superficielle soit dominante dans la première période de la formation, puis, lorsque la force de poussée d'Archimède devient plus importante avec la croissance de la bulle, l'interface s'élève et allonge la bulle.

Après avoir abordé la visualisation de la formation d'une bulle à partir d'un orifice par la caméra rapide, nous présenterons les mesures de champs de vitesses autour de la bulle en formation obtenus par la technique PIV. Notons toutefois que ces mesures sont difficiles à réaliser du fait de la limitation de la fréquence de la caméra par rapport à la vitesse du phénomène ainsi que du phénomène de réflexion de la lumière au niveau de l'interface.

II.1.3.2. Etude PIV de la formation d'une bulle d'air dans l'eau

Nous avons suivi (figure II.05) la formation d'une bulle de $180 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ dans de l'eau pure au repos. Le temps séparant la prise de deux images permettant la création d'une carte d'écoulement est de 5 ms. Le choix de ce temps est très important et doit suivre la vitesse du phénomène étudié. Le temps entre deux paires consécutives d'image est de 66 ms, cette valeur est tributaire de la fréquence de la caméra, et il nous est impossible de diminuer cette valeur. Le temps de formation de la bulle est d'environ 0,26 s.

A $t/t_f = 0,03$ (fig. II.05.a) et à $t/t_f = 0,3$ (fig. II.05b), on peut observer la phase d'expansion de la formation de la bulle, qui crée un écoulement vertical en déplaçant le liquide vers le haut (fig. II.05a). Plus la bulle grossit, plus la quantité de fluide déplacée vers le haut augmente jusqu'à atteindre une valeur critique à partir de laquelle le liquide retombe sur les côtés de la bulle (fig. II.05b et c). Cette retombée de liquide est à l'origine de l'apparition de zones de recirculation latéralement aux bulles. Il est à noter que ces boucles latérales sont axisymétriques tout comme le champ de vitesse de bulle en formation avant le détachement. La figure II.05d présente le profil des vitesses quelques millisecondes avant la rupture ($t/t_f = 0,99$). Les boucles de recirculations créées sont à l'origine d'un cisaillement sur le cou de la bulle, ce qui, couplé à l'élongation due à l'inertie de la bulle va conduire à son détachement. À $t/t_f = 1,15$ (fig. II.05e), le cycle de formation se termine par la rupture du cou de la bulle et sa libération dans la colonne. Les champs de vitesse montrent que l'écoulement du fluide a lieu dans la même direction que le déplacement de la bulle qui adopte une forme plus aplatie. On distingue la zone du front (zone immédiatement au-dessus de la bulle détachée) ainsi que le sillage qui correspond au mouvement ascendant du fluide et les boucles de recirculation axisymétriques de part et d'autre de la bulle qui commence à se former. Ce dernier champ d'écoulement est en accord avec les études précédentes réalisées par PIV sur l'ascension des bulles dans des fluides (Li *et al.*, 2001, Frank *et al.*, 2006).

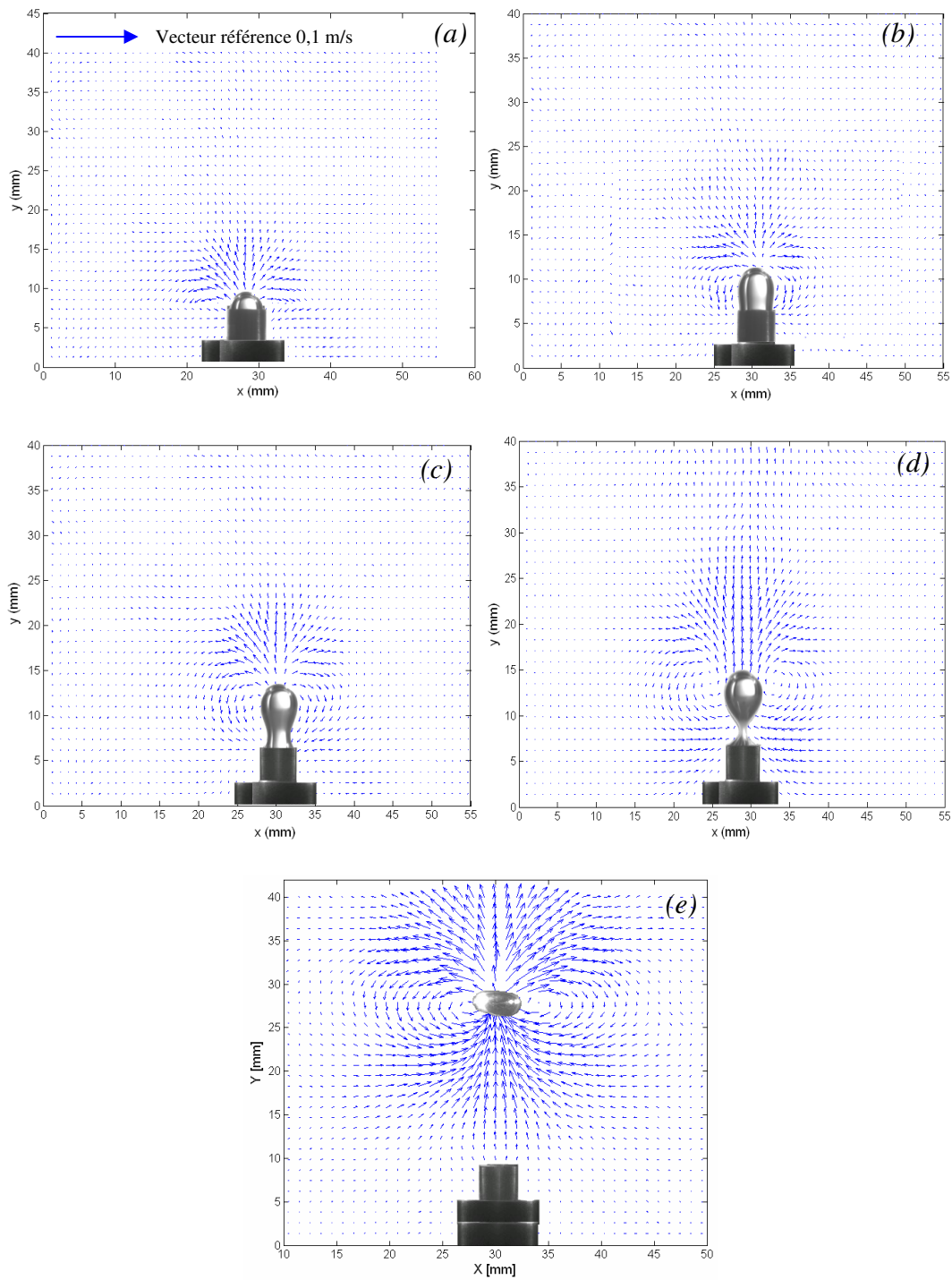


Figure II.05. Séquences de champs de vitesses obtenus par PIV lors de la formation d'une bulle de $180 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ dans de l'eau au repos. Le temps de formation de la bulle t_f vaut 0,26 s. (a) $t/t_f = 0,03$ (b) $t/t_f = 0,3$ (c) $t/t_f = 0,7$ (d) $t/t_f = 0,99$ (e) $t/t_f = 1,15$.

II.1.3.3. Influence de la taille des orifices

A l'aide du dispositif expérimental précédemment décrit (cf. § I.2.1), on mesure le volume des bulles d'air formées à partir d'orifices plats en PVC dont le diamètre varie entre 0,5 et 4 mm. La figure II.06 regroupe l'ensemble des résultats obtenus.

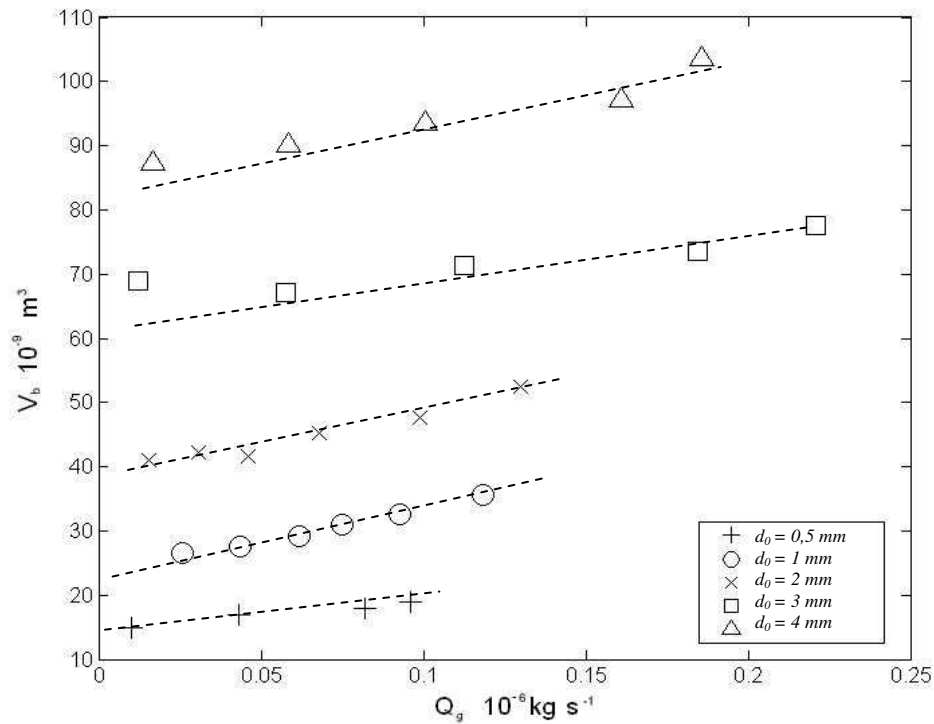


Figure II.06. Influence de la taille de l'orifice sur la taille des bulles formées sur le système air/eau.

On observe que le volume des bulles augmente linéairement avec le débit de phase gazeuse et également avec la taille de l'orifice d_0 . En effet, plus le diamètre de l'orifice est important plus la section offerte à l'écoulement est importante, ce qui permet de développer une plus grande base de la bulle. Son volume lors du détachement sera donc plus grand.

II.1.3.4. Influence des propriétés physico-chimiques de la phase stagnante

Pour étudier l'influence des propriétés physico-chimique, on mesure le volume des bulles d'air formées à partir d'un orifice plat en PVC d'1mm de diamètre pour trois phases liquides différentes au repos (de l'eau, du HV45 50% et du HV45 65%). La figure II.07. regroupe l'ensemble des résultats obtenus.

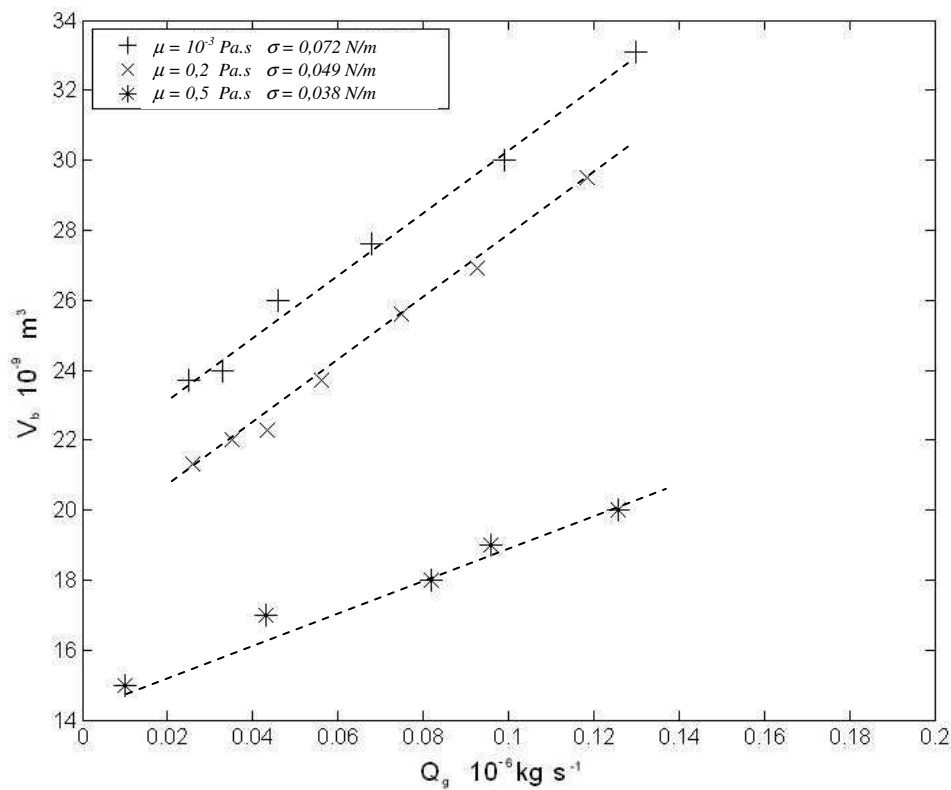


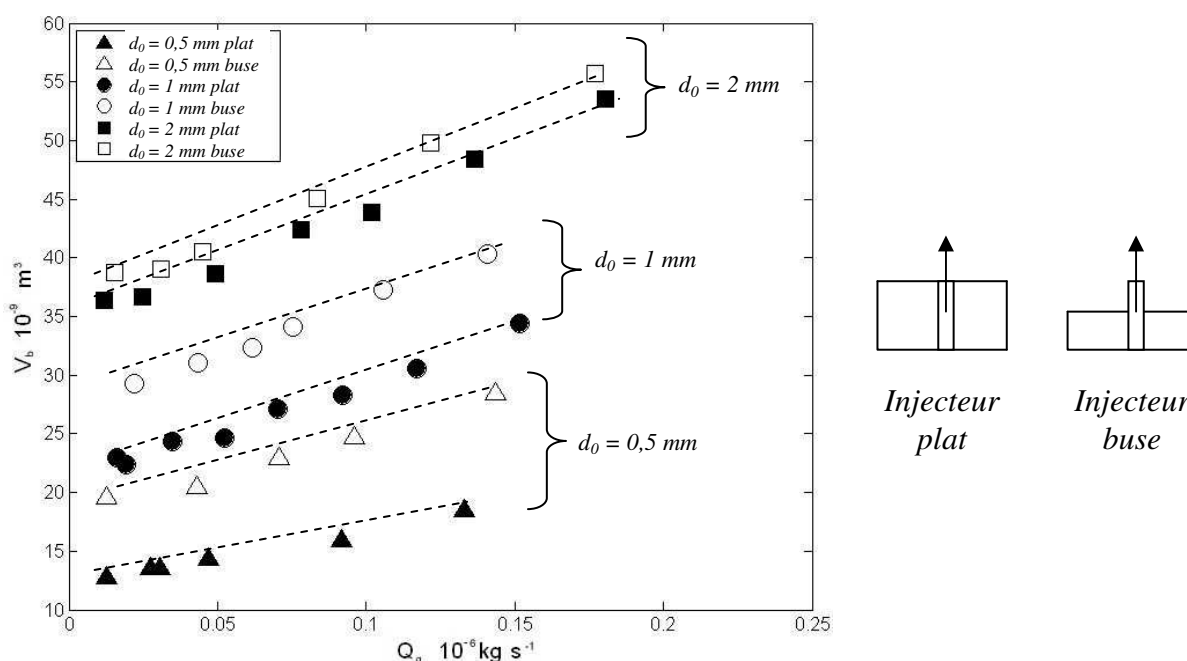
Figure II.07. Influence de la viscosité et de la tension superficielle du liquide sur la formation de bulle sur une buse plate en PVC d'1 mm de diamètre.

Ce graphique ne permet pas de conclure quant à l'influence séparée de la viscosité et de la tension superficielle sur la taille des bulles, néanmoins il nous permettra par la suite de vérifier les corrélations existantes pour des domaines de propriétés physico-chimiques différentes.

II.1.3.5. Influence de la forme du dispositif d'injection

Pour tester l'influence de la forme de l'orifice, nous avons généré des bulles d'air dans de l'eau à l'aide des deux dispositifs en laiton de la figure I.02. (Injecteurs plat et en forme de buse). Le diamètre du grand cylindre est de 10 mm pour les deux dispositifs, la taille de l'orifice étant de 0,5, 1 et 2 mm. L'épaisseur de la paroi de la buse est de 0,2 mm.

Les volumes des bulles détachées dans des conditions standard sont portés sur la figure C2.08.



On constate que, hormis pour le diamètre de 0,5 mm et 1 mm, les résultats sont relativement peu différents. En particulier, les valeurs des tailles de bulles extrapolées à débit nul se correspondent pour $d_0 = 2$ mm. Un écart important est à noter pour $d_0 = 0,5$ mm. L'hypothèse du mouillage à l'orifice est à exclure sinon on observerait des diamètres de bulles plus importants à l'orifice plat que sur la buse, ce qui n'est manifestement pas le cas. A débit non nul, on observe un accroissement de la taille de la bulle, toutes choses égales par ailleurs, sur l'orifice. Cet effet semble avoir tendance à disparaître pour $d_0 = 2$ mm. Il faut sans doute y voir un effet de l'hydrodynamique locale avec la recirculation liquide qui engendre des contraintes de rupture supplémentaires. Cet effet pourrait être moins important avec la

croissance relative de la taille de bulle observé pour $d_0 = 2$ mm. Afin de tenter d'élucider l'effet de la forme de l'orifice, des mesures PIV ont été réalisées afin d'obtenir les champs de vecteurs vitesses lors de la formation des bulles sur ces deux orifices.

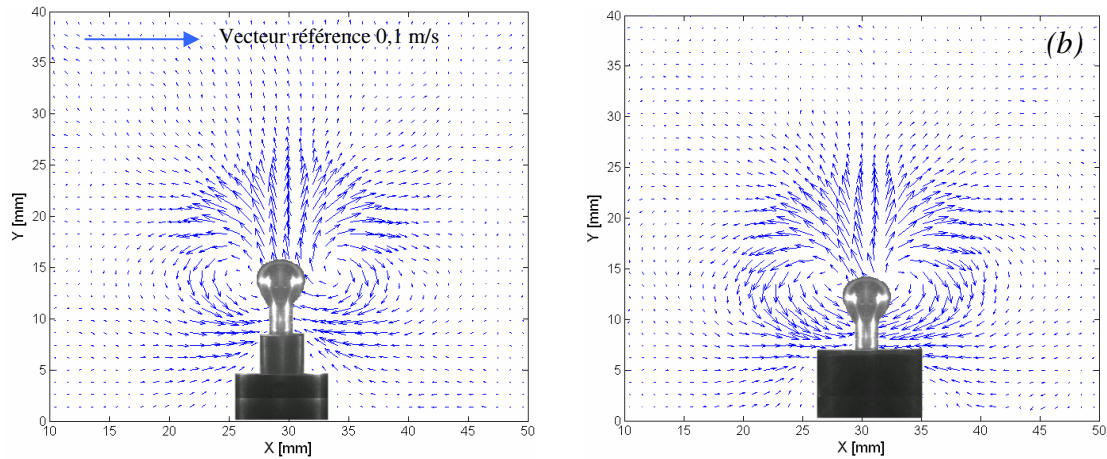


Figure II.09. Influence de la forme de l'orifice sur l'hydrodynamique à la formation de la bulle. Champ de vecteurs vitesse à la formation d'une bulle d'air dans de l'eau pour un orifice de 1 mm. $Q_g = 0,2 \times 10^{-6}$ kg/s. (a) orifice buse (b) orifice plat.

En effet, pour le cas de l'orifice buse les champs de vitesse montrent qu'il y a plus de liquide qui circule au niveau du capillaire (fig. II.09), la bulle se remplit davantage et met plus de temps pour se former avant de se détacher, elle a ainsi une taille plus importante. Pour l'orifice plat, la géométrie cause un retour de liquide plus important sur le cou de la bulle créant ainsi plus de cisaillement et favorisant ainsi sa rupture. La circulation est plus répartie dans l'espace autour de la buse ce qui réduit le cisaillement à la base de la bulle en formation. C'est donc bien l'hydrodynamique locale qui influence la taille de la bulle. Notons que cet effet est d'autant plus important que l'orifice est petit.

A partir des résultats de la formation de bulles d'air dans l'eau, dans du HV45 50%, et du HV45 65%, pour différentes tailles et formes de dispositifs d'injection, nous allons vérifier les différentes corrélations proposées par la littérature.

II.1.3.6. Comparaison globale des résultats expérimentaux aux différentes corrélations en l'absence d'écoulement extérieur.

- Corrélation de Kumar et Kuloor (1970).

On compare les résultats obtenus à la pression atmosphérique pour de l'air, de l'eau et des solutions aqueuses de viscosité plus élevées avec des orifices de 0,5 à 4 mm de diamètre comme le montre la figure II.10. Les ordres de grandeurs sont respectés et la croissance de la taille des bulles avec le débit de gaz apparaît clairement. On constate également l'influence de l'étape dynamique de détachement bien que l'on reste pour l'ensemble de ces points dans le critère de la relation de Orguz et Prosperetti (1993). Si l'on fait abstraction du décalage des courbes lié à une détermination approximative de d_{b0} , on constate effectivement que dans la plupart des cas, la correction apportée par la relation est surévaluée.

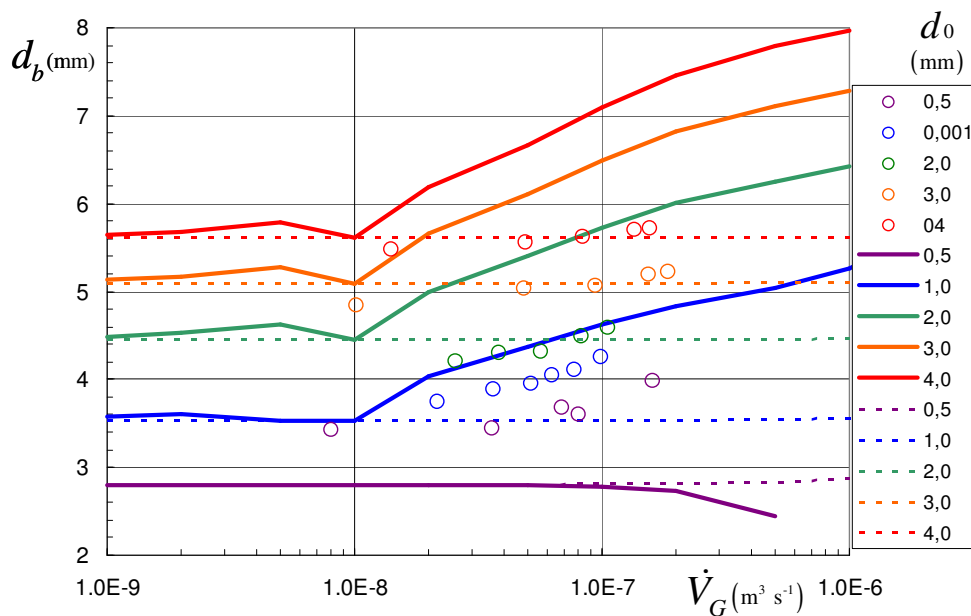


Figure II.10. Comparaison des valeurs données par la relation de Kumar et Kuloor avec les diamètres expérimentaux pour les différents diamètres de buse. Système eau-air. Les courbes en pointillé correspondent à la valeur d'équilibre et les courbes en trait plein à la valeur au détachement.

En ce qui concerne l'influence de la viscosité nous n'avons porté sur la figure que les courbes correspondant aux valeurs d'équilibre. Les corrections au détachement conduisent à des résultats aberrants et sont donc à utiliser avec précaution en ce qui concerne l'influence de la viscosité. En dehors de ce point, l'évolution du diamètre d'équilibre reflète bien les résultats expérimentaux hormis le décalage à l'origine.

- Corrélation de Gaddis et Vogelpohl (1986)

La comparaison entre les résultats expérimentaux de diamètres de bulles obtenus dans cette étude avec ceux estimés par la corrélation de Gaddis et Vogelpohl (1986) est reportée sur la figure II.11 qui montre que cette corrélation prévoit à peu près correctement le diamètre de bulle à débit nul. Par contre le terme inertiel ne rend pas compte de l'influence du débit de gaz à l'orifice. Ceci est clairement visible pour les plus petits orifices pour lesquels les vitesses sont plus importantes à débit donné. Le débit reste ici très faible et il est impossible de dire si la corrélation s'améliore pour des débits de gaz plus élevés. Le domaine exploré est donc insuffisant pour qu'il soit possible de se prononcer.

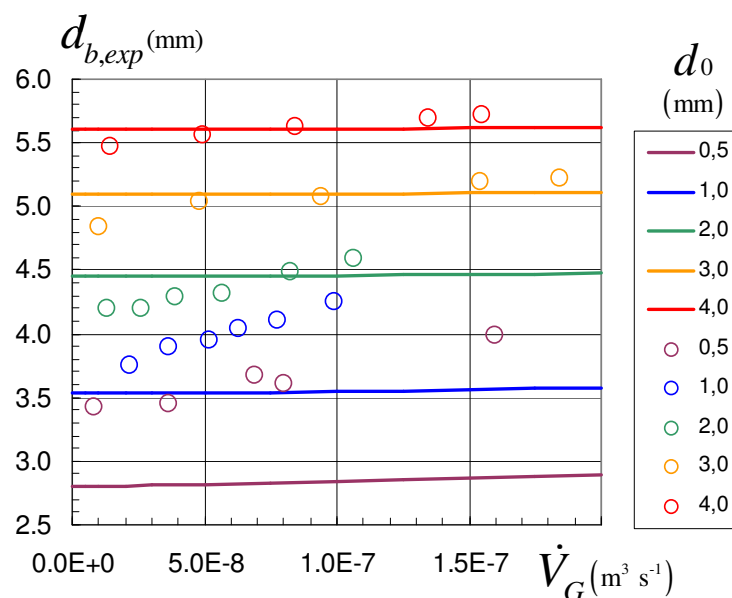


Figure II.11. Comparaison des diamètres de bulles obtenus expérimentalement et à partir de la relation de Gaddis et Vogelpohl pour les différents diamètres de buses étudiées. Système eau-air.

On constate sur la figure II.12. que le terme de frottement visqueux est assez correctement pris en compte par le rapport adimensionnel Fr_0/Ga_0 bien que l'exposant 0,6 sur ce terme semble trop important. Les résultats sont insuffisants pour qu'il soit possible de présenter avec précision une valeur des exposants et coefficients caractéristiques. La tendance est toutefois correctement représentée par la corrélation de Gaddis et Vogelpohl.

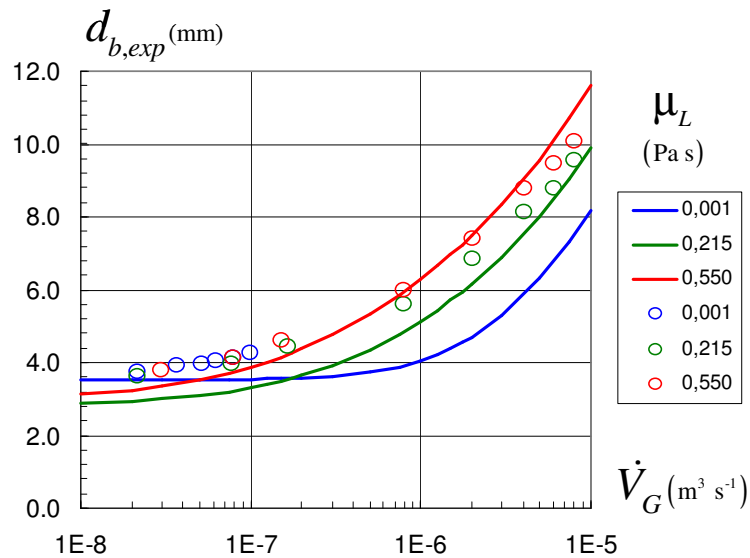


Figure II.12. Comparaison de la relation de Gaddis et Vogelpohl aux diamètres expérimentaux extrapolés à débit nul pour des solutions aqueuses de viscosités différentes. $d_0 = 1$ mm.

Sur l'ensemble des points expérimentaux les écarts relatifs de la prédiction des diamètres de bulles se résument comme suit :

- de 8,07 % en moyenne
- 42 % des points sont représentés à mieux de 5 % près,
- 67 % à mieux de 10 %
- l'écart maximal est de 28 %.

- Corrélation de Jamialhamadi et al. (2001).

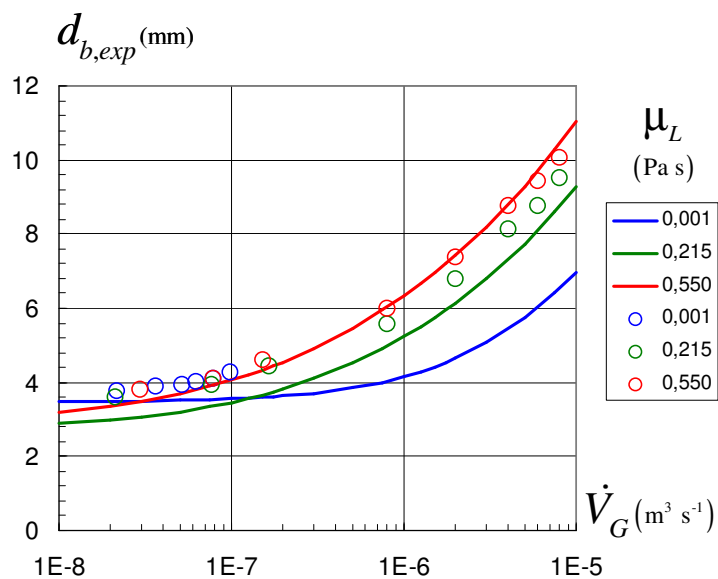


Figure II.13. Comparaison de la relation (II.07) aux diamètres expérimentaux pour des solutions aqueuses de viscosités différentes. $d_0 = 1$ mm.

La précision de cette corrélation est assez similaire à celle de Vogelpohl comme le montre la figure II.13. Les comportements à grands débits de gaz sont toutefois un peu mieux pris en compte par l'exposant 0,5 sur le terme Fr_0/Ga_0 . Les volumes de bulle prédits sont ainsi plus faibles et il semble que l'exposant 0,5 prenne empiriquement en compte les phénomènes de couplage et notamment les phénomènes d'aspiration de sillage par les bulles successives. Cependant les prédictions à faible débit et notamment pour les viscosités basses restent défaillantes.

Sur l'ensemble des points expérimentaux les écarts relatifs de la prédiction sont:

- de 8,13 % en moyenne
- 28 % des points sont représentés à mieux de 5 % près,
- 72 % à mieux de 10 %
- l'écart maximal est de 25 %.

La précision est donc tout à fait comparable à celui de la corrélation précédente.

- Le cas des régimes visqueux

En règle générale, lorsque la viscosité est suffisamment importante et que l'on représente le volume des bulles générées en fonction du nombre de Froude, on s'aperçoit, lors d'une représentation en loi puissance, que l'exposant dépasse rarement 0,375, ce qui correspond à l'exposant caractéristique du régime dominé par la viscosité.

Ainsi, si l'on revient sur les résultats concernant les solutions visqueuses, il est intéressant de les représenter conformément à la corrélation de Jamialahmadi *et al.* (1999) (II.07) que nous pouvons qualifier comme la mieux représentative de l'ensemble des résultats. Ainsi, nous vérifions sur ces résultats que le terme inertiel est tel que :

$$\left(\frac{db}{d_0}\right)^3 = 2,147 Fr^{0,51} \quad (II.13)$$

L'optimisation des résultats expérimentaux nous conduit alors à sur la relation empirique :

$$\left(\frac{db}{d_0}\right)^3 = a + b Fr^{0,36} \quad (II.14)$$

fluide	μ_L (Pa s)	Ga_0	a	b
HV 50%	0,215	0,2252	35,84	37,67
HV 65%	0,55	0,03575	28,09	35,26

Tableau II.02. Valeurs optimisées de a et b de la relation pour les résultats de la figure II.14.

On constate que la représentation proposée est excellente en ce sens qu'elle représente les résultats expérimentaux avec une précision moyenne supérieure à la reproductivité expérimentale et qu'elle fournit une ordonnée à l'origine assez conforme aux attentes. Pour les deux fluides, le nombre de Bond est sensiblement de 0,215.

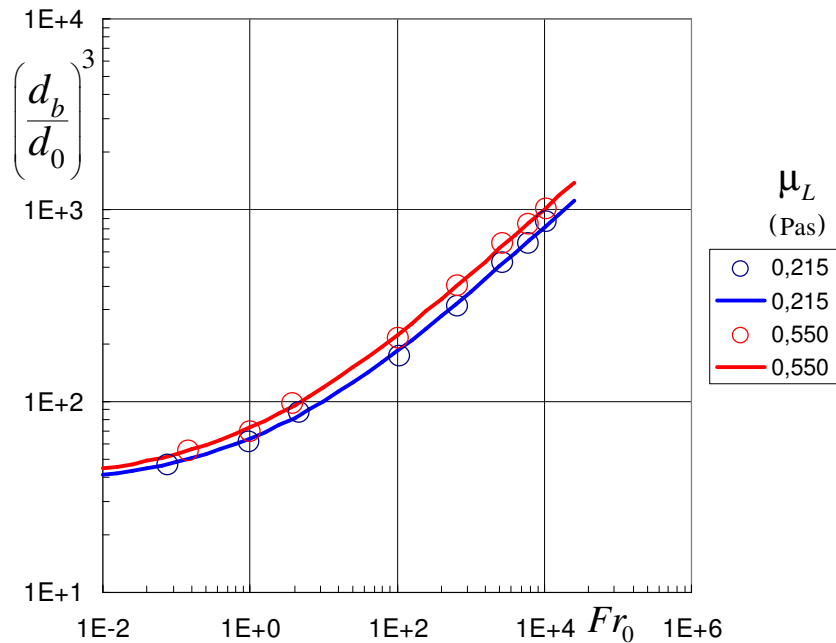


Figure II.14. Résultats relatifs aux solutions de HV pour $d_0 = 1$ mm. Représentation sous la forme de la relation (II.14).

II.1.3.7. Corrélations de l'ensemble des résultats obtenus

Dans le but de comparer ultérieurement (Chapitre III) les résultats obtenus lors de la formation des gouttes et de généraliser le système bulle/goutte, nous allons tenter d'établir une relation de prédiction du volume des bulles à l'aide d'une analyse adimensionnelle

simple qui tient compte des conditions opératoires ainsi que des propriétés des fluides en présence. En l'absence de champs de cisaillement, on suppose que les seules forces agissant sur la bulle sont :

- la poussée d'Archimède qui tend à l'ascension de la bulle : $P_A = (\rho_l - \rho_g).g.V$,
- la force de capillarité qui retient la bulle au niveau de l'orifice : $F_c = \sigma.\pi.d_0.\cos\theta$.

Le bilan de forces s'écrit donc : $(\rho_l - \rho_g).g.V = \sigma.\pi.d_0.\cos\theta$ (II.15)

Au moment du détachement, l'angle de mouillage θ est nul et on retrouve :

$$(\rho_l - \rho_g).g.V = \sigma.\pi.d_0. \quad (II.16)$$

En exprimant le volume de la bulle par $V = \frac{4}{3}\pi r^3$ l'équation devient : $\frac{d}{d_0} = \left(\frac{6\sigma}{d_{int}^2 (\rho_l - \rho_g) g} \right)^{1/3}$

L'équation s'écrit alors : $\frac{d}{d_0} = \left(\frac{6}{Bo} \right)^{1/3} = 1,82 Bo^{-1/3}$ (II.17)

On peut définir un nombre adimensionnel de bulle N_B tel que : $N_B = \frac{d}{d_0} Bo^{1/3}$.

Dans le cas idéal, ce nombre doit être constant et égal à 1,82. La figure II.15. représente, pour l'ensemble des résultats, le nombre de bulle N_B en fonction du nombre de Reynolds.

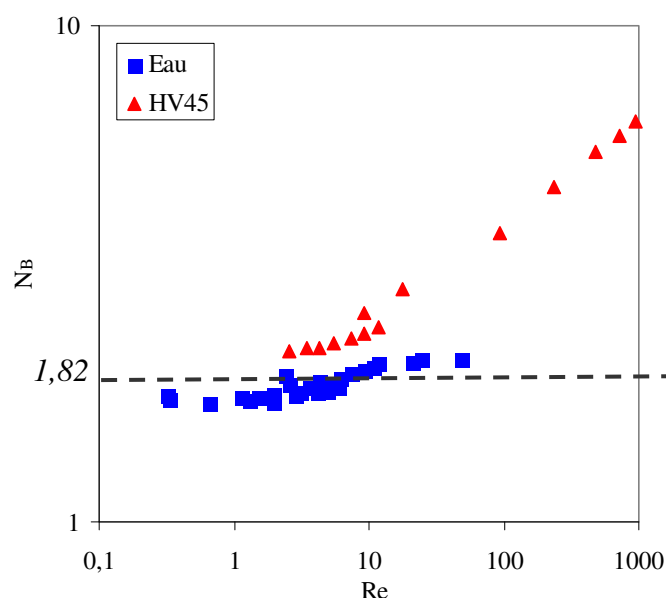


Figure II.15. Evolution du nombre de bulle N_B en fonction du nombre de Reynolds.

La figure II.15 montre que ce modèle ne permet pas d'évaluer correctement la formation des bulles. En effet, les séries effectuées dans les fluides visqueux sont mal corrélées. Pour tenir compte de cet écart entre l'expérience et le modèle statique, on introduit une fonction d'écart Ψ comme suit :

$$N_B = \frac{d}{d_{\text{int}}} Bo^{\frac{1}{3}} = 1,82 + \Psi \quad (II.18)$$

Cette fonction d'écart doit tenir compte des effets de la viscosité du liquide, de la tension superficielle et de l'inertie du système, d'où l'utilisation du nombre adimensionnel de Weber, de Reynolds et du rapport des viscosités entre les deux phases :

$$\frac{N_B}{N_{B0}} = 1 + We^a Re^b \left(\frac{\mu_c}{\mu_d} \right)^c \quad (II.19)$$

La figure II.16 représente le diagramme de parité entre les valeurs expérimentales de N_B et celles estimées à partir de l'équation II.19 ($a = 0,67$; $b = -0,94$; $c = 0,6$; $N_{B0} = 1,82$) et les résultats expérimentaux. L'erreur moyenne relative sur cette corrélation est inférieure à 2%.

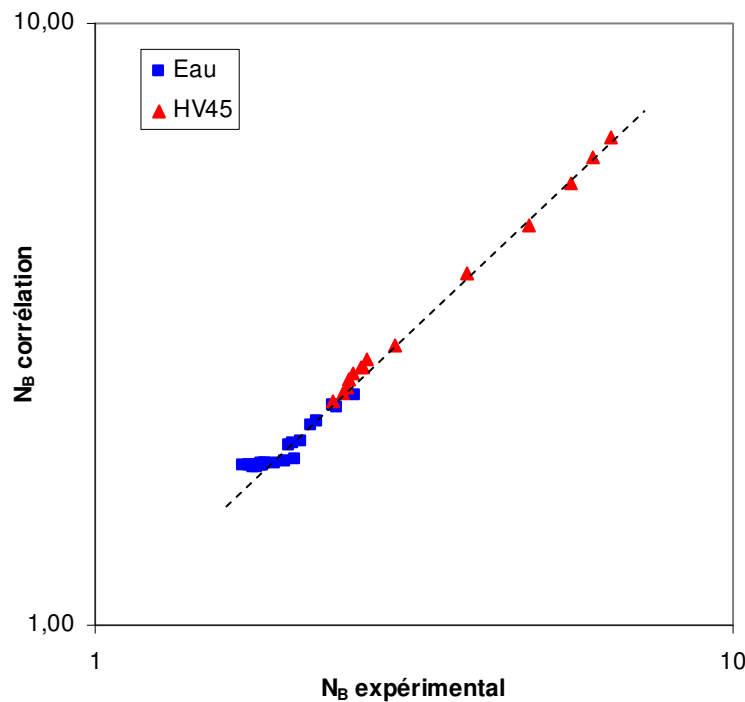


Figure II.16. Diagramme de parité entre les points expérimentaux et la corrélation (II.19).

Ce modèle représente correctement les résultats de la formation de bulle. Il convient de le tester dans le chapitre III pour la formation de gouttes afin d'établir, si possible, une corrélation globale.

II.1.4. Conclusion

Cette étude a permis la visualisation, par caméra rapide et PIV, de la formation de bulles dans un liquide stagnant. Le mécanisme de formation a pu être détaillé et les différents comportements hydrodynamiques selon les géométries des buses ont été maîtrisés.

De plus, nous avons pu corrélérer, de manière satisfaisante, les résultats obtenus concernant la génération de bulles à un orifice selon la relation :

$$\frac{N_B}{N_{B,0}} = 1 + \frac{We^{0,67}}{Re^{0,94}} \left(\frac{\mu_c}{\mu_d} \right)^{0,6} \quad (II.20)$$
$$Re \in [0,032-950] \quad We \in [9,2 \times 10^{-8}-5,7]$$
$$\mu_c / \mu_d \in [0,01-25000]$$

Ces résultats restent cependant limités aux domaines de vitesses de génération à l'orifice et de viscosités étudiés.

Un certain nombre de points restent à élucider :

- o Le diamètre de bulle généré en régime de quasi équilibre pose encore question. Il s'avère délicat à corrélérer, notamment pour les petits orifices. Une étude statistique expérimentale devrait être effectuée (répétition de points expérimentaux à très petits débits) pour qu'il soit possible d'estimer la fiabilité et la précision des corrélations. Cette étude peut être conduite en partie numériquement ;
- o le problème du mouillage à faible débit est également loin d'être résolu ;
- o l'influence effective de la viscosité reste à préciser. Les meilleures données actuelles sont celles numériques par résolution de l'équation de Stokes et non de Navier-Stokes. Quelle est l'influence exacte du couplage des forces de viscosité et d'inertie?
- o le passage au régime de jet reste à préciser ;
- o la limite du passage au régime d'aspiration par le sillage antérieur reste à préciser. Une étude de la vitesse ascensionnelle des bulles en train vertical devrait permettre de modifier le coefficient de traînée.

Chapitre II

II.2. Formation de bulles sous un écoulement orthogonal

Après nous être intéressés à la formation de bulles dans un liquide au repos, nous allons axer cette partie sur la formation de bulles sous un écoulement orthogonal extérieur. Après avoir brièvement exposé les différents travaux sur le domaine, nous présenterons les résultats expérimentaux pour le système eau/air.

II.2.1. Revue bibliographique

Contrairement à la formation de bulles étudiée précédemment dans un liquide au repos, peu d'études, à ce jour, portent sur l'influence d'un cisaillement orthogonal.

Selon Stone *et al.* (1994), sous l'effet du cisaillement simple et pour de faibles nombres de Reynolds, la bulle se déforme et s'oriente jusqu'à atteindre une géométrie stable et régulière ou se diviser en plusieurs petites bulles. La forme stable que prend la bulle et son orientation dépendent du rapport de viscosité entre la bulle et le fluide, et du nombre capillaire, rapport entre la contrainte de cisaillement qui déforme la bulle et la tension de surface qui tend à garder la bulle sous forme sphérique. Il existe un nombre capillaire critique qui augmente par diminution du rapport de viscosité et à partir duquel la bulle ne peut plus garder sa forme stable et se divise en plusieurs bulles.

Rallison *et al.* (1984) ont observé que, pour les champs de cisaillement simple, l'angle de contact à la buse varie selon le nombre capillaire. Pour de faibles déformations de la bulle ($Ca \ll 1$), l'angle diminue par augmentation du Capillaire. Ils ont proposé la première correction de l'orientation de la bulle pour $Ca \ll 1$ et $\lambda \ll 1$: $\theta = \frac{\pi}{4} - 0,6 Ca$.

Pour des nombres capillaires importants, Hinch et Acrivos (1980) ont proposé la relation suivante : $\theta = \tan^{-1} (0,359 Ca^{3/4})$.

Favelukis *et al.* (1999) ont étudié la croissance et la déformation de bulle dans des polymères de haute viscosité. Ils ont souligné l'existence d'un cisaillement critique à partir duquel la croissance de bulle est amplifiée par le cisaillement.

Tan *et al.* (2000) ont également étudié la formation de bulles sous un champ de cisaillement, et ont proposé un modèle basé sur les pressions subies par l'interface gaz-liquide.

Rust et Manga (2002) se sont intéressés à l'étude de la déformation des bulles d'air dans une solution de sirop de maïs sous un champ de cisaillement simple induit par un dispositif de deux bandes parallèles entre lesquelles est placée la bulle à cisailier. L'expérience a été menée pour des bulles dont le diamètre varie de 0,88 à 2,55 mm et sous des vitesses de cisaillement comprises entre 0,0092 et 1,77 s⁻¹.

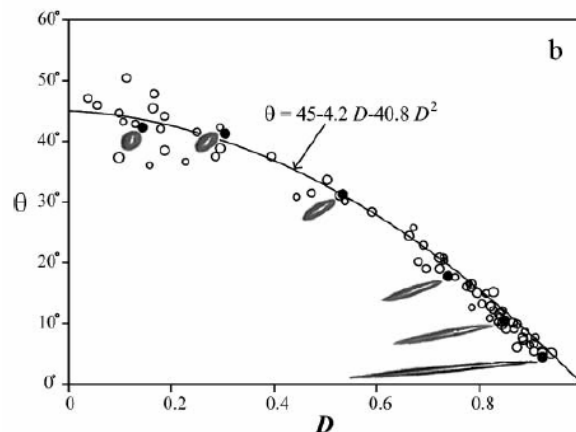


Figure II.17. Orientation de la bulle en fonction du paramètre de déformation sous un champ de cisaillement simple (Rust et Manga, 2002)

Loubière *et al.* (2003) ont étudié la formation de bulles à un orifice flexible avec un écoulement latéral. Ils ont observé un aplatissement des bulles lors de leur formation. Le volume ainsi que l'angle d'inclinaison ont été mesurés. L'angle apparaît constant lors de la formation et il ne dépend que de la vitesse de la phase liquide tandis que le volume varie linéairement. Ils ont conclu que les tailles de bulles formées étaient nettement plus petites que lors de leur formation dans un liquide au repos et que la force prédominante n'est pas la poussée mais plutôt la traînée induite par l'écoulement orthogonal. Duhar et Colin (2006) ont eux proposé une corrélation basée sur le nombre de Capillaire.

II.2.2. Résultats expérimentaux

Dans cette partie nous nous intéressons à la formation de bulle uniquement dans de l'eau sous l'action d'un écoulement local. Cet écoulement est engendré par un disque en rotation dans la cellule de cisaillement (cf. figure I.04). Le volume des bulles ainsi que leur angle de déflexion à l'arrachement sont mesurés dans différentes conditions de débits de phase gazeuse et de vitesses de rotations.

II.2.2.1 Mesure de la vitesse de l'écoulement orthogonale par PIV

Afin de caractériser l'écoulement dans la cellule de cisaillement et de pouvoir évaluer la vitesse de cisaillement, on entreprend une étude par PIV, comme le montre la figure II.18.

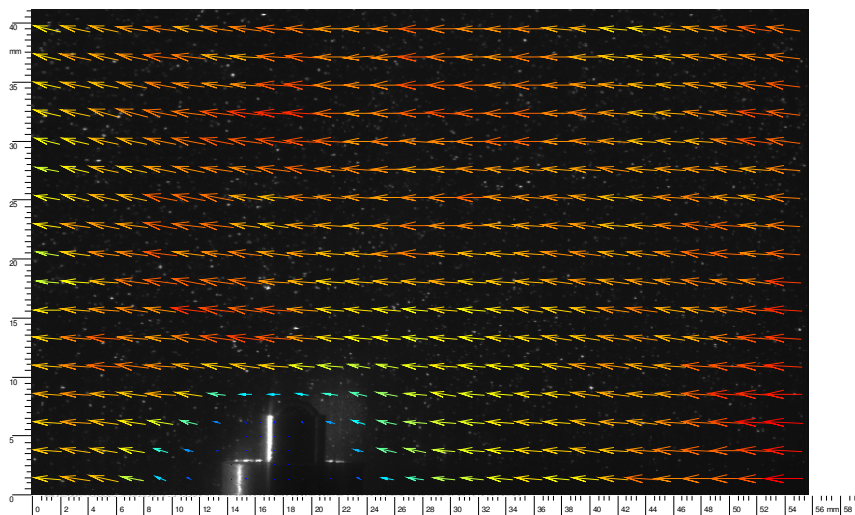


Figure II.18. Champs de vecteurs vitesses obtenu par PIV dans la cellule de cisaillement contenant de l'eau. $N=50$ tr/min. $D_0 = 4$ mm.

Les champs de vecteurs vitesses sont mesurés au voisinage de l'orifice pour différentes vitesses de rotation du moteur d'agitation. La vitesse minimale du moteur est de 50 tours par minute, la vitesse maximale utilisée étant de 200 tours/minute. Toutes les vitesses de rotation du moteur ont été testées par PIV et la courbe d'étalonnage est portée en annexe A1. Pour chaque vitesse de rotation, la vitesse de l'écoulement au voisinage de la buse a été moyennée à partir de 10 champs de vitesses différents. Soit au total plus de 200 champs de vitesses mesurés pour connaître la vitesse réelle de l'écoulement orthogonal.

II.2.2.2. Visualisation par caméra rapide

A l'aide de la caméra rapide, nous avons suivi l'évolution de la bulle lors de son détachement pour différentes vitesses d'écoulement orthogonale. La figure II.19. représente cette évolution.

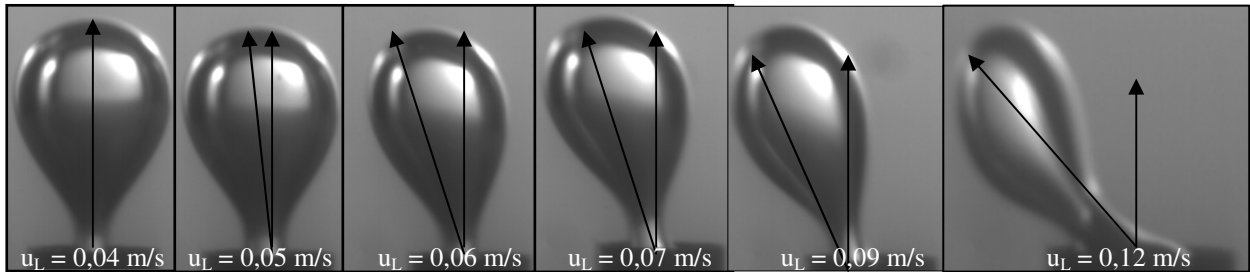


Figure II.19. Images par caméra rapide de formation d'une bulle sous un champ de cisaillement.

On observe que la bulle est entraînée par le mouvement de l'écoulement et qu'elle a tendance à s'incliner dans la direction du cisaillement. La bulle marque un angle d'inclinaison avec l'axe du capillaire, cet angle est d'autant plus important que la vitesse de cisaillement augmente. Les angles sont mesurés pour chaque condition opératoire (diamètre de l'orifice, vitesse de l'écoulement orthogonale et vitesse de la phase gazeuse) et serviront de base pour l'établissement d'une corrélation. D'autres séquences sont consignées en annexe A1.

II.2.2.3. Mesures des champs de vitesses par PIV

Les mesures de champs de vitesses autour d'une bulle en formation dans de l'eau stagnante puis autour d'une bulle soumise à un champ de cisaillement ont permis de remarquer que les champs de vitesse avaient la même allure mais pas la même direction.

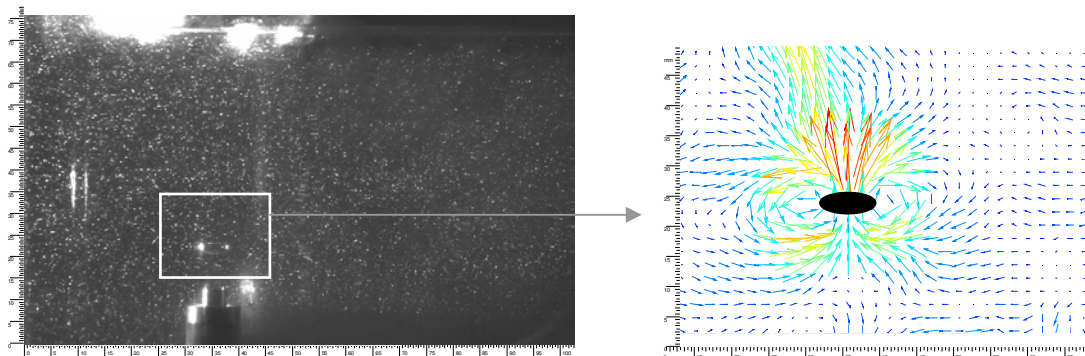


Figure II.20. Image et champ de vitesse d'une bulle se détachant dans de l'eau en absence de champ de cisaillement à partir d'un orifice de 4mm.

On observe ainsi l'existence d'un front en amont de la bulle, d'un sillage en aval et de boucles de recirculation latérales (cf. §II.3). Si dans le cas de l'eau stagnante, l'ascension est verticale comme le montre la figure II.20, dans le cas d'un champ de cisaillement donné, l'ascension n'est plus verticale mais déviée comme le montre la figure II.21.

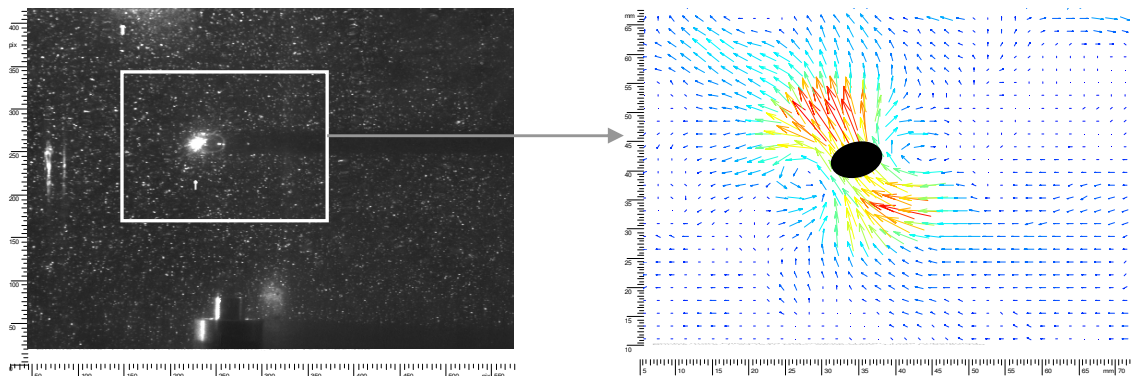


Figure II.21. Image et champ de vitesse d'une bulle se détachant dans de l'eau en présence d'un champ de cisaillement à partir d'un orifice de 4mm (cisaillement de 1 s^{-1}).

II.2.2.4. Evolution du volume de la bulle en fonction de l'écoulement latéral

Les diamètres de bulles au détachement ont été mesurés avec le système eau-air en fonction du diamètre de buse, pour différentes vitesses de l'écoulement orthogonal et différents débits de gaz. Le domaine couvert, en terme de référence au diamètre d'orifice est:

$$Bo_0 \in [0,033; 2,165] \quad Fr_0 \in [7,010^{-5}; 4,5] \quad Ga_0 \in [1,210^3; 6,310^5]$$

$$Fr_{Lb} \in [0; 0,48] \quad \frac{d_b}{d_0} \in [1; 6,9]$$

Les résultats sont portés sur la figure (II.22). On constate un accroissement relatif de la taille des bulles avec le diamètre de l'orifice, toutes choses égales par ailleurs et une décroissance progressive avec la vitesse u_L du liquide, orthogonale à la direction de génération des bulles.

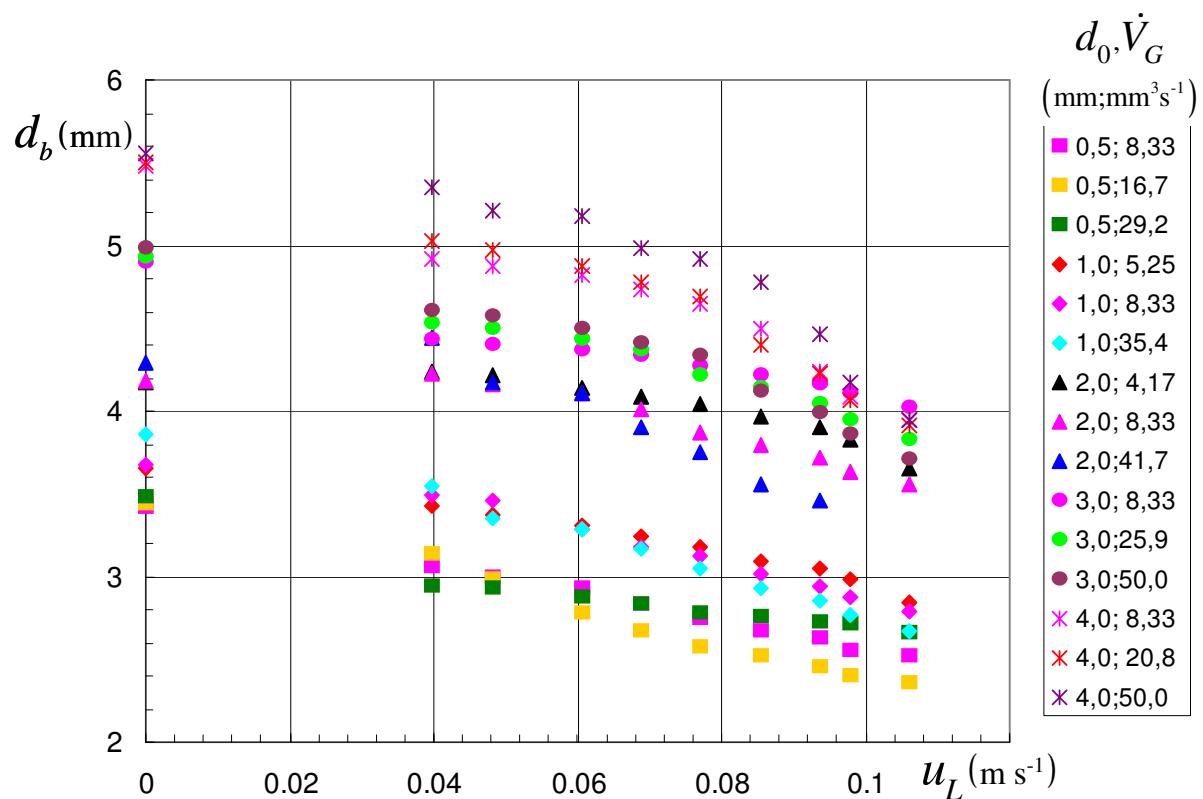


Figure II.22. Evolution du diamètre de bulle en fonction de la vitesse du liquide pour différents diamètres de buses et différents débits de gaz. Système eau/air standard.

II.2.2.5. Bilan de forces spécifique au domaine exploré.

Les résultats utilisés ici sont obtenus avec le système eau-air en régime de quasi équilibre au sens du modèle de Kumar et Kuloor. De plus, dans le cadre du modèle de Jamialahmadi, le terme capillaire est très largement prépondérant. Ainsi, le régime expérimenté est dominé par la force de poussée, la force capillaire et la traînée extérieure. La force de portance reste elle-même négligeable ; Une bulle soumise à un écoulement orthogonal à sa direction de formation est représentée sur la figure II.03. Les forces doivent être projetées selon les directions horizontale et verticale en admettant l'existence d'un plan de symétrie selon l'axe z . Il est *a priori* possible de retrouver l'ensemble des forces dans cette configuration. L'angle de déflexion β est représenté en fonction d'un nombre de capillarité à partir de la vitesse

d'écoulement moyenne imposée au liquide et mesurée par PIV : $Ca_u = \frac{\mu_L u_L}{\sigma}$

Par ailleurs, dans le cadre du modèle de Kumar et Kuloor, la relation (II.02) peut s'appliquer. Il s'avère alors que les deux derniers termes sont de plusieurs ordres de grandeurs inférieurs au premier. Il est ainsi raisonnable de penser que la configuration d'inclinaison de la bulle est liée aux forces capillaires, de poussée et de traînée imposée par la vitesse extérieure orthogonale à la direction de génération des bulles. Si on représente alors l'angle d'inclinaison en fonction du nombre capillaire, on obtient la figure II.23. qui traduit correctement cette évolution.

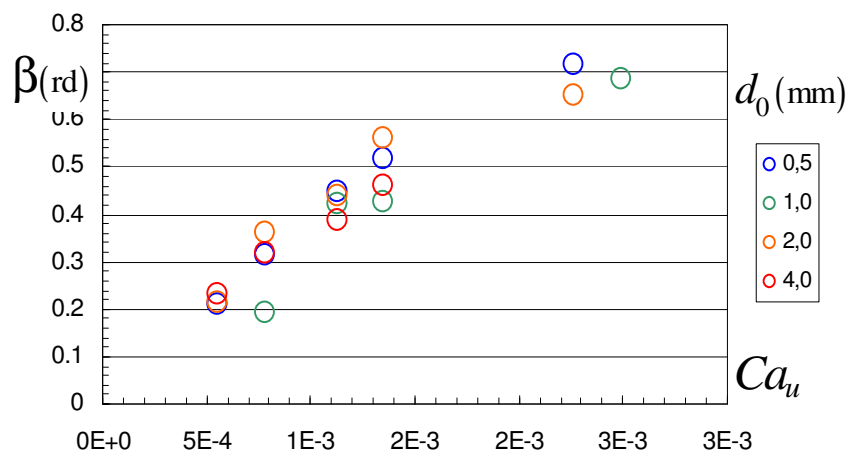


Figure II.23. Représentation de l'angle de déflexion en fonction du nombre de capillarité.

Ce bon accord n'est qu'apparent et reflète en fait uniquement l'évolution de β avec la vitesse de sollicitation u_L . Effectivement, l'utilisation du nombre de capillarité n'est légitime qu'en écoulement stockesien ou de transition vers le stockesien. Si l'on calcule ici un nombre de Reynolds de bulle tel que:

$$Re_{Lb} = \frac{\rho_L u_{Lb} d_b}{\mu_L} \quad (II.21)$$

Il s'avère que dans les conditions expérimentales $u_{Lb} = u_L$ et $Re_{LB} = Re_b \in [121; 558]$. Nous sommes donc très loin du régime de Stokes et pratiquement en régime de bulle déformée, soit dans le domaine où l'on ne maîtrise guère l'évolution du coefficient de traînée. La représentation proposée est donc totalement inadéquate.

On constate une bien meilleure corrélation de l'angle de déflexion en fonction de la vitesse u_L que de la vitesse de cisaillement, ce qui tend à prouver le peu d'importance de la force de portance, tout au moins pour le domaine étudié. Toutefois, cette observation ne fait pas

beaucoup progresser. Compte tenu des observations faites, les forces qui conditionnent le comportement de la bulle sont :

$$\begin{cases} F_A = \rho_L g V_b j \\ F_\sigma = -k_\sigma \pi d_0 \sigma (\sin \beta i + \cos \beta j) \\ T = \frac{\pi}{4} d_b^2 C_T \frac{1}{2} \rho_L u_L^2 i \end{cases} \quad (II.22)$$

La complexité du problème à résoudre vient du fait que le facteur k_σ et le coefficient de traînée C_T sont liées à u_0 , u_L et d_0 pour un système gaz-liquide donné.

En quasi équilibre à chaque instant, le rapport des composantes verticale et horizontale de la force résultante est fonction de l'angle de déflexion β soit:

$$\tan \beta = \frac{\frac{\pi}{4} d_b^2 C_T \frac{1}{2} \rho_L u_L^2 - k_\sigma \pi d_0 \sigma \sin \beta}{\Delta \rho g V_b - k_\sigma \pi d_0 \sigma \cos \beta} \quad (II.23)$$

Si l'on suppose que l'angle mesuré expérimentalement est très voisin de l'angle à la rupture, le numérateur et le dénominateur de cette expression doivent simultanément tendre vers 0 avec $\tan \beta$ comme rapport des deux limites. Nous devons ainsi avoir, à la rupture:

$$\begin{cases} k_\sigma \pi d_0 \sigma (\sin \beta) = \frac{\pi}{4} d_b^2 C_T \frac{1}{2} \rho_L u_L^2 \\ k_\sigma \pi d_0 \sigma (\cos \beta) = \rho_L g V_b \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} \tan \beta = \frac{3}{4} \frac{C_T u_L^2}{g d_b} \\ k_\sigma = \frac{1}{6} \frac{\rho_L g d_b^3}{d_0 \sigma (\cos \beta)} \end{cases} \quad (II.24)$$

Les valeurs de C_T et k_σ correspondant aux résultats sont portées sur la figure II.24. Globalement C_T et k_σ décroissent lorsque la vitesse du liquide augmente. On constate également une influence du diamètre de l'orifice ainsi que du diamètre de bulle généré puisque le débit de gaz est maintenu constant. A priori, k_σ est fonction des trois forces en présence, traduites par les rapports adimensionnels Bo_0 et Fr_{Lb} tel que :

$$Fr_{Lb} = \frac{u_L^2}{g d_b} \quad (II.25)$$

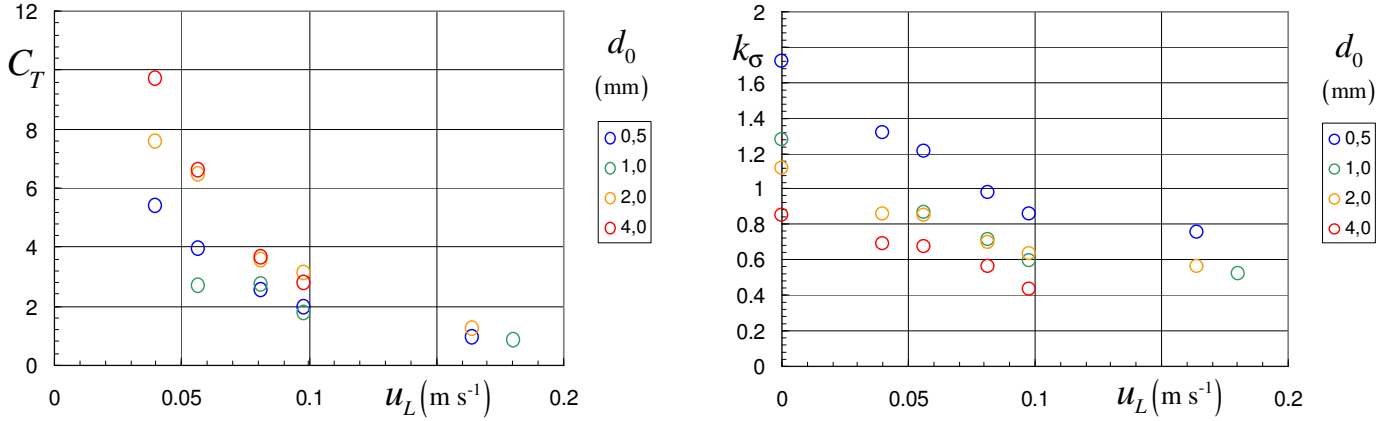


Figure II.24. Valeur du coefficient de traînée et du coefficient k_σ en fonction de la vitesse du liquide pour les différents orifices. Le système est eau-air standard.

En ce qui concerne le coefficient de traînée, si les bulles restaient sensiblement sphériques, il serait raisonnable de supposer que, compte tenu de la valeur de Re_{Lb} (121-558) défini par la relation (II.21), le nombre de Bond n'intervient pas sur sa valeur. En revanche si on admet que la bulle est susceptible d'osciller compte tenu de son élongation, Fr_{Lb} peut rendre compte de la déformation de la bulle et le nombre de Bond doit être introduit puisqu'il joue un rôle stabilisant. Fr_{Lb} étant fonction de Re_{Lb} et Ga_b , Nous pouvons donc rechercher *a priori* des relations telles que:

$$\begin{cases} C_T = C_T(Re_{Lb}, Fr_{Lb}, Bo_b) = C_T(Re_{Lb}, Ga_b, Bo_b) \\ k_\sigma = k_\sigma(Bo_0, Fr_{Lb}, Re_{Lb}) \end{cases} \quad (II.26)$$

II.2.2.6. Evolution du coefficient de traînée.

Pour les expériences réalisées, un seul liquide et un seul débit ont été utilisés. Ainsi, les grandeurs principales de corrélation restent u_L et d_b . Nous choisissons d_b plutôt que d_0 qui n'est qu'une représentation indirecte des forces en présence. Compte tenu du peu d'information disponible, nous ne pouvons pas compter sur la statistique pour lisser les résultats et en particulier la relation entre d_b et d_0 .

Bien entendu, dans la réalité toutes ces grandeurs sont couplées mais il ne nous est guère possible de profiter de ce couplage compte tenu de la taille de l'échantillon. Une relation du type: $C_T = u_L^m d_b^n$ a été optimisée sur les résultats expérimentaux.

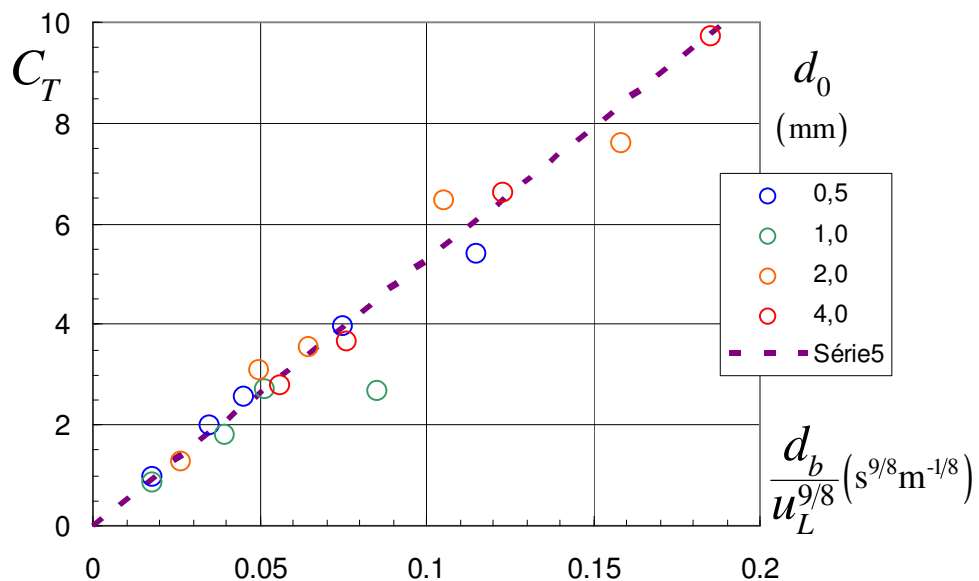


Figure II.25. Valeur du coefficient de traînée en fonction de la vitesse du liquide pour les différents orifices. Système eau-air standard.

La représentation est portée sur la figure II.25 où l'on constate un accord avec un seuil de confiance de 95% sous la forme (unités SI) :

$$C_T = (53 \pm 10) \frac{d_b}{u_L^{9/8}} \quad (II.27)$$

La relation (II.25) peut être explicitée en fonction des nombres de Bond et de Froude pour l'eau et l'air standard. Il vient alors pour : $Fr_{LB} \leq 1,27$ $Bo_b \in [0,73; 3,28]$

$$C_T = (1,08 \pm 0,15) \frac{Bo_b^{7/32}}{Fr_{LB}^{9/16}} \quad (II.28)$$

II.2.2.7. Corrélation de l'angle de déflexion.

Les relations (II.24) et (II.28) conduisent à :

$$\begin{cases} \tan \beta = \frac{3}{4} \frac{C_T u_L^2}{g d_b} \\ C_T \approx \frac{d_b}{u_L^{9/8}} \end{cases} \Rightarrow \tan \beta \approx u_L^{7/8} \quad (II.29)$$

Ainsi l'angle de déflexion β ne serait plus fonction de la taille de la bulle. Compte tenu de sa formulation, $\tan\beta$ dépend du nombre de Froude. Si l'on remplace simplement C_T par la relation (II.28) dans l'expression (II.29) de $\tan\beta$, on obtient :

$$\tan\beta = (0,81 \pm 0,11) \left(Fr_{Lb} \sqrt{Bo_b} \right)^{7/16} \quad (II.30)$$

On obtient la représentation graphique de la comparaison entre les expériences et la corrélation par la figure II.26.

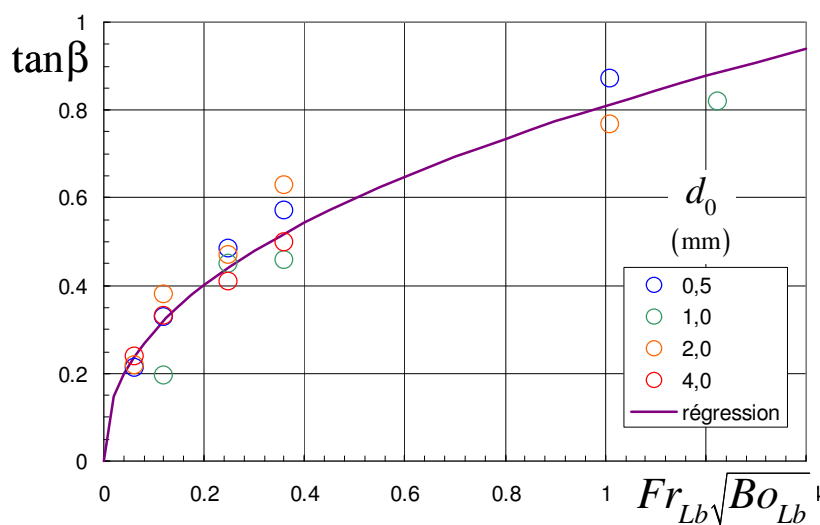


Figure II.26. Evolution de la tangente de l'angle de déflexion avec la vitesse u_L .

II.2.2.8. Corrélation du coefficient des forces capillaires.

Le coefficient k_σ (relation II.24) est en fait une fonction qui prend en compte la déformation de la bulle et l'existence du col pour calibrer la force capillaire. On remarquera que selon la relation :

$$\lim_{u_L \rightarrow 0} k_\sigma = f(Bo_0) \quad (II.31)$$

fonction qui reste voisine de l'unité. On constate qu'il existe une certaine confusion sur la valeur de $f(Bo_0)$ lorsque Bo_0 est très faible. Un certain consensus apparaît pour $Bo_0 \in [0,5;2]$. Pour s'affranchir de cette incertitude, il semble raisonnable de rechercher une fonction d'écart sous la forme :

$$\frac{k_\sigma}{k_{\sigma(u_L=0)}} = \frac{k_\sigma}{f(Bo_0)} = g(Fr_{Lb}, Re_{Lb}) \quad (II.32)$$

Dans la pratique, avec nos résultats expérimentaux (figure II.27), il est par exemple possible d'écrire :

$$\frac{k_{\sigma}}{k_{\sigma(u_L=0)}} = \frac{k_{\sigma}}{f(Bo_0)} = 0,44 + 0,56 \exp(-6,94 Fr_{Lb}) \quad (II.33)$$

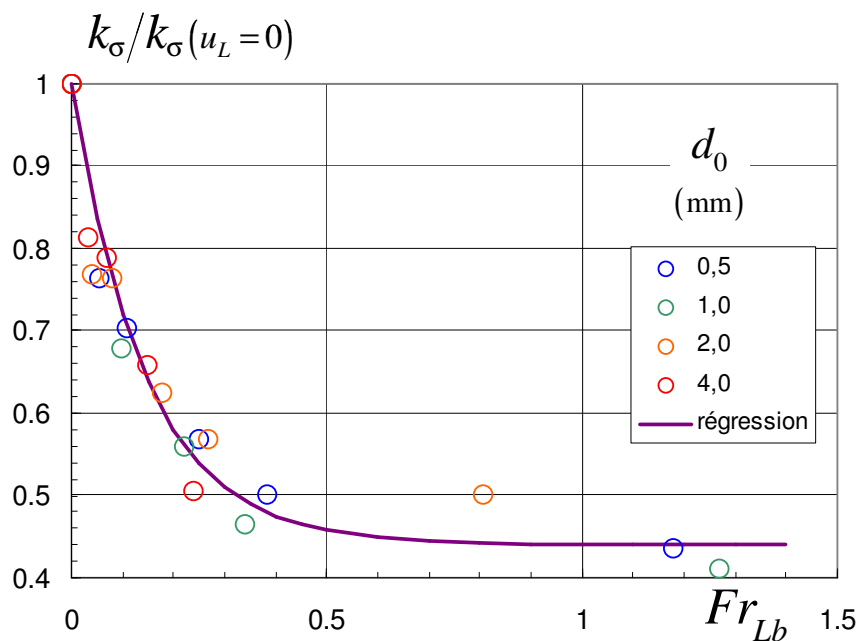


Figure II.27. Evolution de la fonction de force capillaire en fonction du nombre de Froude de bulle.

II.2.2.9. Corrélation des diamètres de bulle au détachement.

La relation (II.24) permet d'écrire:

$$k_{\sigma} \pi d_0 \sigma (\cos \beta) = \rho_L g V_b \Rightarrow \frac{V_b}{V_b(u_L=0)} = \frac{k_{\sigma}}{k_{\sigma(u_L=0)}} \cos \beta = \frac{k_{\sigma} / k_{\sigma(u_L=0)}}{\sqrt{1 + \tan^2 \beta}} \quad (II.34)$$

$$\frac{d_b}{d_{b(u_L=0)}} = \left[\frac{k_{\sigma} / k_{\sigma(u_L=0)}}{\sqrt{1 + \tan^2 \beta}} \right]^{1/3} \quad (II.35)$$

On obtient donc la relation :

La relation II.35 permet d'évaluer le diamètre de bulle réduit. On constate un excellent accord sur la figure II.28 où les valeurs calculées (courbes en pointillés) sont comparées aux résultats expérimentaux. Cette représentation permet de vérifier la cohérence interne de l'analyse. Les valeurs initiales $d_{b0}(u_L=0)$ nécessaires pour effectuer le calcul correspondent ici aux valeurs

expérimentales du chapitre II.1 bien que dans la réalité, elles devraient être évaluées à partir d'une corrélation. L'imprécision de cette corrélation s'ajouterait alors à l'imprécision de la relation (II.35)

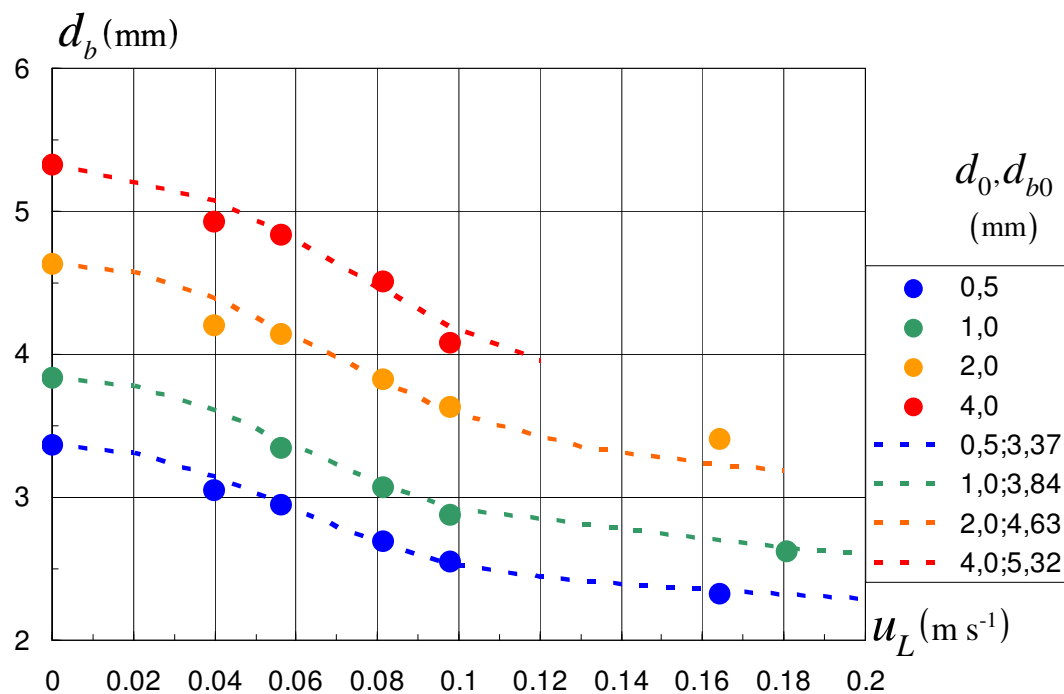


Figure II.28. Comparaison entre les diamètres de bulles réduits obtenues expérimentalement et estimés à partir de la relation II.35.

II.2.2.10. Diamètres de bulle au détachement. Corrélation des résultats.

A partir des relations (II.30), (II.33) et (II.35) suivante :

$$\tan \beta = (0,81 \pm 0,11) (Fr_{Lb} \sqrt{Bo_b})^{7/16}$$

$$\frac{k_\sigma}{k_{\sigma(u_L=0)}} = \frac{k_\sigma}{f(Bo_0)} = 0,44 + 0,56 \exp(-6,94 Fr_{Lb})$$

$$\frac{d_b}{d_{b(u_L=0)}} = \left[\frac{k_\sigma / k_{\sigma(u_L=0)}}{\sqrt{1 + \tan^2 \beta}} \right]^{1/3}$$

On obtient la relation (II.36) :

$$\frac{d_b}{d_{b(u_L=0)}} = \left(\frac{0,44 + 0,56 \exp^{-6,94 Fr_{Lb}}}{\sqrt{1 + \tan^2 \left((0,81 \pm 0,11) (Fr_{Lb} \sqrt{Bo_b})^{7/16} \right)}} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (II.36)$$

En utilisant cette fois les valeurs de d_b extrapolés à $u_L=0$ à partir des données expérimentales, nous avons recalculé les valeurs de d_b et nous les avons comparées aux valeurs expérimentales comme l'illustre la figure II.29.

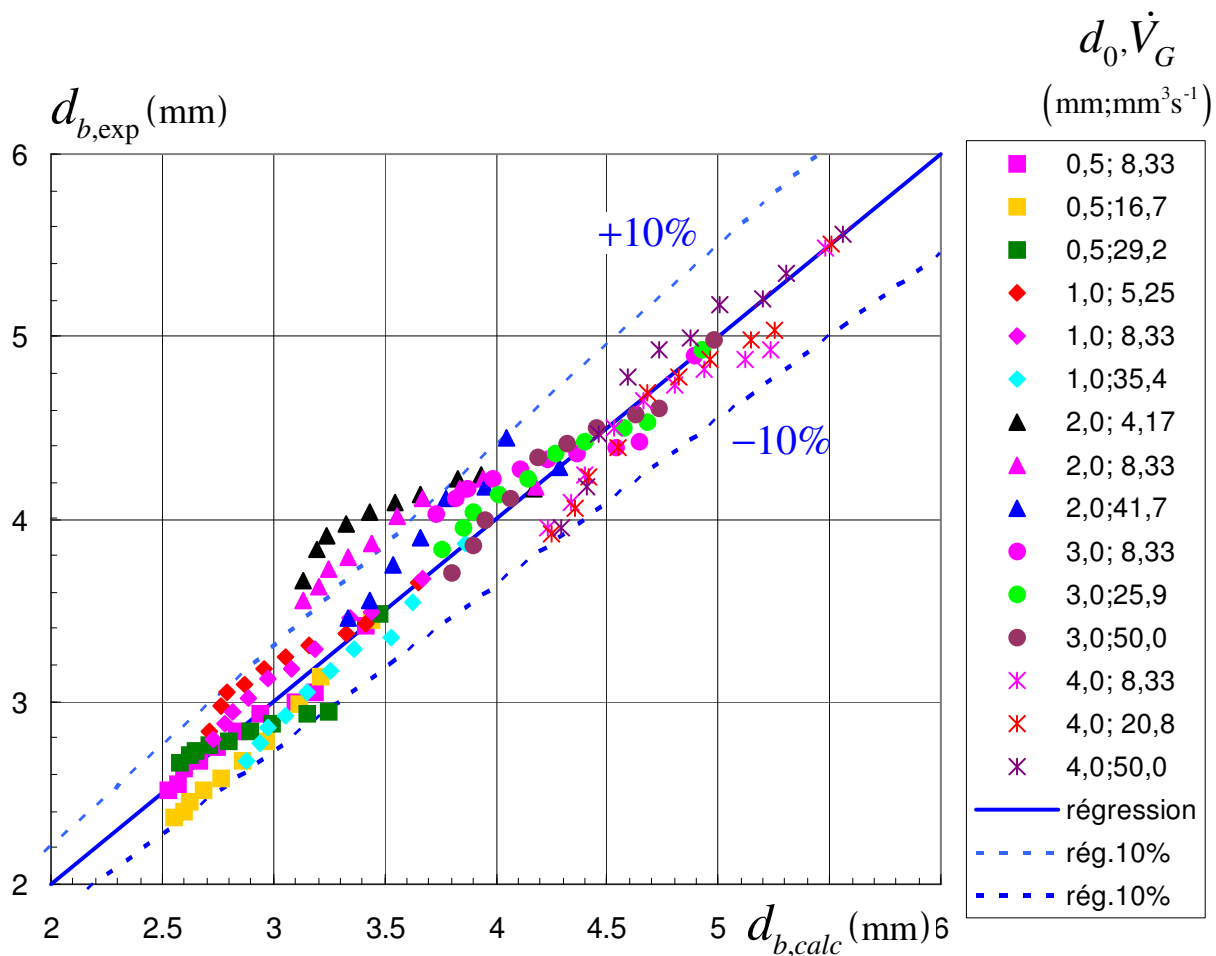


Figure II.29. Comparaison entre les diamètres de bulle expérimentaux et ceux calculés à partir de la relation (II.36).

La figure II.29 montre que les diamètres de bulles expérimentaux sont correctement estimés à partir de la relation II.36.

II.3. CONCLUSION

Cette étude qui a porté sur la génération de bulles dans l'eau sous un écoulement orthogonal à la direction de génération des bulles a permis de corréler de manière satisfaisante les résultats expérimentaux obtenus. La corrélation finale permettant d'estimer le diamètre des bulles est :

$$\frac{d_b}{d_{b(u_L=0)}} = \left(\frac{0,44 + 0,56 \exp^{-6,94 Fr_{Lb}}}{\sqrt{1 + \tan^2 \left((0,81 \pm 0,11) (Fr_{Lb} \sqrt{Bo_b})^{7/16} \right)}} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (II.36)$$

Hormis des anomalies observées pour la buse de 2 mm de diamètre, l'ensemble des résultats est corrélé à mieux de 10 % près, ce qui rentre à peu près dans la statistique expérimentale. Notons qu'en principe, les diamètres à vitesse de liquide nulle devraient être évalués à partir de corrélations. L'analyse faite ici pourrait être réitérée avec la corrélation de Jamialahmadi par exemple.

La technique PIV nous a permis, outre de visualiser l'ascension de bulles sous un champ de cisaillement latéral, de mesurer la vitesse de cet écoulement orthogonal. Ces mesures ont permis de connaître avec cette vitesse qui nous a permis de corréler nos résultats avec une bonne précision.

Cette étude devrait être poursuivie. Au-delà de l'aspect simulation numérique, il s'agit de mesures systématiques à effectuer aussi soigneusement que possible, en limitant le nombre de points expérimentaux mais en surveillant leur cohérence.

Chapitre II

III.3. Etude d'un train de bulles dans les milieux newtoniens

Dans cette partie, nous nous intéresserons au comportement de bulles en ascension dans les fluides newtoniens et notamment au cas d'une bulle isolée et de plusieurs bulles en interaction durant leur ascension dans un train de bulles unique et régulier. Pour cela, nous avons utilisé deux techniques de mesure : la caméra rapide afin de mettre en évidence les phénomènes de déformations de bulles liés aux interactions durant leur ascension et la technique PIV qui permet de décrire l'écoulement local autour de bulles à travers des mesures des champs de vitesse instantanés.

II.3.1. Revue bibliographique

Tout d'abord, nous ferons quelques rappels sur les écoulements autour des bulles en milieu newtonien. Ces rappels seront l'occasion de présenter des notions importantes pour la suite, comme les régimes d'écoulements rencontrés ou encore la vitesse ascensionnelle.

II.3.1.a. Ascension d'une bulle isolée

La vitesse ascensionnelle d'une bulle isolée, sa forme ainsi que le champ de vitesses qui l'entoure sont différents selon que le fluide soit newtonien ou non newtonien. Durant les quarante dernières années, l'intérêt porté à l'étude d'une bulle isolée en ascension dans un fluide newtonien n'a cessé de grandir, surtout avec l'évolution des techniques en matière de mesure et de caractérisation.

II.3.1.a.1. Vitesse ascensionnelle

En parlant d'une bulle en ascension dans un liquide, il est nécessaire de rappeler la dynamique du phénomène et notamment les forces agissant sur la bulle. Dans notre cas, nous nous intéressons en particulier aux forces présentes lors de l'ascension d'une bulle ou une sphère, à

savoir les forces de viscosité, d'inertie, de gravité (flottabilité), de tension de surface. L'ascension de la bulle, sa forme et sa trajectoire dépendent de la résultante de ces forces. En fonction des propriétés de la phase continue et dispersée, nous pouvons identifier le régime d'écoulement et les forces dominantes pendant l'ascension d'une bulle.

Cette identification est obtenue en fonction du nombre de Reynolds particulière comme suit:

- $Re \ll 1$ (régime de Stokes). Les bulles ont une forme sphérique. Dans ce domaine, ce sont les forces de viscosité et de tension superficielle qui sont dominantes. L'interface de la bulle peut être considérée comme rigide. Le mouvement de la bulle dans ce régime est stationnaire et purement vertical.
- $1 < Re < 600$ (régime sphérique inertiel). Les bulles sont toujours de forme sphérique, mais les forces de tension superficielle et d'inertie sont prépondérantes devant les forces de viscosité. Le mouvement de la bulle dans ce domaine reste rectiligne.
- $600 < Re < 1300$ (régime ellipsoïdal). La bulle prend une forme d'ellipsoïde. Ce sont les forces de tension de surface et d'inertie qui sont en compétition dans ce domaine. La trajectoire de la bulle devient sinusoïdale plane (zigzag).
- $Re > 1300$ (régime de bulles déformées). La bulle prend la forme de calotte sphérique, et peut être déformée et instable pour des tailles plus importantes. Les forces de tension superficielle deviennent négligeables et ce sont les forces d'inertie et de poussée qui déterminent le mouvement de la bulle. Les calottes sphériques ont une trajectoire verticale, tandis que les bulles déformées ont un mouvement sous forme de zigzag ou de spirale (mouvement hélicoïdale).

Les bulles qui sont suffisamment petites sont parfaitement sphériques et se comportent donc comme des sphères rigides dont l'interface est indéformable. Dans ce cas, elles suivent la loi de Stokes :

$$C_T = \frac{24}{Re} \quad (II.37)$$

Cette expression du coefficient de frottement est valable en écoulement rampant, c'est à dire pour un nombre de Reynolds inférieur à 0,1. Par extension, cette zone de Reynolds est très souvent appelée régime de Stokes.

Pour des bulles de plus grande taille, on passe par un état intermédiaire où les bulles sont encore sphériques mais ont une interface libre (pas de contrainte à la surface de la bulle). Ce régime d'écoulement est appelé régime de Hadamard-Rybczynski. En écoulement rampant, le bilan de forces en régime permanent, en négligeant la masse volumique du gaz dans la bulle devant la masse volumique du liquide, s'écrit, selon Bird *et al.* (1987) :

$$F_{\text{traînée}} + F_{\text{Archimède}} = -4\pi\mu R u + \frac{4}{3}\pi R^3 \rho_l g = 0 \quad (II.38)$$

La vitesse ascensionnelle est alors :

$$u_{\text{Hadamard}} = \frac{1}{3} \frac{\rho_l}{\mu_l} g R^2 \quad (II.39)$$

Le coefficient de frottement devient alors :

$$C_T = \frac{16}{Re} \quad (II.40)$$

II.3.1.a.2. Trajectoire des bulles en ascension

Les petites bulles en ascension dans de l'eau ont une trajectoire rectiligne et une forme figée. A partir d'une certaine taille, les bulles, non seulement présentent des oscillations de forme, mais montent selon une trajectoire de forme spirale ou en zig-zag comme l'illustre la figure II.30.

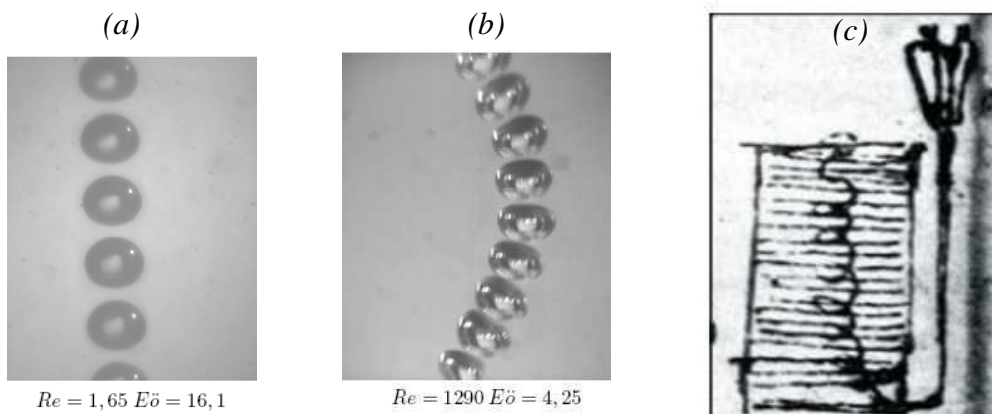


Figure II.30. (a) Bulle en ascension dans un fluide visqueux par Lamboley (2008) (b)) Bulle en ascension dans de l'eau par Lamboley (2008) (c) Dessin de Léonard de Vinci montrant l'ascension en hélice d'une bulle dans de l'eau (15^{ème} siècle).

Ellipsen *et al.* (1998) distinguent trois domaines pour l'ascension de bulles dans de l'eau pure selon leur taille :

$R < 0,5$ mm	les bulles sont sphériques et montent suivant une trajectoire rectiligne
$0,5 < R < 0,7$ mm	les bulles se déforment mais gardent une trajectoire rectiligne
$R > 0,7$ mm	la trajectoire n'est plus rectiligne

Mendelson *et al.* (1967) effectuent une classification légèrement différente :

$R < 0,35$ mm	les bulles sont sphériques et suivent la loi de Stokes
$0,35 < R < 0,7$ mm	recirculation interne, vitesse ascensionnelle plus faible que la loi de Stokes
$0,7 < R < 3$ mm	mouvement hélicoïdal des bulles
$R > 3$ mm	les bulles prennent la forme d'une calotte sphérique

Dans les fluides visqueux, les bulles de taille importante n'oscillent pas ou très peu. Leur forme reste figée et leur ascension est pratiquement toujours rectiligne. De Vries *et al.* (2002) ont aussi étudié le sillage et la trajectoire d'une bulle dans l'eau. Ils ont ainsi conclu que la trajectoire en zigzag de la bulle dans l'eau était due à deux filets qui composent le sillage de la bulle. Dans ce sillage, la vorticit  axiale varie p riodiquement tendant ainsi   d vier la bulle de sa trajectoire rectiligne vers une trajectoire h lico dale.

II.3.1.a.3. Forme des bulles

En milieu infini, la forme d'une bulle d pend de son diam tre  quivalent et des propri t s physiques du milieu et par cons quent du nombre de Reynolds particulaire. A partir de donn es exp rimentales, Grace *et al.* (1976) ont propos  un diagramme de phases permettant de repr senter la forme d'une bulle dans un liquide au repos en fonction de nombres adimensionnels, en particulier, les nombres d'E tv s, de Morton et de Reynolds particulaire.

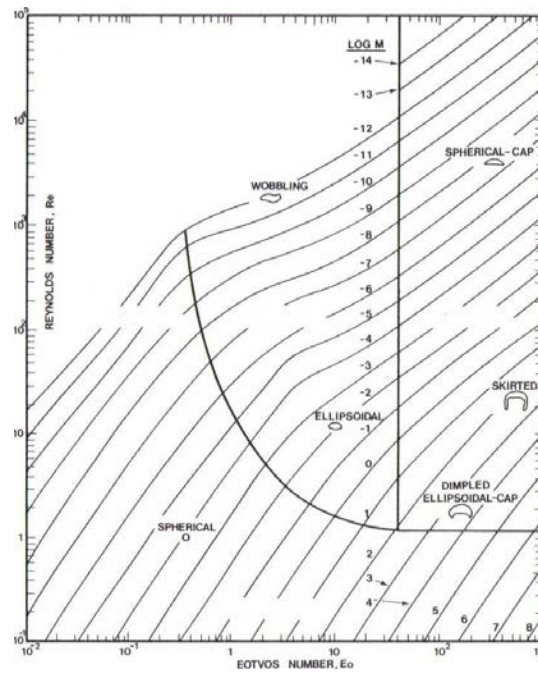


Figure II.31. Diagramme de Grace, Forme des bulles en fonction de Re , Eo et M

Funfschilling (1999) a montré expérimentalement une évolution de la forme des bulles en fonction de la taille de celles-ci. En effet, si les petites bulles sont de forme sphérique, plus la taille des bulles devient importante, plus le bas de la bulle s'aplatit alors que le haut reste sphérique (figure II.32). La déformation de la forme de la bulle est une conséquence directe de la dynamique de l'écoulement.

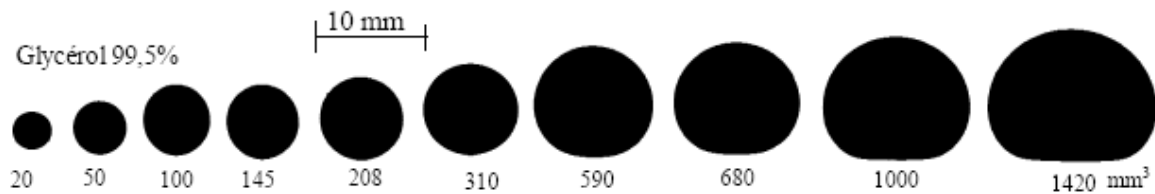


Figure II.32. Forme générique des bulles en fonction de leurs volumes dans un fluide newtonien (99,5% glycérol). Funfschilling (1999). $\mu = 1,4 \text{ Pa.s}$.

D'après la loi de Young-Laplace (I.11): pour une bulle sphérique de rayon R ,

- pour de petites bulles, R est faible donc ΔP est important. La tension superficielle est alors importante, ce qui entraîne une grande rigidité de la paroi de la bulle qui est alors indéformable. La particule se comporte donc comme un solide donc sa forme reste sphérique,

- pour des bulles de plus grande taille, ΔP est plus faible. L'interface sera alors mobile et donc déformable. De plus, le champ de vitesse ascendant va contribuer à aplatir la partie inférieure de la bulle. Et l'arrondi des bords inférieurs de la bulle est dû à la recirculation latérale du fluide.

II.3.1.a.4. Champs de vitesse du liquide

Le concept de double sillage (sillage primaire et sillage secondaire) d'une bulle en mouvement dans un fluide newtonien a été mis en évidence par Fan *et al.* (1990). Le sillage primaire est une zone fermée se situant immédiatement derrière le corps de la bulle, tandis que le sillage secondaire correspond à la zone ouverte se trouvant derrière le sillage primaire et où peuvent se développer des vortex selon le régime d'écoulement. Pour des nombres de Reynolds élevés, l'instabilité du sillage primaire provoque l'instabilité de la trajectoire de la bulle ; la bulle aura alors une trajectoire en zigzag ou encore hélicoïdale.

Funfschilling (1999) a également montré expérimentalement qu'une bulle en mouvement dans un fluide newtonien présente un double sillage. Pour de très faibles valeurs de nombre de Reynolds ($Re < 0,1$), le champ de vitesses est symétrique en amont et en aval de la bulle (mais pas le sens des vecteurs). Lorsque les bulles sont de plus grande taille, les profils de vitesse en amont et en aval de la bulle restent du même ordre de grandeur. Puis, plus le nombre de Reynolds augmente, plus le sillage devient allongé et important.

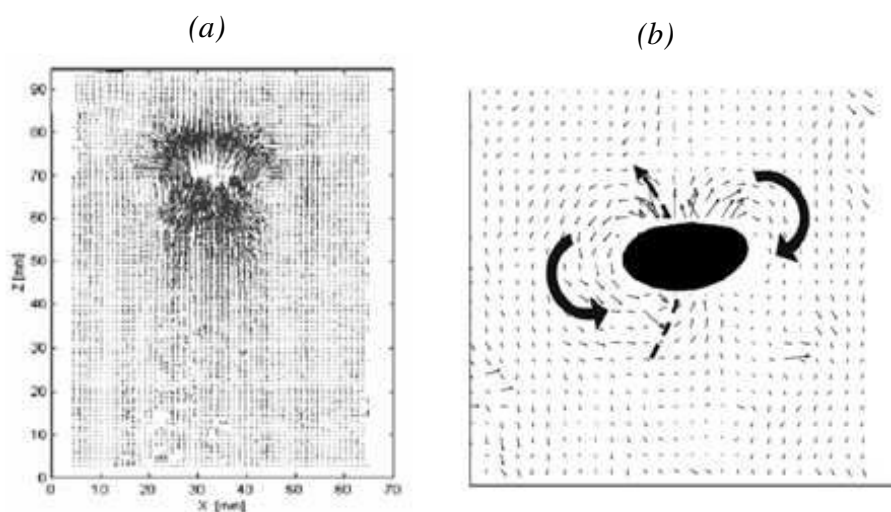


Figure II.33. Champs de vitesse autour d'une bulle en ascension par PIV

(a) Funfschilling (1999) (b) Sakakibara *et al.* (2007)

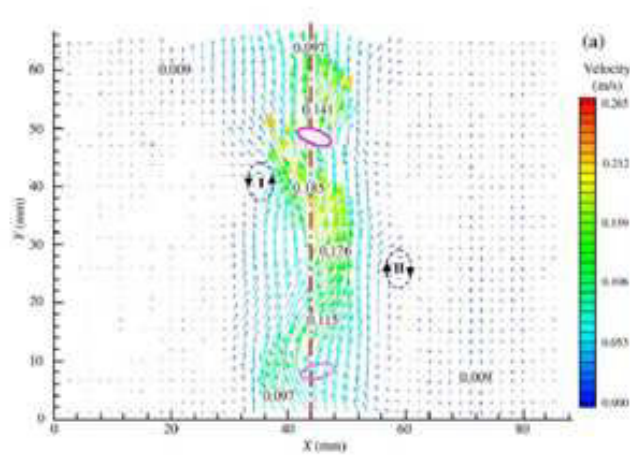


Figure II.33.c. Champs de vitesse autour d'une bulle en ascension par PIV par Liu et Zheng (2006)

Sakakibara *et al.* (2007) et Liu et Zheng (2006) ont également étudié l'ascension de bulle dans des fluides newtoniens par PIV (Figure II.33). Ils observent également une trajectoire rectiligne pour l'ascension des bulles dans les fluides visqueux. Cette trajectoire devient hélicoïdale lorsque la viscosité du fluide diminue comme l'avait étudié Vries *et al.* (2002).

II.3.1.b. Ascension d'un train de bulles

Jusqu'à présent, nous nous sommes intéressés au comportement de bulles isolées dans un fluide newtonien dans un milieu souvent considéré comme infini. Pour se rapprocher du cas d'une colonne à bulle, les bulles ne sont plus considérées comme isolées mais en interactions. Ces interactions peuvent souvent mener au phénomène de coalescence, phénomène parfois recherché mais que l'on souhaite le plus souvent éviter. Nous nous focalisons ici sur les interactions en ligne, c'est-à-dire aux bulles situées les unes à la verticale des autres et injectées régulièrement en continu à un orifice formant ainsi des trains de bulles.

o *Train de deux bulles*

Les interactions entre deux bulles ont été étudiées depuis longtemps. Bhaga et Weber (1980) ont étudié les interactions en ligne entre deux bulles. Ils ont corrélé l'influence du sillage de la première bulle sur la seconde pour des nombres de Reynolds compris entre 10 et 100. Aux faibles nombres de Reynolds, le comportement de deux particules qui se suivent a été étudié intensivement depuis très longtemps (Happel, 1965 et Rushton, 1978). En l'absence d'inertie, les bulles se déplacent à vitesse constante et égale et sont séparées par un espacement constant. La paire de bulles est toujours plus rapide que la bulle isolée, et la traînée totale de la paire de particules décroît avec la diminution de l'espacement entre celles-ci.

Pour les grands nombres de Reynolds (Kok, 1993a), la force d'interaction entre les bulles est une force inertielle répulsive qui diminue très rapidement avec la distance entre deux bulles (Lamb, 1932 et Harper, 1970). Les équations du mouvement de deux bulles ont été obtenues par Biesheuvel et van Wijngaarden (1982). Alignées verticalement, les bulles se repoussent les unes les autres et se séparent à l'infini.

Pour des nombres de Reynolds intermédiaires, les équations du mouvement pour deux bulles ont été obtenues par Kok (1993a et 1993b) et Kumaran et Koch (1993a et 1993b) et van Wijngaarden (1993). L'équation complète de Navier-Stokes a ensuite été résolue numériquement par Prosperetti et Yuan (1994), et les coefficients de traînée des deux bulles ont pu être calculés. Les résultats numériques montrent que celui de la bulle de tête est presque inchangé et égal à la traînée de bulle isolée tandis que celui de la bulle suiveuse est considérablement réduit par l'effet de blindage de la bulle précédente. De plus la réduction de

cette traînée est d'autant plus importante que l'écart entre les bulles est faible. Harper (1997) propose une approche générale pour calculer la force de traînée dans des trains de bulles et obtient dans le cas de deux bulles en ligne un résultat en accord avec l'approche de Prosperetti et Yuan. Par ailleurs la diminution de la force de traînée de la seconde bulle ainsi que l'absence d'effet sur la première bulle ont été confirmées par les expériences de Lee (1979) ; Tsuji *et al.* (1982) ; Temkin et Ecker (1982) et Zhu *et al.* (1994)) et aussi par les simulations de Sirignano (1993).

o Train de plus de deux bulles

Aux faibles nombres de Reynolds, l'écoulement en régime permanent d'un train fixe de bulles dans l'espace a été étudié théoriquement par plusieurs auteurs (Wang et Skalak, 1969, Leichtberg *et al.*, 1976, Ganatos *et al.*, 1978, Pruppacher et Klett, 1978 et Harper, 1983). Le coefficient de traînée dépend de la position de la bulle dans le train. Il est minimal au milieu du train de bulle, et augmente de façon symétrique vers les deux extrémités du train (Leichtberg *et al.*, 1976a et Ganatos *et al.*, 1978). Ce coefficient diminue avec l'augmentation de la longueur du train de bulles et la diminution de l'espacement entre bulles successives.

Le comportement dynamique du déplacement de trois bulles a été étudié expérimentalement par Happel et Pfeffer (1960) qui ont aussi observé entre bulles. Leichtberg *et al.* (1976b) ont effectué une étude approfondie de la dynamique de trains de 3 à 25 particules. Un appariement a été observé aux extrémités du train. Ce phénomène a par ailleurs également été constaté théoriquement par Morrison (1973) ; Harper (1983) et Lerner (1991) et expérimentalement par Meneveau et Katz (1996). Dans la gamme intermédiaire des nombres de Reynolds, les connaissances sur le comportement du train ne sont que très superficielles et très limitées. Pour les grands nombres de Reynolds, les résultats de Harper (1970) pour deux bulles successives s'appliquent également à plusieurs bulles en ligne. Ce qui a aussi été vérifié par Helfinstine et Dalton (1974). Le comportement d'un train de bulles infini est qualitativement différent. Des trains de bulles continus ont été la source de nombreuses études (Poutanen Johnson (1959), Crabtree et Bridgwater(1969) et Marks (1973); Martin et Chetler (1982); Li(1997)) et confirment les précédentes observations.

De Nevers et Wu (1971) ont étudié les interactions au sein d'un train de bulles de 1 et 2 cm de diamètre dans un fluide newtonien (eau et glycérol) et ont constaté que si les bulles étaient

suffisamment rapprochées, une bulle pouvait soudain accélérer et rattraper la précédente. Ces auteurs ont proposé un modèle simple basé sur des considérations géométriques de la forme de la traînée dans l'espace et ont cherché à tenir compte des interactions entre bulles. L'ajustement d'un seul paramètre a permis à partir de ce modèle très simple de bien corrélérer les résultats expérimentaux. Dans leurs études, ils constatent peu avant la collision une augmentation de la vitesse ascensionnelle des bulles ainsi qu'une modification de la forme des bulles, la bulle dans le sillage devient allongée. Ces importantes déformations montrent l'existence de fortes interactions entre les bulles au cours de leur phase de rapprochement.

Acharya et Ulbrecht (1978) notent que la viscosité du milieu augmente le nombre de coalescence de bulles en ligne. Ceci s'interprète selon eux par un sillage bien plus étendu dans les fluides visqueux qui accentue le phénomène de coalescence. Omran et Foster (1977) ont travaillé avec des solutions visqueuses eau-glycérol. L'ascension du train de bulles donne au fluide une vitesse ascendante dans l'axe du train. Ainsi par ce mouvement ascendant du fluide induit par le train de bulles, la vitesse ascensionnelle des bulles va diminuer avec une augmentation de leur espacement pour atteindre asymptotiquement la vitesse d'une bulle isolée. Le train de bulles va donc être à l'origine d'une recirculation dans la colonne par un mouvement ascendant dans l'axe du train et descendant au voisinage des parois.

Dans certains cas, ces interactions peuvent mener au phénomène de coalescence de bulles, phénomène souhaitable dans certaines applications mais le plus souvent évité pour d'autres. Plusieurs travaux de la littérature ont porté sur l'étude du phénomène de coalescence dans des fluides newtoniens (Clift *et al.* (1978); De Nevers et Wu (1971); Bhaga et Weber (1980); Gera et Gautam (1995); Narayanan *et al.* (1974); Chhabra (1993); Manga et Stone (1993); Terasaka et Tsuge (1991)).

Malgré les nombreuses études sur les interactions des bulles en train, nous manquons toujours de connaissances sur le comportement hydrodynamique détaillé, notamment, il n'existe pas de champs de vitesse de train de bulles en interaction dans la littérature. Par conséquent, nous entreprenons ici une telle étude sur les trains de bulles réguliers en milieux newtoniens dans le but d'approfondir les connaissances en hydrodynamique et de comprendre de façon plus approfondie les phénomènes d'interaction entre bulles.

II.3.2. Ascension de bulles isolées dans des fluides visqueux

On s'intéresse ici à l'ascension de bulles isolées dans des fluides visqueux newtoniens. Les bulles sont générées à l'aide d'une buse située au fond de la colonne de section carrée de 6×10^{-3} m. Une électrovanne dirigée par un ordinateur permet de contrôler le volume des bulles lors de leur formation. Pour comprendre et comparer l'influence des propriétés rhéologiques du fluide sur le champ de vitesse autour des bulles, quatre fluides différents sont utilisés (HV45 35%, 50%, 65% et 80%). Plusieurs tailles de bulles ont été étudiées pour des diamètres équivalents de 5 et 12 mm. Le volume d'une bulle est déterminé en effectuant la moyenne sur une centaine de bulles formées dans les mêmes conditions d'ouverture de l'électrovanne avec une période d'injection de plus de 5 secondes pour éviter les interactions entre bulles. La vitesse de la bulle est déterminée en utilisant à la fois les caméras de la PIV et la caméra rapide VNR.

II.3.2.a Ascension d'une bulle dans du HV45 50%

Le champ de vitesse autour d'une bulle isolée de 100×10^{-9} et $500 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ est représenté respectivement sur les figures II.34 et II.35. Le profil de vitesse est mesuré en amont et en aval de la bulle à une hauteur comprise entre 30 et 40 mm sur une section horizontale qui représente la largeur de la colonne. Pour chaque champ de vitesses, l'image prise par la caméra est présentée à droite du champ de vecteur vitesse.

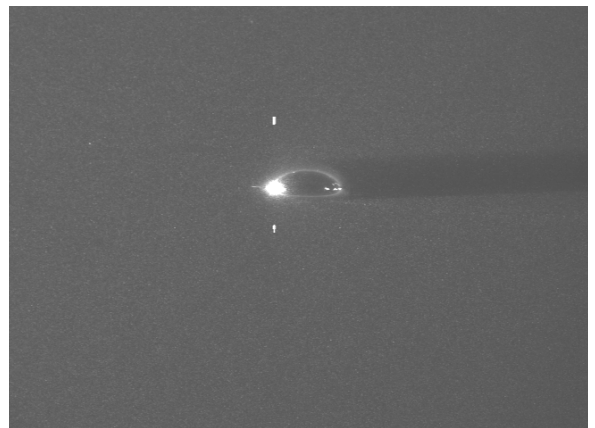
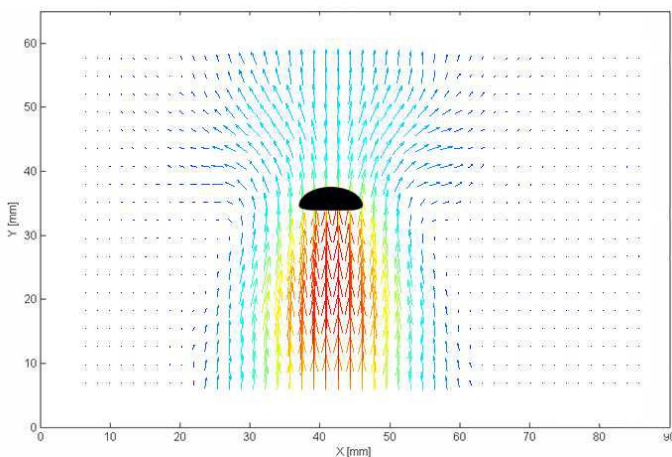


Figure II.34. Champ de vitesse obtenu par PIV autour d'une bulle en ascension de $100 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ dans du HV45 50%. Vitesse ascensionnelle de 0,19 m/s. Nombre de Reynolds de 5,91.

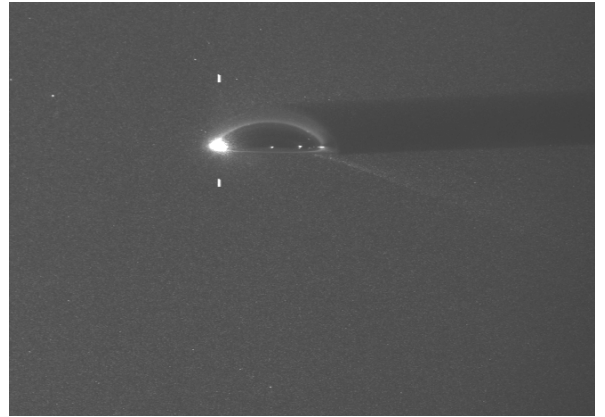
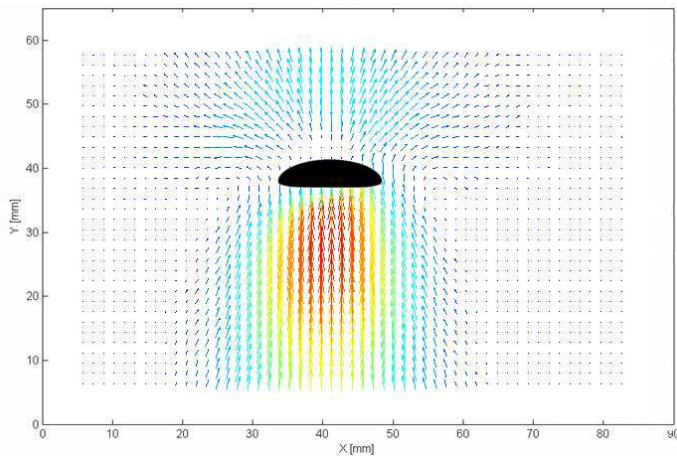


Figure II.35. Champ de vitesse obtenu par PIV autour d'une bulle en ascension de $550 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ dans du HV45 50%. Vitesse ascensionnelle de 0,24 m/s. Nombre de Reynolds de 10,63.

On observe pour toutes les images prises une zone blanche sur la gauche de la bulle et une zone d'ombre sur la droite de la bulle. Ces problèmes sont respectivement dus à la réflexion du LASER sur la bulle et à l'ombre provoquée par cette dernière. Ils n'affectent le champ de vitesse mesuré que dans le cas des petites et grosses bulles.

II.3.2.b Ascension d'une bulle dans du HV45 65%

Le champ de vitesse autour d'une bulle isolée de $200 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ et $700 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ est représenté respectivement sur les figures II.36 et II.37.

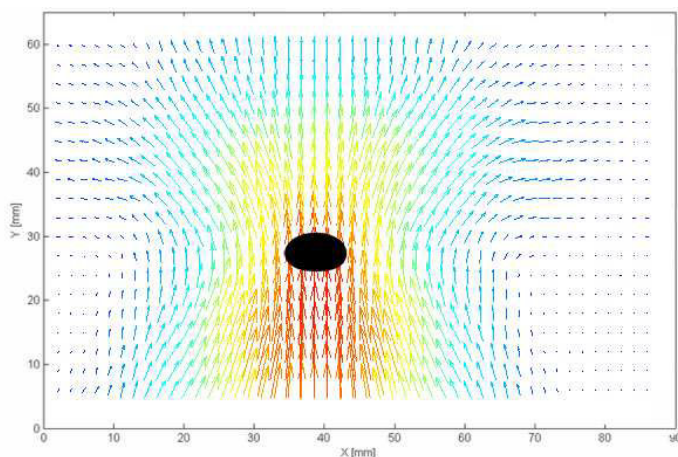


Figure II.36. Champ de vitesse obtenu par PIV d'une bulle en ascension de $200 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ dans du HV45 65%. Vitesse ascensionnelle de 0,086 m/s. Nombre de Reynolds de 1,05.

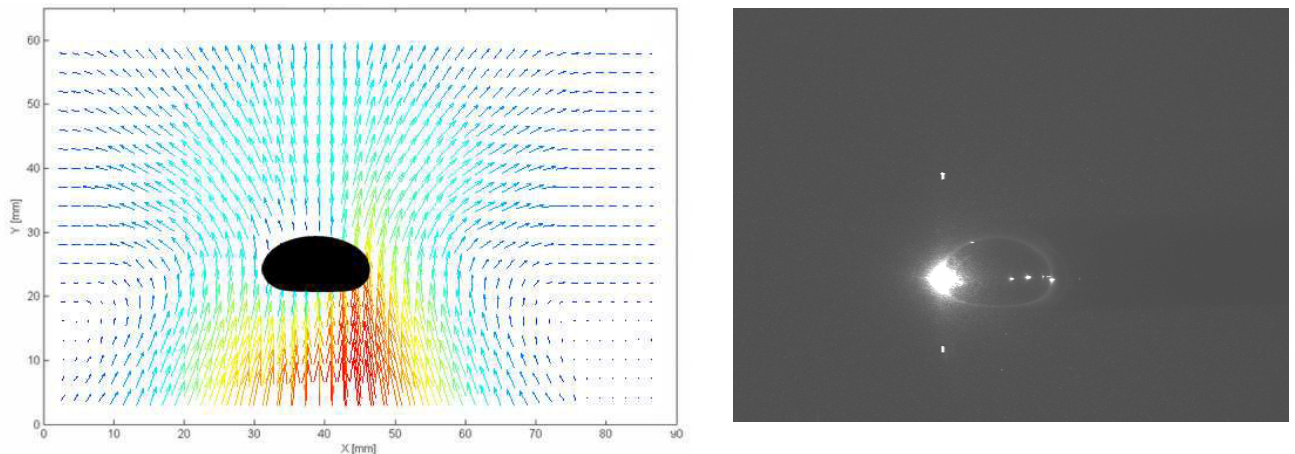


Figure II.37. Champ de vitesse obtenu par PIV d'une bulle en ascension de $700 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ dans du HV45 65%. Vitesse ascensionnelle de 0,171 m/s. Nombre de Reynolds de 3,35.

On retrouve effectivement ce qui avait été reporté dans la partie bibliographique ; c'est-à-dire que l'on observe :

- le front (zone immédiatement au-dessus de la bulle) où le fluide est poussé vers le haut (champ de vecteurs vitesse positifs avec des vitesses importantes),
- le sillage primaire immédiatement derrière la bulle avec un champ de vecteurs vitesses positifs (vitesses très importantes) où le fluide est entraîné derrière la bulle,
- le sillage secondaire situé derrière le sillage primaire avec un champ de vecteurs vitesse positifs (mais les vitesses sont plus faibles),
- des boucles de recirculation avec des champs de vecteurs vitesse orientés dans le sens trigonométrique et qui sont dues à l'entraînement du fluide par la bulle en ascension.

De plus, dans le cas des petites bulles, qu'elles soient sphériques ou ellipsoïdales, le champs de vecteurs vitesses possède un plan de symétrie vertical passant par le centre de la bulle. Cette symétrie aussi bien qualitative que quantitative se voit bien sur les figures II.34 et II.36. Pour des bulles de taille plus importante, comme la bulle de $700 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ représentée sur la figure II.37, cette symétrie est un peu perdue, surtout du fait de la présence d'une traînée plus longue à l'arrière de la bulle et de la réflexion à la surface de la bulle.

La mesure du déplacement de la bulle isolée par caméra permet d'atteindre sa vitesse. Pour différents fluides visqueux (HV45 35%, 50%, 65% et 80%) et différentes tailles de bulles (5, 7 et 10 mm de diamètre équivalent). L'évolution de la vitesse mesurée expérimentalement en fonction de la vitesse déterminée par la loi de Hadamard est reportée sur la figure. II.38.

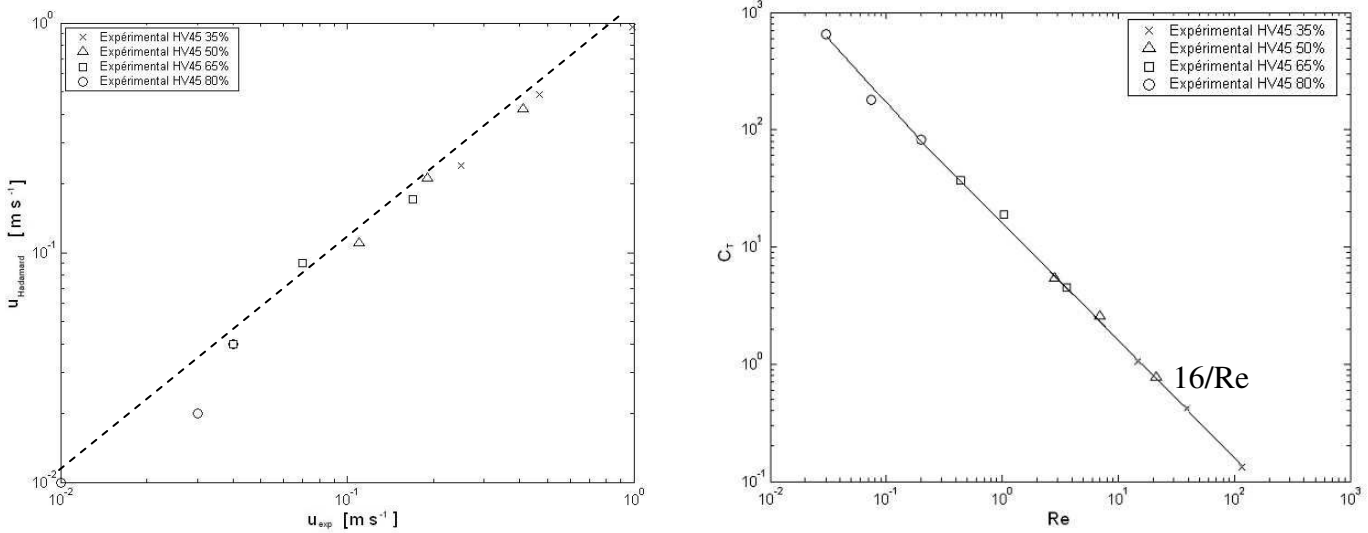


Figure II.38. A gauche, Diagramme de parité entre la vitesse ascensionnelle terminale expérimentale et celle fournie par la loi de Hadamard (II.39) et à droite, évolution du coefficient de traînée en fonction du nombre de Reynolds pour les différents systèmes étudiés.

Cette figure montre que les valeurs de vitesses de bulles déterminées expérimentalement sont en accord avec celle estimées à partir de la loi de Hadamard.

II.3.2.c Formes des bulles dans les fluides visqueux

L'excentricité de la bulle, c'est-à-dire le rapport largeur L sur hauteur H donne une information quantitative sur la bulle. L'évolution de l'excentricité des bulles en fonction de leur volume est représentée pour différents fluides sur les figures II.39a et II.39b.

Pour des bulles de très petits volumes, les forces de tensions superficielles dominent, ainsi elles sont de forme quasi-sphérique. Leur excentricité est alors de l'ordre de l'unité mais diminue avec le volume des bulles.

Dans la solution de HV45 65%, les bulles sont sphériques pour un volume de bulle inférieur à $100 \times 10^{-9} \text{ m}^3$; ensuite entre $100 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ et $600 \times 10^{-9} \text{ m}^3$, leur forme s'aplatit aux pôles tout en

restant proche de la forme sphérique. Pour des volumes de bulles compris entre $600 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ et $1000 \times 10^{-9} \text{ m}^3$; les bulles deviennent plates à l'arrière. Enfin, pour un volume supérieur à $1000 \times 10^{-9} \text{ m}^3$, la bulle adopte une forme de calotte sphérique, l'arrière de la bulle se creuse. Ceci vérifie donc ce qui avait été reporté dans la partie bibliographique.

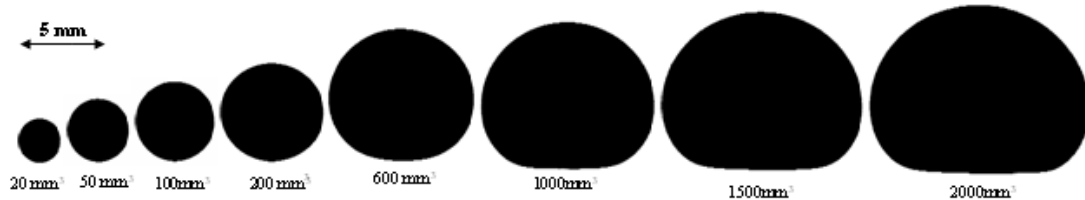


Figure II.39a. Evolution de la forme des bulles avec leur volume pour une période d'injection de 5 s dans du HV45 65%.

En considérant des bulles de même volume mais dans des fluides différents, on constate que moins le fluide est visqueux, plus le bas de la bulle est aplati et plus la bulle prend une forme de calotte sphérique, comme le montre la figure II.39b.

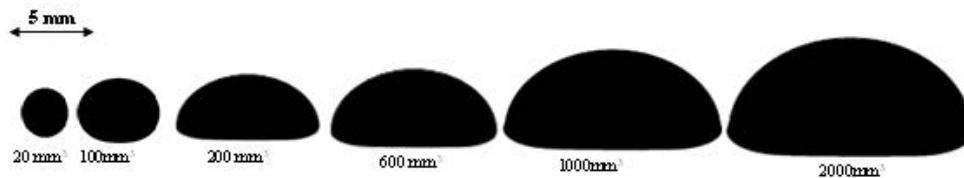


Figure II.39b. Evolution de la forme des bulles avec leur volume pour une période d'injection de 5 s dans du HV45 50%.

Ces formes de bulles ont été observées par de nombreux auteurs pour des fluides newtoniens visqueux (glycérol et huile de silicone). Aux nombres de Reynolds et de Bond identiques, elles sont conformes aux résultats de la littérature. Pour l'ensemble des bulles étudiées, l'excentricité est toujours supérieure à 1. Mais si des interactions entre bulles apparaissent (cas d'un train de bulles), des effets d'accélération entraînent une déformation de la bulle et conduit à des bulles étirées dans le sens de la hauteur. C'est ce que nous allons voir dans la partie portant sur l'étude des trains de bulles en milieu newtonien.

II.3.3. Ascension de trains de bulles dans des fluides visqueux

Des trains de bulles réguliers sont réalisés de la même façon que les bulles isolées. L'injection est gérée par une électrovanne, contrôlée par un ordinateur, permettant de maîtriser la période d'injection et le volume. Ainsi, pour les différents fluides étudiés (à savoir HV45 35, 50, 60 et 80%) et pour différentes tailles de bulles (5, 7 et 10 mm de diamètre équivalent), des trains de bulles sont réalisés.

Avant toute mesure, on attend 5 minutes pour atteindre le régime permanent pour s'assurer ainsi d'un train régulier. Le paramètre sur lequel nous allons jouer est la distance entre deux bulles (celle-ci est directement contrôlée par le temps d'injection entre deux bulles) et est défini sur la figure II.40.

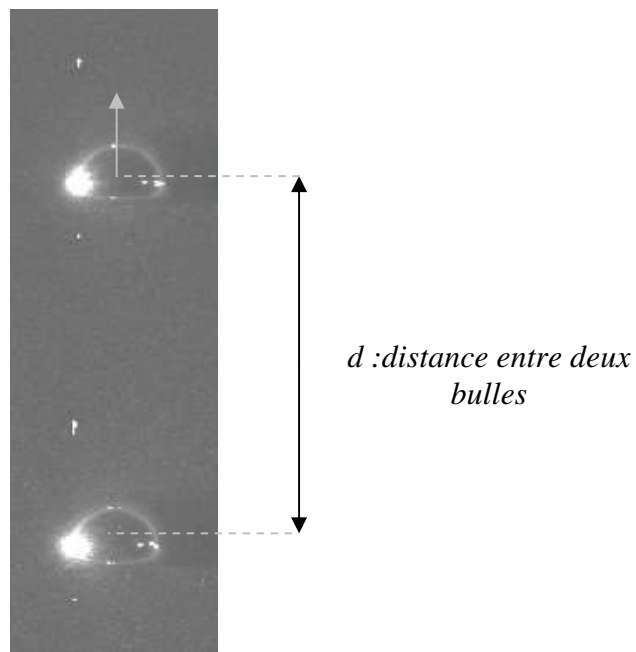


Figure II.40. Ascension d'un train de bulles de $200 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ dans du HV45 65%, vitesse ascensionnelle de 0,07 m/s, écart entre les bulles de 90 mm. $Re = 1$.

Pour différentes distances d entre deux bulles dans un fluide donné, nous avons mesuré le champ de vitesse autour du train ascendant par PIV et la vitesse des bulles en ascension ainsi que leur forme au moyen d'une caméra rapide. Ces deux informations, comparées à celles obtenues dans le cas d'une bulle isolée, nous renseigneront sur les différentes interactions présentes ou non entre bulles.

II.3.4. Champs de vitesse autour de bulles en interaction par PIV

Le montage expérimental de la PIV permet de mesurer le champ de vitesse d'un train de bulles en continu. Nous nous intéressons plus particulièrement à la modification du champ de vitesse lors de l'approche de deux bulles au sein d'un train jusqu'à leur coalescence de celles-ci dans des solutions visqueuses. Les différentes séquences montrent une grande similitude et reproductibilité dans le mécanisme d'approche. Deux d'entre elles ont été choisies. La première séquence a lieu dans une solution de HV45 65% pour des bulles de $300 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ au sein d'un train régulier. Les champs de vitesses ainsi que le contour de la bulle superposée sont représentés sur les figures II.41 à II.48. Cette séquence montre clairement la modification du champ de vitesse lorsque les bulles encore éloignées se rapprochent, ainsi que son incidence sur la forme des bulles.

- Distance entre deux bulles (d) $> 100 \text{ mm}$. Vitesse ascensionnelle de $0,09 \text{ m/s}$

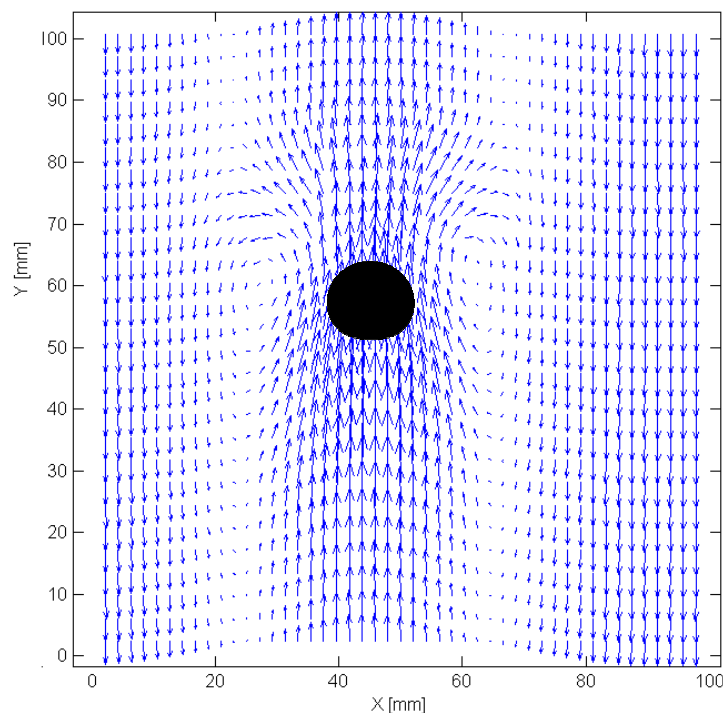


Figure II.41. Train de bulles en ascension dans du HV45 65%, pour des bulles de volume $300 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ (diamètre équivalent des bulles de 8 mm) Distance entre deux bulles consécutives de 120 mm . $Re = 1,26$. $T = 1,33 \text{ s}$.

Comme dans le cas de l'ascension d'une bulle isolée, le train de bulles ainsi que le champ de vecteurs vitesses autour des bulles sont axisymétriques. Le champ de vitesse est entièrement déterminé par sa mesure dans le plan contenant l'axe de symétrie. Dans ce cas précis, la distance entre les deux bulles est tellement grande qu'il n'y a pas d'interaction entre deux bulles successives comme le montre la figure II.42.

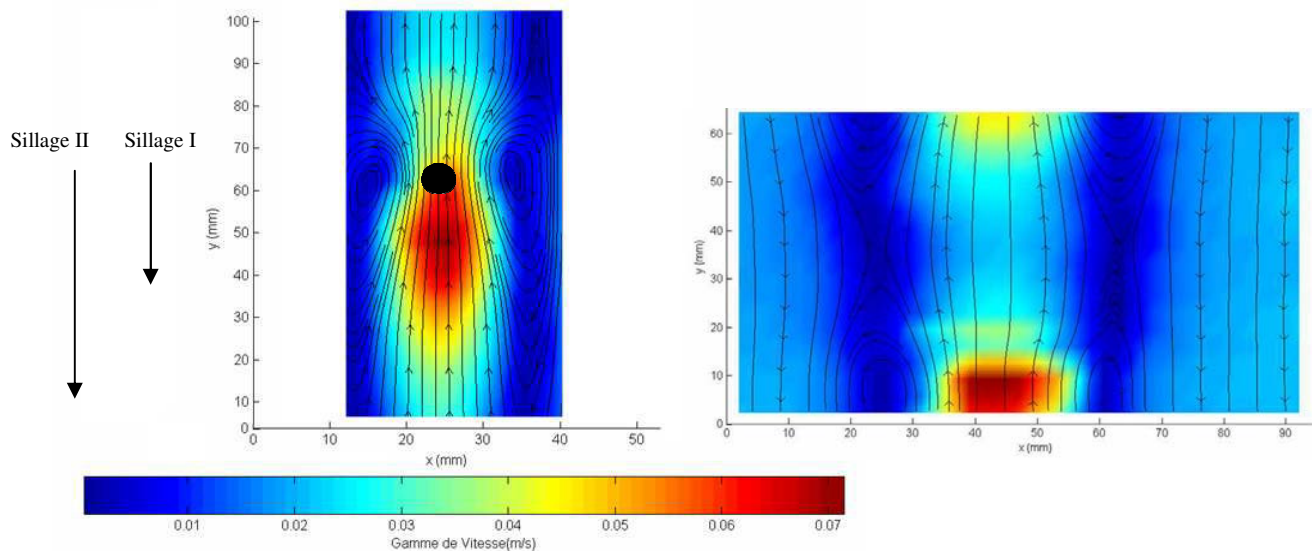


Figure II.42. Intensité des vitesses et lignes de courant pour des train de bulles en ascension dans du HV45 65%, pour des bulles de volume $300 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ (diamètre équivalent des bulle de 8 mm) Distance entre deux bulles consécutives de 120 mm. $Re = 1,26$. La longueur des sillages primaire et secondaire est reportée sur la figure de gauche.

La mesure des vitesses dans la zone située entre les deux bulles est nulle en son centre, il n'y a pas de contact entre le sillage de la bulle supérieure et le front de la bulle inférieure. Les bulles se comportent comme si elles étaient isolées les unes des autres. La distance entre celles-ci est trop grande pour qu'il puisse y avoir des interactions. De plus, on peut noter également le très faible renouvellement du fluide autour du train. Cette absence de recirculation globale de fluide dans la colonne transcrit, du point de vue du procédé, un très mauvais transfert de matière du fluide.

En augmentant la période d'injection de l'électrovanne, on diminue la distance entre les bulles au sein du train régulier.

- Distance entre deux bulles $d = 80$ mm. Vitesse ascensionnelle de $0,09$ m/s

En diminuant la distance entre les bulles au sein du train régulier, on obtient le champ de vitesses représenté sur la figure II.43.

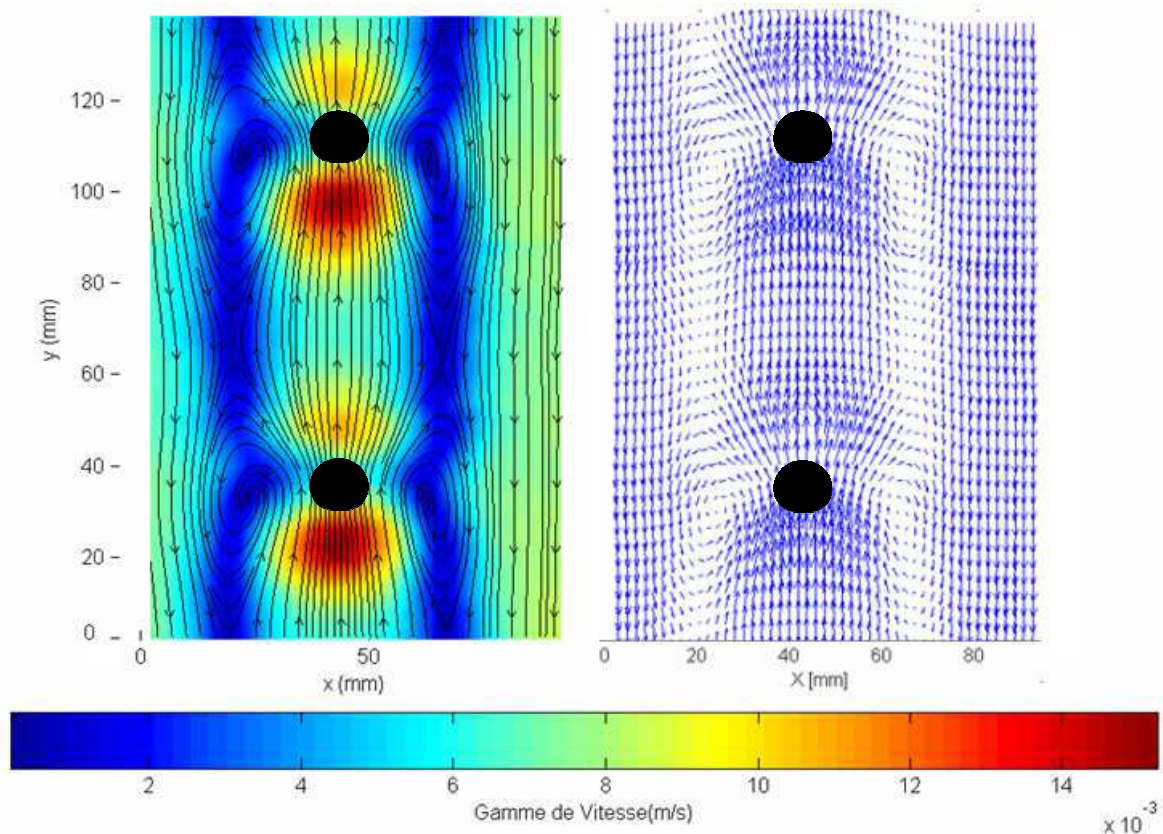


Figure II.43. Train de bulles en ascension dans du HV45 65%, pour des bulles de volume $300 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ (diamètre équivalent des bulles de 8 mm). Champs de vecteur vitesse à gauche et intensité des vitesses et ligne de courant à gauche. Distance entre deux bulles consécutives de 80 mm. $Re = 1,26$. $T = 0,9$ s.

Contrairement au champ de vitesses précédent, la fin du sillage de la bulle précédente et le commencement du front de la bulle inférieure se superposent. Mais ces zones correspondent à des zones d'intensité de vitesse secondaire et n'ont aucun impact sur la vitesse des bulles dans le train. L'interaction n'est pas suffisante pour influencer la vitesse des bulles.

Il est à noter que la forme reste inchangée par rapport à une bulle isolée et que la recirculation globale commence à s'effectuer au sein de la colonne de fluide.

- Distance entre deux bulles $d = 70$ mm. Vitesse ascensionnelle de $0,09$ m/s

En diminuant encore la distance entre les bulles au sein du train régulier, on obtient le champ de vitesse représenté sur la figure II.44.

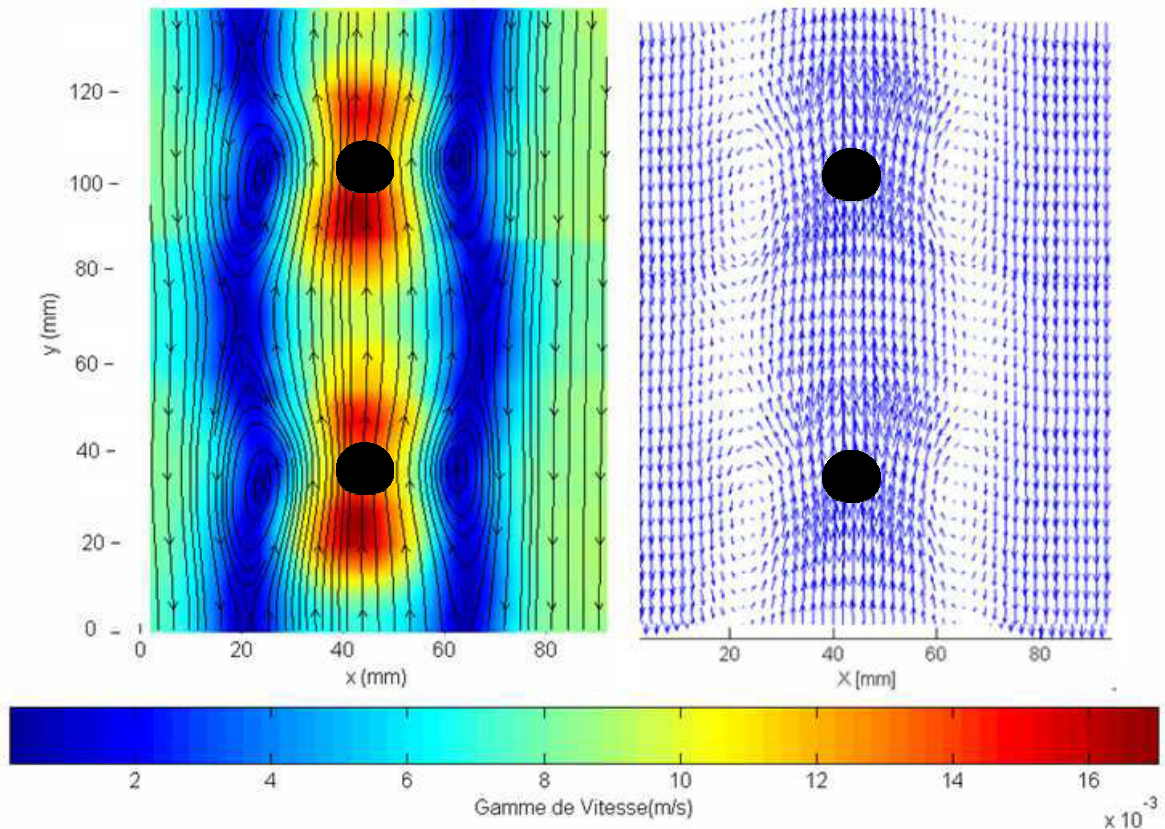


Figure II.44. Train de bulles en ascension dans du HV45 65%, pour des bulles de volume $300 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ (diamètre équivalent des bulles de 8 mm). Champ de vecteur vitesse à gauche et intensité des vitesses et ligne de courant à gauche. Distance entre deux bulles consécutives de 70 mm. $Re = 1,26$. $T = 0,8$ s.

A ce stade du rapprochement, les deux zones (sillage de la bulle supérieure et front de la bulle inférieure) secondaires sont superposées et les zones primaires sont pratiquement en contact. Cependant, ni la vitesse, ni la forme de la bulle sont affectées. Il semblerait donc que la superposition des zones de champs de vitesse secondaires n'ait pas d'impact sur les bulles. Il convient donc diminuer encore la distance pour arriver à une superposition du sillage primaire et du front de la bulle pour voir évoluer la vitesse ou la forme de la bulle.

- Distance entre deux bulles $d = 60$ mm. Vitesse ascensionnelle de $0,11$ m/s.

A partir de cette distance entre deux bulles consécutives, on observe une accélération des bulles. La vitesse passe de $0,09$ m/s à $0,11$ m/s. On observe également une déformation des bulles, qui deviennent plus allongées. Le champ de vitesse et les lignes de courant sont représentés sur la figure II.45.

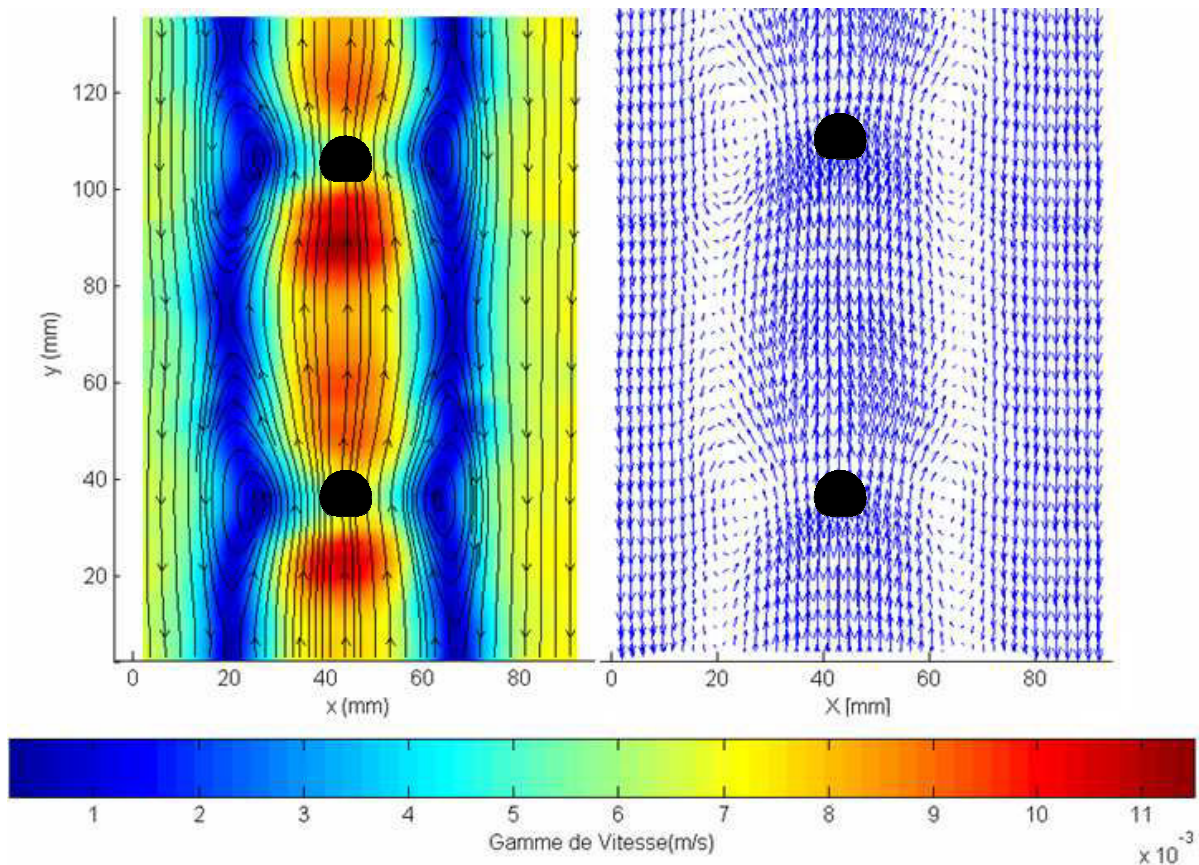


Figure II.45. Train de bulles en ascension dans du HV45 65%, pour des bulles de volume $300 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ (diamètre équivalent des bulles de 8 mm). Champ de vecteur vitesse à gauche et intensité des vitesses et ligne de courant à gauche. Distance entre deux bulles consécutives de 60 mm. $Re = 1,54$. $T = 0,55$ s.

Cette figure nous permet d'observer le début du recouvrement du sillage primaire de la bulle supérieure et du front de la bulle inférieure conduisant à une augmentation de la vitesse de la bulle. Il existe donc une distance mesurable à partir de laquelle les interactions entre les bulles apparaissent et influencent tant la forme que la vitesse des bulles.

- Distance entre deux bulles $d = 50$ mm. Vitesse ascensionnelle de 0,14 m/s.

En diminuant encore la distance entre les bulles au sein du train régulier, on obtient le champ de vitesse représenté sur la figure II.46.

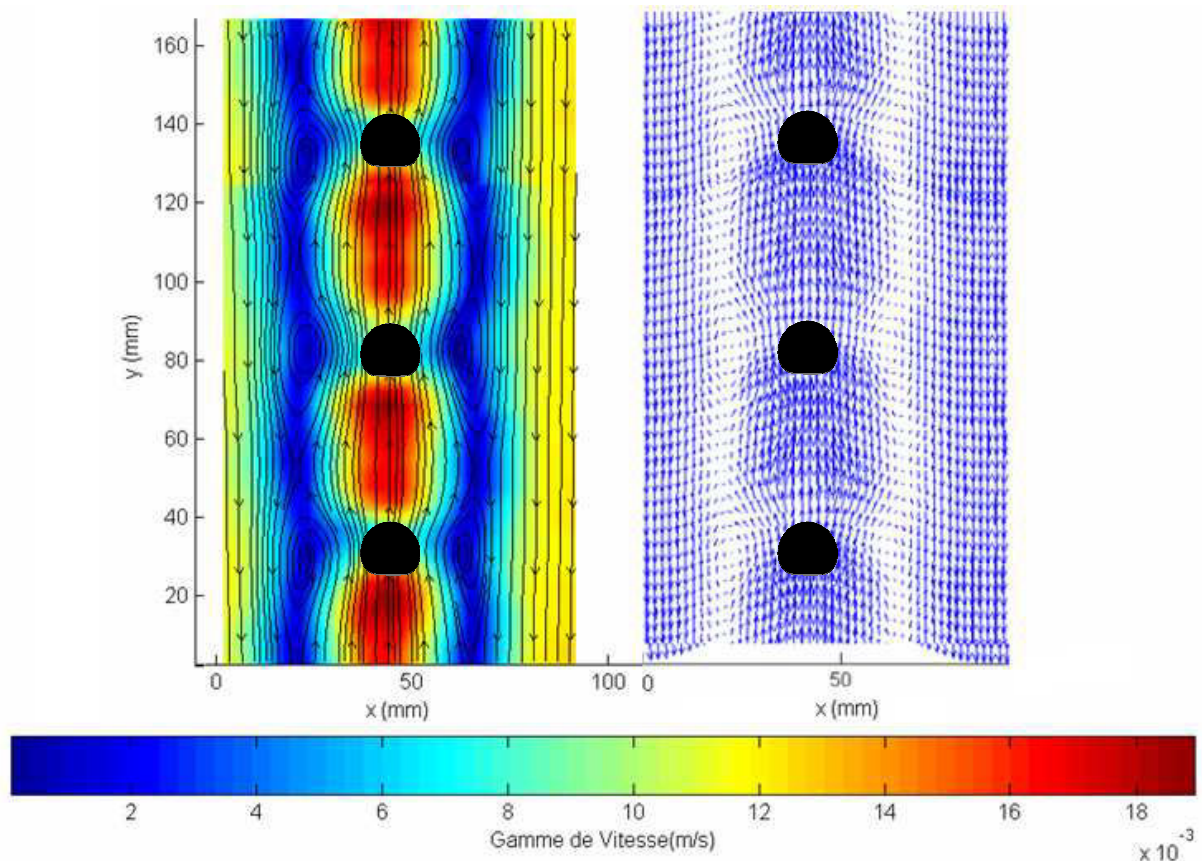


Figure II.46. Train de bulles en ascension dans du HV45 65%, pour des bulles de volume $300 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ (diamètre équivalent des bulles de 8 mm). Champ de vecteur vitesse à gauche et intensité des vitesses et ligne de courant à gauche. Distance entre deux bulles consécutives de 50 mm. $Re = 1,96$. $T = 0,35$ s.

La vitesse de la bulle augmente cette fois de 0,11 m/s à 0,14 m/s. Le recouvrement du sillage primaire et du front devient de plus en plus important. Cependant, on observe toujours une vitesse plus grande dans le haut de cette zone d'écart entre les bulles. L'excentricité (L/H) des bulles diminue encore et les bulles s'allongent davantage (H augmente).

- Distance entre deux bulles $d = 40$ mm. Vitesse ascensionnelle de 0,17 m/s.

En diminuant encore la distance entre les bulles au sein du train régulier, on obtient le champ de vitesse représenté sur la figure II.47.

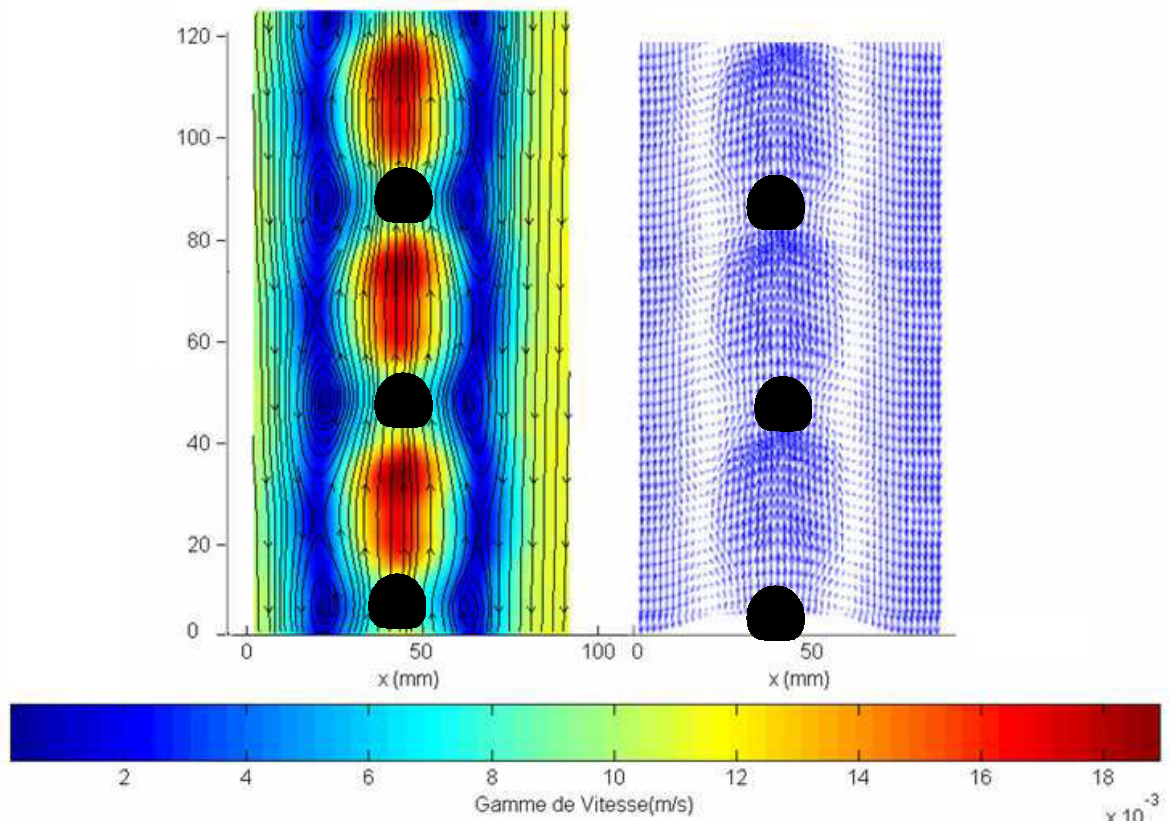


Figure II.47. Train de bulles en ascension dans du HV45 65%, pour des bulles de volume $300 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ (diamètre équivalent des bulles de 8 mm). Champ de vecteur vitesse à gauche et intensité des vitesses et ligne de courant à gauche. Distance entre deux bulles consécutives de 40 mm. $Re = 2,38$. $T = 0,25$ s.

Comme le montre la figure II.47, le sillage et le front sont quasiment confondus. Les bulles sont de plus en plus étirées et la vitesse de la bulle augmente encore jusqu'à 0,17 m/s.

- Distance entre deux bulles $d = 30$ mm. Vitesse ascensionnelle de 0,19 m/s.

On observe sur la figure II.48 un recouvrement total du front et du sillage. On ne peut plus distinguer le sillage de la première bulle du front de la seconde, ils ne forment plus qu'une seule zone.

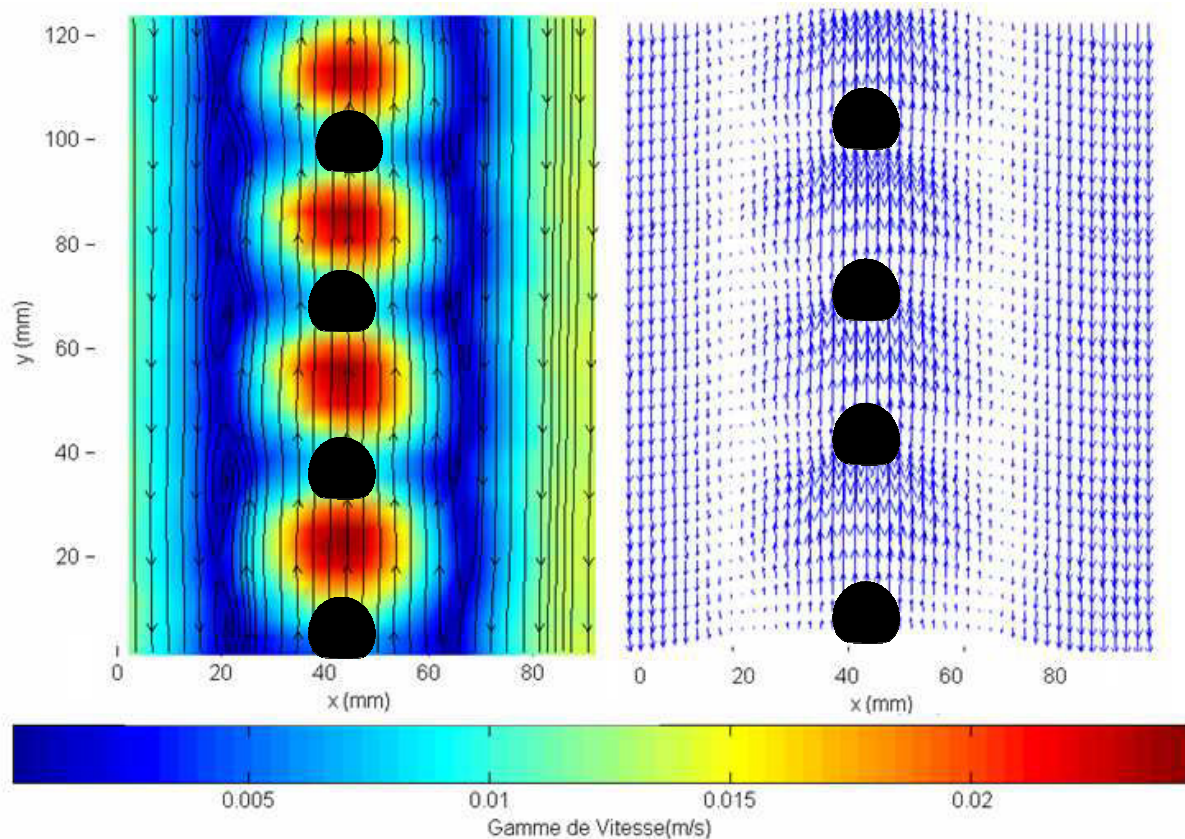


Figure II.48. Train de bulles en ascension dans du HV45 65%, pour des bulles de volume $300 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ (diamètre équivalent des bulles de 8 mm). Champ de vecteur vitesse à gauche et intensité des vitesses et ligne de courant à droite. Distance entre deux bulles consécutives de 30 mm. $Re = 2,66$. $T = 0,15$ s.

La bulle atteint dans ce cas une vitesse de 0,19 m/s soit plus du double de sa vitesse initiale en l'absence d'interaction. Ceci peut s'expliquer par le fait que le sillage et le front soient totalement recouverts. La forme de la bulle est encore plus étirée, son excentricité est quasiment divisée par deux comparée à celle obtenue en absence d'interaction. La recirculation globale est très importante et traduit un transfert de matière bien plus important au sein de la colonne. A ce stade, le train de bulles régulier atteint un état critique.

- $d < 25$ mm - Vitesses ascensionnelles de bulles supérieures à 0,2 m/s

Si on diminue encore la distance entre deux bulles consécutives, on atteint une certaine limite critique de la distance à partir de laquelle le train perd son caractère régulier et de nombreux effets de coalescence apparaissent. Les interactions entre les deux bulles sont tellement fortes qu'une des bulles inférieures rattrape la bulle précédente et finit par coalescer avec la bulle qui la précède comme le montre la figure II.49.

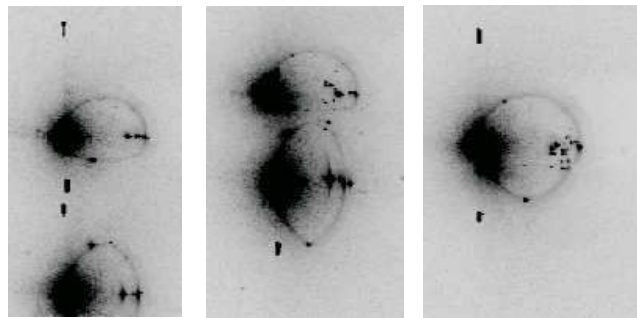


Figure II.49. Coalescence en ligne dans un train de bulles de $200 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ lorsque la distance critique est atteinte.

Cette coalescence va avoir pour effet de former des bulles plus grosses qui se déplaceront donc à des vitesses plus grandes et qui engendreront de ce fait des effets de coalescence chaotique au sein du train de bulles.

Nous constatons donc que des interactions entre bulles sont obtenues lorsque celles-ci sont suffisamment proches et qu'elles sont d'autant plus importantes que la distance séparant les bulles est faible. On observe en effet ces interactions grâce aux variations de l'intensité des vecteurs vitesse. Pour une période d'injection élevée (distance entre deux bulles élevée), on voit que les 2 bulles successives ont un comportement proche de celui des bulles isolées car on distingue une séparation nette entre le sillage de la première bulle et le front de la deuxième. Cette séparation est représentée par une zone bleue correspondant à de très faibles vecteurs vitesses donc à de très faibles interactions. Ensuite, plus on diminue la période d'injection, plus les bulles sont proches l'une de l'autre et plus cette séparation disparaît. On observe en effet une augmentation progressive de la vitesse du liquide entre les deux bulles, et ce jusqu'à la coalescence des bulles. Ces interactions ont donc un effet sur la vitesse de la bulle mais aussi sur sa forme.

II.3.5. Influence des interactions sur la forme de la bulle

On remarque que, dans un fluide donné, pour un volume de bulle fixé, la forme des bulles évolue avec la période d'injection (et *a fortiori* la distance entre deux bulles). On représente alors l'évolution de la forme des bulles en fonction de la distance entre deux bulles consécutives pour les solutions de HV45 50% et 65% sur la figure II.50.

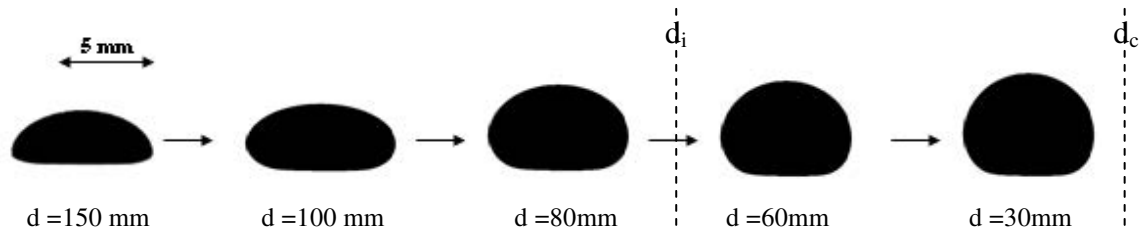


Figure II.50. Evolution de la forme des bulles avec les interactions entre bulles pour des bulles de $200 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ au sein d'un train dans une solution HV45 50%.

On observe donc que, dans le Emkarox 50% et 65% massique, plus la distance entre deux bulles est faible (faible période d'injection), plus la bulle s'étire (L/H diminue) et plus le bas de la bulle s'aplatit.

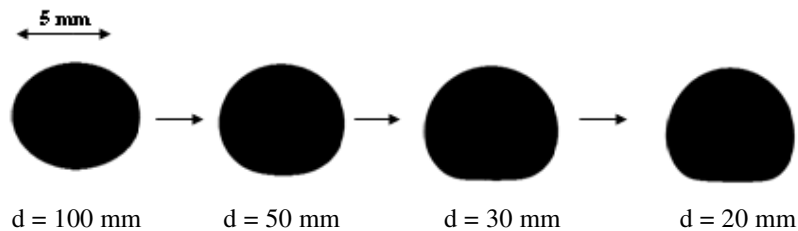


Figure II.51. Evolution de la forme des bulles avec les interactions entre bulles pour des bulles de $200 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ au sein d'un train dans une solution HV45 65%.

On observe deux valeurs remarquables de la distance. La première est celle qui correspond au début des interactions entre bulles, notée d_i et la seconde correspond à la distance critique entre deux bulles avant coalescence, que l'on nomme d_c . Ces deux distances caractéristiques ne sont pas les mêmes dans les deux fluides, elle semblent dépendre de la viscosité du fluide.

De même, la forme finale de la bulle avant coalescence est également différente selon le fluide utilisé. Cependant, les bulles ne tendent pas vers la même forme finale.

Ces observations peuvent être vérifiées expérimentalement en étudiant l'évolution de la hauteur et de la largeur de la bulle pour différentes distances d'interactions. Cette analyse a été effectuée dans les 4 fluides : Emkarox 35, 50, 65 et 80% massique. L'évolution de l'excentricité en fonction du nombre de Reynolds est présentée sur la figure II.52.

On observe effectivement que, quel que soit le fluide, plus les bulles sont proches, plus leurs vitesses augmentent et plus la bulle s'étire (la hauteur augmente et l'excentricité diminue fortement). Lorsque l'on considère un train de bulles où les bulles sont en interaction, la bulle subit l'influence du sillage de la bulle qui la précède et tend donc à s'étirer. Mais elle subit aussi l'influence du front de la bulle qui la suit, ce qui tend alors à aplatir le bas de la bulle. On remarque que toutes les bulles atteignent une valeur d'excentricité limite différente lorsque la distance critique est atteinte.

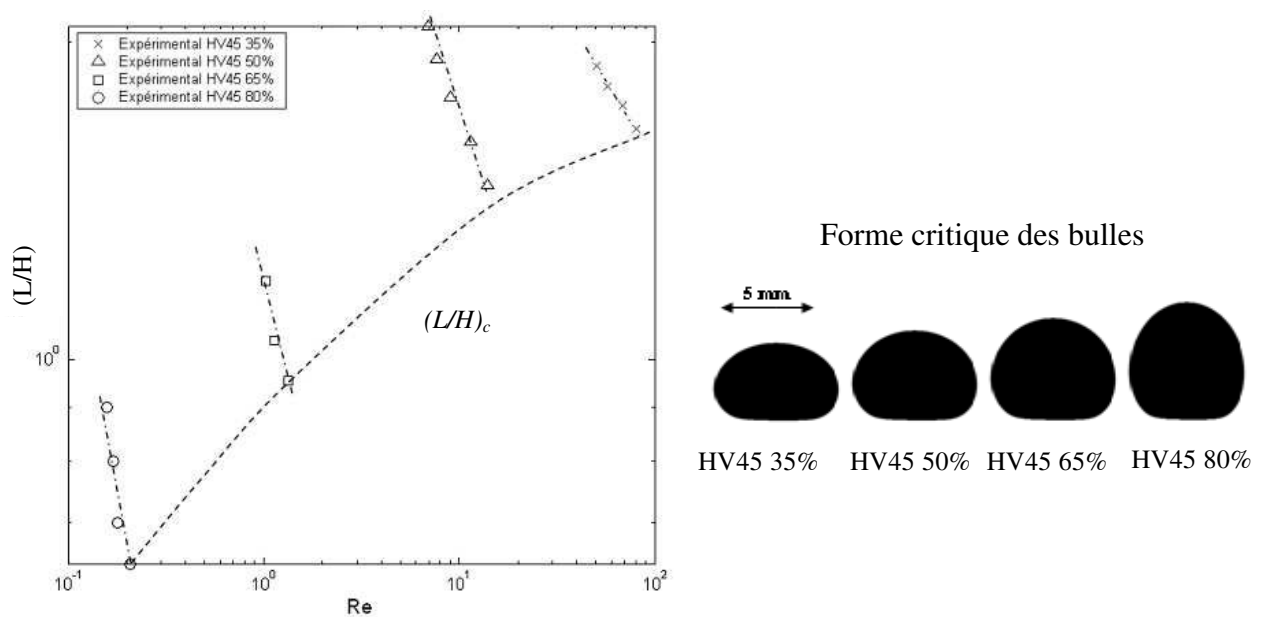


Figure II.52. Evolution de l'excentricité des bulles au sein d'un train de bulle régulier de bulles de $200 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ lorsque les interactions interviennent, en fonction du nombre de Reynolds.

Il semblerait, d'après les 4 systèmes étudiés, qu'il existe une relation entre l'excentricité critique atteinte juste avant coalescence et les propriétés visqueuses du fluide et la vitesse de la bulle. Pour tenter d'approfondir la détermination de cette relation, on se propose d'étudier la forme de la bulle à la distance critique pour différentes tailles de bulles (5, 7 et 10 mm de diamètre équivalent) et pour les différents fluides testés précédemment. L'évolution de l'excentricité mesurée à la distance minimale possible pour que le train existe en fonction du nombre adimensionnel de Reynolds de la bulle isolée est reportée sur la figure II.53.

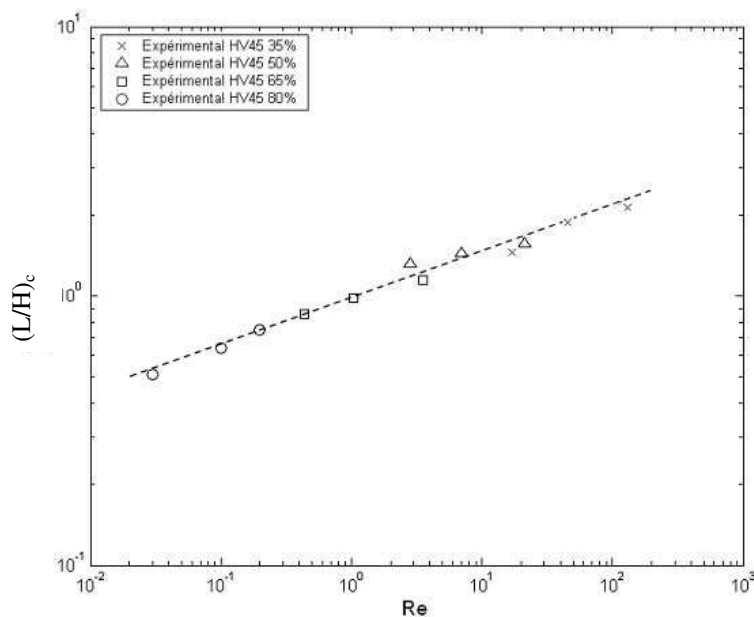


Figure II.53. Evolution de l'excentricité critique des bulles au sein d'un train de bulles régulier lorsque les interactions interviennent, en fonction du nombre de Reynolds.

La courbe obtenue permet de montrer qu'il y a une relation directe entre l'excentricité minimale de la bulle qui intervient à la distance minimale entre deux bulles consécutives et le nombre de Reynolds de la bulle isolée (Re_∞) suivant la relation II.41.

$$\left(\frac{L}{H}\right)_c = (Re_\infty)^{\frac{1}{6}} \quad (II.41)$$

Cette relation permet d'obtenir un critère basé sur les propriétés géométriques de la bulle donnant la transition entre l'apparition de la coalescence des bulles et l'existence d'un train de bulles régulier. Ce critère géométrique laisse supposer qu'il peut exister d'autres critères basés sur la distance entre les bulles, permettant de mettre en évidence l'apparition de la coalescence au sein du train ou encore l'apparition des interactions entre bulles conduisant à leur accélération.

II.3.6. Influence des interactions entre les bulles sur la vitesse de la bulle

D'après ce qui précède, les mesures de champs de vitesse de liquide ainsi que les intensités de vitesses résumées sur la figure II.54, montrent que l'interaction entre deux bulles consécutives conduit à leurs accélération, en dessous d'une certaine distance séparant ces bulles.

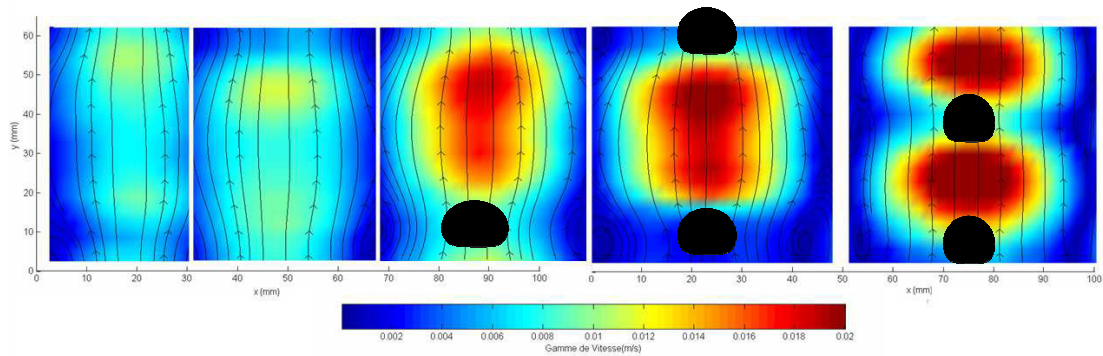


Figure II.54. Mesures par PIV de la vitesse entre deux bulles consécutives dans un train régulier de bulles de $200 \times 10^{-9} \text{ m}^3$.

La mesure des champs de vitesse ainsi que l'étude de la forme des bulles ont pu mettre en évidence deux distances importantes : d_i la distance à partir de laquelle on observe des interactions, et d_c , la distance à partir de laquelle le train régulier ne peut plus être maintenu en raison de la coalescence intervenant dans le train de bulles.

Pour différentes tailles de bulles dans du HV45 50%, on reporte, sur la figure II.55, l'évolution de la vitesse des bulles en fonction de la distance entre deux bulles consécutives pour trois tailles de bulles au sein du train. Pour les trois tailles de bulles, on retrouve la distance caractéristique d_i à partir de laquelle les bulles rentrent en interaction et leurs vitesses augmentent.

Au delà de cette valeur d_i , la vitesse des bulles est constante, et en deçà elle augmente linéairement. De plus la, la distance d'interaction d_i augmente avec la taille des bulles.

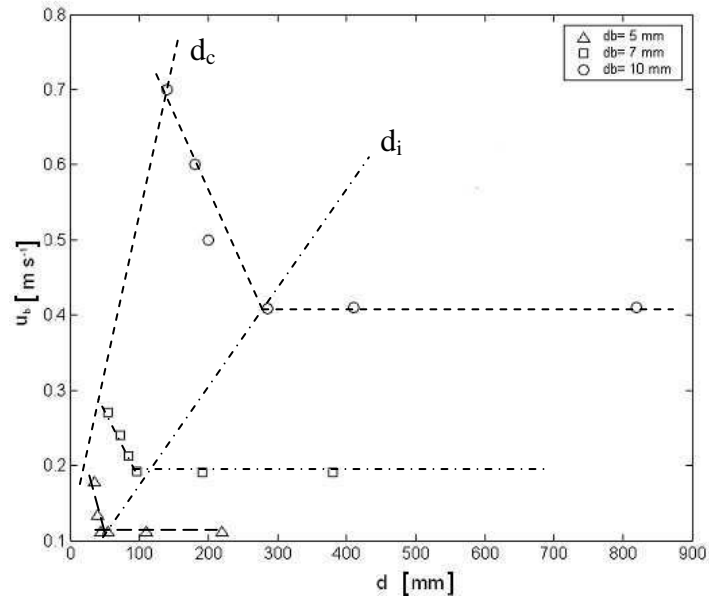


Figure II.55. Evolution de la vitesse des bulles dans le train en fonction de la distance les séparant pour trois tailles de diamètres équivalents de bulles dans du HV45 50%.

Pour différents fluides visqueux (figure II.56) et pour une taille de bulle donnée, on retrouve les mêmes tendances, la distance caractéristique d'interaction d_i diminue lorsque la viscosité du liquide augmente.

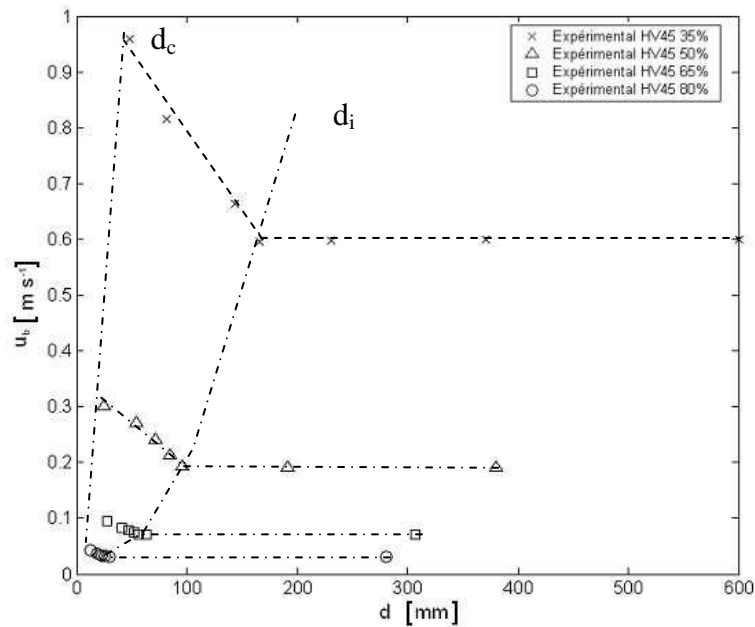


Figure II.56. Evolution de la vitesse des bulles dans le train en fonction de la distance les séparant pour quatre fluides visqueux différents pour un diamètre équivalent de bulle de 7 mm.

Pour l'ensemble des 4 fluides et des trois tailles de bulles, nous avons évalué les distances d_i et d_c , le tableau II.03 résume l'ensemble de ces résultats.

HV ₄₅	μ_L (Pa.s)	d_b (mm)	ρ_L (kg/m ³)	u_b (m/s)	Re_∞	d_i (mm)	d_c (mm)
35%	0,09	7,10	1060	0,47	39,30	152,7	31,8
35%	0,09	10,00	1060	0,99	116,60	380,2	58,7
35%	0,09	5,00	1060	0,25	14,72	83,0	19,8
50%	0,20	7,10	1030	0,19	6,95	96,0	24,8
50%	0,20	10,00	1030	0,41	21,12	185,0	39,5
50%	0,20	5,00	1030	0,11	2,83	55,0	14,2
65%	0,50	7,10	1050	0,07	1,04	51,4	17,3
65%	0,50	10,00	1050	0,17	3,57	95,5	30,1
65%	0,50	5,00	1050	0,04	0,44	29,4	10,9
80%	2,00	7,10	1010	0,03	0,10	22,0	12,0
80%	2,00	10,00	1010	0,04	0,20	41,7	19,3
80%	2,00	5,00	1010	0,01	0,03	10,2	6,7

Tableau II.03. Evolution des distances d'interaction d_i et de coalescence d_c pour les différents systèmes étudiés.

Ces résultats confirment les précédentes observations. Les deux distances caractéristiques des interactions entre bulles et de coalescence augmentent en fonction de la taille des bulles et diminuent avec la viscosité du fluide. La taille des bulles étant liée à leur vitesse, on introduit Re_∞ , le nombre de Reynolds d'une bulle isolée (distance infinie entre deux bulles). Pour l'ensemble des distances d_i mesurées, l'évolution du rapport d_i/d_b en fonction du nombre de Reynolds infini est porté sur la figure II.57. On observe bien une évolution du type loi de puissance entre le rapport d_i/d_b et le nombre de Reynolds de la bulle isolée. La relation II.42 traduit de façon très satisfaisante cette évolution avec une erreur relative de 3% sur l'ensemble des résultats.

$$\frac{d_i}{d_b} = 7Re_\infty^{\frac{1}{3}} \quad (II.42.)$$

$$Re \in [0,03-116]$$

Ainsi la distance caractéristique d'apparition des interactions entre deux bulles consécutives augmente exponentiellement avec le nombre de Reynolds de la bulle isolée.

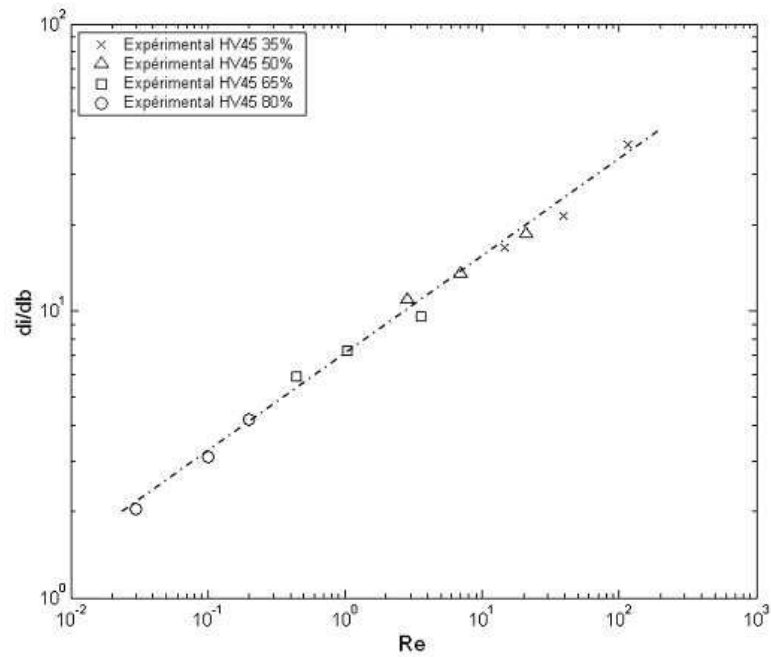


Figure II.57. Evolution de la distance d'interaction entre deux bulles et le nombre de Reynolds de la bulle isolée

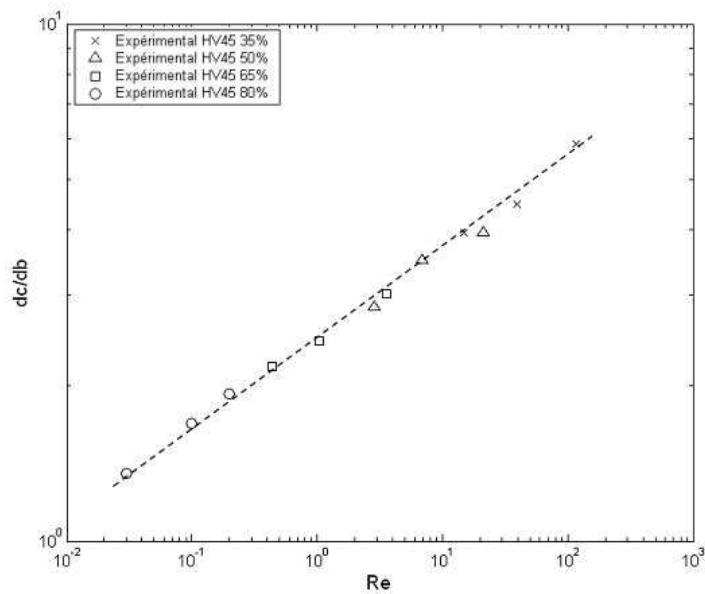


Figure II.58. Evolution de la distance critique entre deux bulles et le nombre de Reynolds

De la même façon, l'évolution du rapport d_c/d_b en fonction du nombre de Reynolds de la bulle isolée reportée sur la figure II.58 montre que la distance critique entre deux bulles

augmente exponentiellement avec le nombre de Reynolds de la bulle isolée selon la relation suivante :

$$\frac{d_c}{d_b} = 2,5 \text{Re}_\infty^{\frac{1}{6}} \quad (II.43)$$

$$\text{Re} \in [0,03-116]$$

Il est très intéressant de voir que l'exposant de la loi de puissance présente dans l'équation II.43 est le même que celui trouvé dans le critère géométrique basé sur la forme (Eq. II.41) .

De plus il est très intéressant de noter la forte relation entre la distance critique correspondant à l'apparition des phénomènes de coalescence et la longueur du sillage primaire (zone de forte intensité des vitesses dans le sillage de la bulle) de la bulle en ascension et d'un autre coté la distance d'interaction avec le sillage secondaire. Comme le montrent les mesures par PIV, dès que la bulle « suiveuse » se trouve dans le sillage secondaire, elle est accélérée et dès lors qu'elle pénètre dans le sillage primaire de la bulle « de tête », les interactions sont très grandes et conduisent à la coalescence. Pour s'en assurer, on mesure les longueurs du champs de vitesse primaire et secondaire pour les bulles isolées précédemment étudiées :

HV ₄₅	μ (Pa.s)	d _b (mm)	ρ (kg/m ³)	u (m/s)	Re	(Distance sillage II)/d _b	(Distance sillage I)/d _b
35%	0,09	7,10	1060	0,47	39,30	4,20	21,50
35%	0,09	10,00	1060	0,99	116,60	5,50	40,00
35%	0,09	5,00	1060	0,25	14,72	3,50	17,50
50%	0,20	7,10	1030	0,19	6,95	3,50	13,50
50%	0,20	10,00	1030	0,41	21,12	4,50	20,00
50%	0,20	5,00	1030	0,11	2,83	3,00	10,50
65%	0,50	7,10	1050	0,07	1,04	2,80	6,50
65%	0,50	10,00	1050	0,17	3,57	3,50	10,50
65%	0,50	5,00	1050	0,04	0,44	2,00	6,00
80%	2,00	7,10	1010	0,03	0,10	1,50	2,00
80%	2,00	10,00	1010	0,04	0,20	2,00	4,00
80%	2,00	5,00	1010	0,01	0,03	1,20	2,50

Tableau II.04. Evolution des longueurs des sillages primaire et secondaire pour les différents systèmes étudiés.

Les longueurs de sillage primaires et secondaire (déterminées par PIV) sont reportées pour les différents systèmes étudiés en fonction du nombre de Reynolds d'une bulle isolée. Les distances d'interaction et de coalescence (déterminées en utilisant la caméra rapide) ont également été reportées sur le graphe pour les mêmes systèmes.

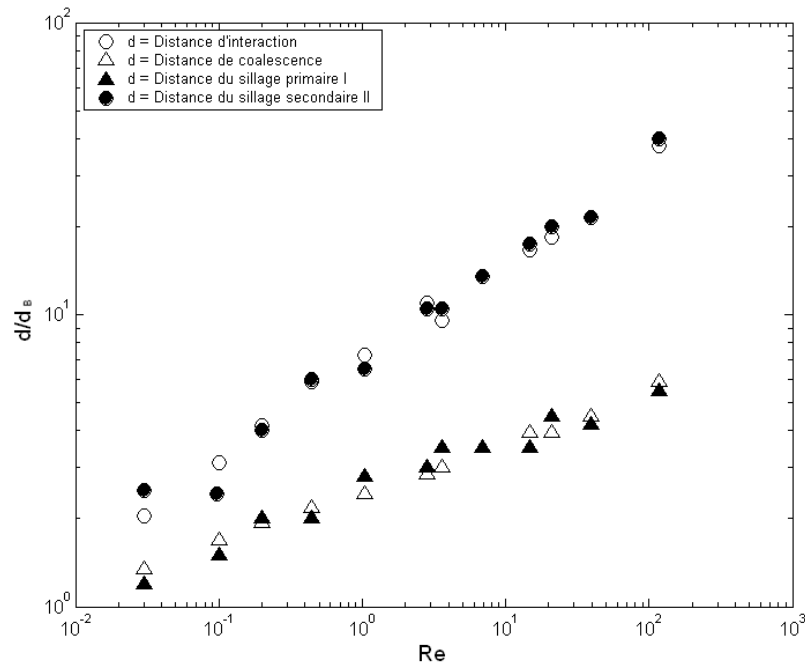


Figure II.59. Concordance entre les distances critique et d'interaction et des sillages primaire I et secondaire II.

Conformément aux remarques précédentes, on constate une très bonne concordance entre ces différentes grandeurs. Ainsi l'existence de ces deux distances caractéristiques semble tirer ses origines des sillages primaires et secondaires des bulles.

II.3.7 Evaluation de la vitesse des bulles au sein du train

Compte tenu de ce qui précède concernant la concordance entre les distances d_i et d_c et les longueurs de sillages primaire et secondaire, on peut dès lors, tenter de proposer une corrélation pour estimer la vitesse de la bulle selon ses différentes interactions en fonction des propriétés physico-chimiques du fluide en question.

- Pour : $\frac{d}{d_b} > 7Re_\infty^{\frac{1}{3}}$, alors il n'y a pas d'interactions dans le train ; $Re = Re_\infty$.

Puisque la vitesse de Hadamard traduit parfaitement la vitesse de la bulle isolée dans notre cas, on arrive à la condition en l'absence d'interaction entre bulles dans le train :

$$d_i = 3d_B^2 \sqrt[3]{\frac{\rho_L^2 g}{\mu_L^2}} \quad \text{et} \quad u_B = \frac{1}{12} \frac{\rho_L g d_B^2}{\mu_L} \quad (II.47)$$

- Pour : $2,5 \text{Re}_\infty^{\frac{1}{6}} < \frac{d}{d_b} < 7 \text{Re}_\infty^{\frac{1}{3}}$, alors les bulles sont en interaction. Leur vitesse augmente

alors avec la diminution de la distance entre les bulles. On introduit alors la variable adimensionnelle suivante permettant de caractériser le début des interactions :

$$X = \frac{d}{d_b} \frac{\text{Re}_\infty^{\frac{1}{3}}}{7} \quad (II.48)$$

Cette variable vaut 1 lorsque les interactions commencent. Lorsque l'on trace l'évolution du nombre de Reynolds sur le nombre de Reynolds d'une bulle isolée en fonction de cette variable on obtient une constante si $X > 1$ et une exponentielle décroissante si $X < 1$ comme le montre la figure II.60. Pour l'ensemble des résultats obtenus, cela conduit à une corrélation permettant d'estimer la vitesse de la bulle en interaction avec les autres bulles avec précision :

$$\text{Re} = 1,89 \cdot \text{Re}_\infty^{1,1} \left(\frac{d}{d_B} \right)^{-\frac{1}{3}} \quad (II.49)$$

L'erreur relative de cette corrélation est inférieure à 10% pour une centaine de points expérimentaux.

- Pour : $\frac{d}{d_b} < 2,5 \text{Re}_\infty^{\frac{1}{6}}$, l'interaction entre les bulles devient trop grande et conduit à la

coalescence des bulles. On en déduit le critère de la distance maximale paramétrable entre deux bulles pour obtenir un train de bulles régulier en fonction des propriétés physico-chimiques du fluide et de la bulle.

$$d_c = 2,5 d_B \left(\frac{\rho_L^2 g d_B^3}{12 \cdot \mu_L^2} \right)^{\frac{1}{6}} \quad (II.50)$$

La figure II.60 permet de résumer l'évaluation de la vitesse des bulles dans le train :

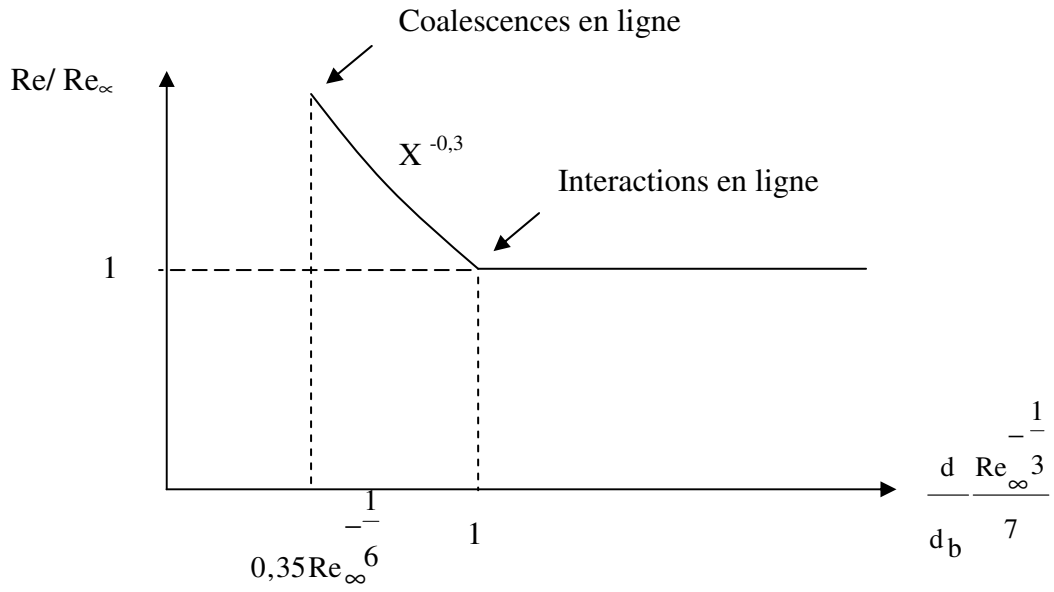


Figure II.60. Evolution du ratio Re/Re_∞ en fonction de la variable adimensionnelle X

II.3.8. Conclusion

En conclusion, nous pouvons affirmer qu'il existe trois régimes différents pour l'ascension des bulles en ligne :

- ascension sans interactions entre les bulles,
- ascension avec interactions entre les bulles,
- ascension avec phénomène de coalescence.

La visualisation par PIV permet de se rendre compte de l'existence de ces trois régimes et permet de comprendre leurs apparitions. Les champs de vitesse des bulles lors de leur rapprochement ont pu être mesurés et ont permis de comprendre le phénomène d'accélération des bulles. De plus, à partir des vitesses de bulles mesurées, on a pu mettre en place deux critères permettant de caractériser ces différents régimes comme le montre la figure II.61.

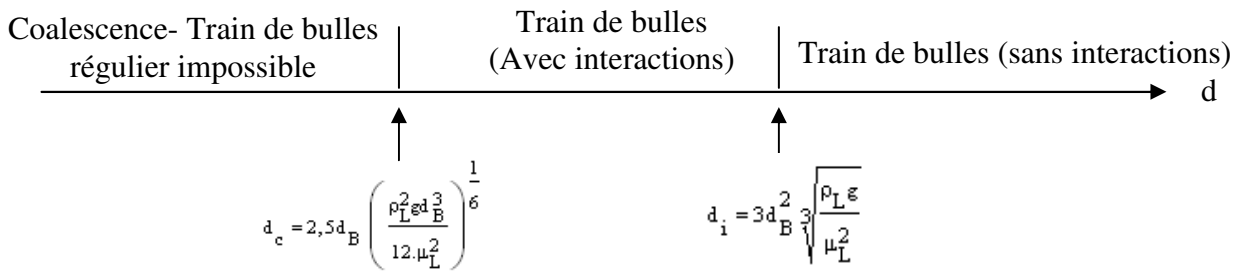


Figure II.61. Condition d'existence et d'interaction des trains de bulles de diamètre d_B en fonction de la distance d entre deux bulles. $Re \in [0,03-116]$

Grâce à la combinaison des mesures réalisées par PIV et par caméra rapide, nous avons pu mettre en évidence l'incidence des sillages primaire et secondaire des bulles sur les deux distances caractéristiques d_i et d_c . En effet, dès lors que la bulle rentre dans le sillage secondaire de la bulle précédente, on observe une augmentation de la vitesse, et dès que celle-ci rentre dans le sillage primaire, cela conduit à la coalescence des deux bulles. Cette étude a donc permis de mettre en évidence des paramètres permettant d'éviter ou de renforcer les interactions entre bulles dans des fluides visqueux, et de mettre en évidence les champs de vitesses relatifs à ces interactions. Il reste encore à approfondir cette étude dans le but de comprendre le phénomène de coalescence en lui même et le visualiser par PIV ou μ -PIV.

Chapitre II

II.4. Dynamique des bulles à l'échelle microscopique

Les écoulements sont généralement le siège de transferts de chaleur et de matière, le plus souvent accompagnés de réactions chimiques. Dans ce contexte, l'efficacité de ces transferts et transformations constitue un enjeu primordial qui dépend en premier lieu de la maîtrise des phénomènes interfaciaux entre les phases présentes. En effet, de nombreuses opérations en Génie des Procédés ont besoin de mettre en contact direct plusieurs fluides pour favoriser la réaction chimique ou le transfert de matière. Ces échanges ayant lieu aux interfaces entre ces fluides, ils sont donc d'autant plus importants que la surface d'échange ($S_{\text{transferts}}$) par unité de volume considérée (V_{fluides}) est grande, l'objectif étant donc d'avoir un rapport $S_{\text{transferts}} / V_{\text{fluides}}$ aussi grand que possible. Soit L l'échelle de longueur à laquelle les échanges interviennent, le terme $S_{\text{transferts}}$ étant proportionnel à L^2 et le terme V_{fluides} à L^3 , le rapport $S_{\text{transferts}} / V_{\text{fluides}}$ est donc proportionnel à $1/L$. L'intérêt de travailler à des dimensions faibles est clair : plus L est petit, et plus le rapport $S_{\text{transferts}} / V_{\text{fluides}}$ est grand, rendant le transfert aux interfaces le plus élevé possible.

Dans l'ensemble, nos connaissances sont encore largement limitées à une description assez globale à l'échelle macroscopique et l'étude à des échelles très faibles n'est pas si évidente, les effets capillaires et visqueux sont en effet prédominants dans ce cas et les écoulements sont généralement laminaires. A titre de remarque, on peut se demander si, à des échelles aussi petites, l'approche de la mécanique des milieux continus reste valable. Rappelons que cette approche est valable tant que le nombre de Knudsen est très petit devant un. Le nombre de Knudsen est un nombre adimensionnel permettant de déterminer le régime d'écoulement (en terme de continuité du milieu et non en terme de turbulence) d'un fluide, défini par le rapport d'une longueur λ caractérisant les phénomènes microscopiques et d'une longueur L caractérisant les phénomènes macroscopiques. La validité des équations de Navier-Stokes est mise en défaut pour un nombre de Knudsen dépassant 0,001. Dans le cas d'un écoulement diphasique gaz-liquide dans un canal de 500 micromètres de diamètre, on peut prendre comme libre parcours moyen de l'air ($\lambda = 1,8 \cdot 10^{-7}$ m) et on choisit $L = 500 \cdot 10^{-6}$ m. Le nombre de Knudsen de l'ordre de 0,00036 est alors très inférieur à l'unité, ce qui permet de se situer

dans le domaine de validité de l'approche des milieux continus. Typiquement, le glissement apparaît à la paroi à $L < 10 \mu\text{m}$.

Certaines réactions en milieu diphasique sont très dangereuses et difficilement réalisables à grande échelle en raison de la toxicité ou le coût élevé des produits qu'elles consomment. Il est donc intéressant d'avoir des quantités de produits les plus faibles possibles. C'est pourquoi, pour toutes ces raisons, de nombreux travaux se sont tournés ces dernières décennies vers les écoulements diphasiques évoluant dans des conduites millimétriques et plus récemment micrométriques. Dans cette partie, nous nous intéresserons au comportement de bulles à l'échelle microscopique. A cette échelle les forces intervenant ne sont plus les mêmes que celles qu'on rencontre à l'échelle mésoscopique. Les conditions de fermeture des simulations sont encore mal connues et il faut apporter de nombreuses informations détaillées de la formation des bulles ou de la coalescence pour les valider et améliorer ainsi la compréhension de ces phénomènes à cette échelle.

II.4.1 Nucléation de bulles et croissance à l'échelle microscopique

II.4.1.1. Revue bibliographique

La nucléation de bulles est un processus intervenant dans de nombreux procédés industriels. On peut citer par exemple la dévolatilisation dans les polymères (Yang *et al.*, 1997), la production en anaérobie de bulles de biogaz dans un bioréacteur (Wu *et al.*, 2006), la production de mousses de polymères au cours du moulage par soufflage, (Amon et Denson, 1984), le procédé de purification du silicone (Wienecke *et al.*, 2005), l'élaboration de plastique (Xu *et al.*, 2005), ou encore les boissons gazeuses (Liger-Belair *et al.*, 2002 ; Barker *et al.*, 2002).

Le mécanisme lié à la nucléation et la croissance des bulles sont des informations importantes quant au dimensionnement de nombreux procédés industriels (Chhabra, 1992). Aux abords des puits de pétrole, l'exploitation des gisements provoque une perte de charge qui peut être telle que la pression à cet endroit devienne inférieure à la pression de bulle. La nucléation entraîne alors l'apparition d'une phase gazeuse qui peut s'écouler sous l'effet du gradient de

pression qui se crée. Dans ce cas, l'écoulement devient diphasique et la productivité des puits peut diminuer de façon significative (Betata et Marle, 1998). Le phénomène apparaît également lors des éruptions volcaniques (l'éruption du Vésuve, Italie, à l'origine de la destruction des villes de Pompéi, Herculaneum, Oplontis et Stabies, ensevelies le 24 août 79) ou encore dans les processus d'ex-solution (comme le 21 août 1986, le lac Nyos, au nord-ouest du Cameroun, a libéré environ un kilomètre cube de gaz carbonique CO_2 provoquant la mort de plus de 1700 personnes ainsi que de nombreux animaux).

Des applications industrielles plus récentes, mises en place par Peng *et al.* (2000), se sont focalisées sur la nucléation de bulles dans les microcanaux en chauffant et en étudiant le transfert de chaleur au sein de la conduite ainsi que la formation de bulles.

La théorie de la nucléation classique suppose que la nucléation de la bulle est amorcée par le rassemblement de particules du soluté en nombre suffisant pour créer un noyau gazeux de rayon supérieur au rayon critique (Abraham, 1974; Blander, 1975; Jones *et al.*, 1999). Après la nucléation, la croissance de la bulle intervient ; c'est un processus complexe qui fait intervenir des interactions entre la matière, l'écoulement et les transferts de chaleur. Habituellement, les équations régissant ces interactions sont résolues numériquement comme un problème de formation de bulles (Street *et al.*, 1971, Patel, 1980, Shafi et Flumerfelt, 1997).

Une opération très importante dans le processus de fabrication des polymères est la dévolatilisation (Barraud, 1998). Au cours de cette opération, les polymères sont débarrassés des espèces volatiles. Ces espèces résiduelles de faible masse moléculaire peuvent être des monomères n'ayant pas réagi, des sous-produits, des solvants ou des impuretés. La dévolatilisation est nécessaire en particulier pour la polymérisation par condensation pour obtenir des masses molaires élevées. Elle est aussi utile pour assurer un transport sûr des matériaux polymères. Le procédé de dévolatilisation implique l'application d'une pression réduite ou du vide pour extraire les vapeurs des composés volatils et souvent l'injection d'un agent inerte de stripage pour accélérer cette dévolatilisation. En conséquence, le procédé de dévolatilisation génère des bulles formées à partir des volatils et des agents de stripage.

La vie d'une bulle, telle qu'on l'observe, s'organise en trois étapes principales correspondant à des situations physiques différentes :

1. la formation et la croissance de la bulle jusqu'à son détachement,
2. l'ascension, que la bulle commence juste après son détachement sous l'influence de la gravitation, et au cours de laquelle le gaz est seul dans le liquide. C'est la seule étape de sa vie pendant laquelle la bulle est sphérique, du fait de l'absence de contraintes.
3. l'éclatement, lorsque la bulle arrive en surface, où l'interface liquide/atmosphère va imposer des conditions encore différentes.

Les mécanismes intervenant dans la nucléation elle-même, c'est-à-dire la création spontanée de petites poches de gaz au sein d'un liquide, reste assez peu connue. Pour arriver à comprendre l'apparition d'une nouvelle phase, il faut étudier ce qui se passe au niveau moléculaire au début de la séparation des phases. Bien évidemment, des bulles naissent lorsque la pression partielle du gaz créée par ses espèces dissoutes (selon une loi de Henry par exemple) est supérieure à la pression au sein du liquide.

Cependant les mécanismes intervenant à petite échelle font que la sursaturation nécessaire est plus importante que cette valeur calculée grâce à la loi de Henry. En particulier, la création spontanée de poches de gaz ne peut se faire que s'il existe une chance de réunir en même temps un nombre critique de molécules de gaz. A plus grande échelle, on peut tout simplement noter que la concentration dans le sein du liquide doit être supérieure à celle calculée par la loi de Henry avec une pression tenant compte de la tension superficielle.

En raison de la complexité inhérente à la nature de la dynamique du couplage entre l'hydrodynamique et les aspects de transfert de matière, les mécanismes fondamentaux liés à la nucléation et la croissance des micro-bulles en milieux visqueux non-newtoniens et fluides demeurent obscurs jusqu'à ce jour. Le présent travail est uniquement consacré aux premiers stades de la vie de la bulle, c'est-à-dire sa naissance.

Jusqu'à présent, il existe très peu d'études expérimentales dans la littérature. Les travaux existants sur les processus de croissance sont souvent limités à des bulles de taille millimétrique en ascension ou statiques. Aucune analyse locale de champs de vitesses de la croissance n'a été relevée dans la littérature, à notre connaissance.

L'objectif de ce travail est donc d'étudier l'influence de la nature rhéologique du fluide sur la nucléation de bulles et, en particulier, sur la croissance de la taille des bulles formées à petites échelles, donc tout au début de la nucléation.

Le système expérimental est constitué d'un parallélépipède rectangle d'1 mm d'épaisseur qui contient le fluide dans lequel se produit la nucléation et qui sert de chambre de visualisation. La nucléation est générée par détente de dioxyde de carbone préalablement sursaturé par mise sous pression de la chambre ($P_{\text{relative}} = 2 \text{ bar}$). La croissance de la bulle est observée par analyse d'images. Ce travail est réalisé dans le but de déterminer les mécanismes qui gouvernent le phénomène de nucléation.

II.4.1.2. Description des phénomènes de nucléation et coalescence

L'objectif de ces manipulations était d'observer le phénomène de nucléation des bulles à l'échelle microscopique et de quantifier la croissance des bulles. La mesure locale et fine des champs de vitesses par μ -PIV permet d'étudier l'évolution du comportement du fluide autour de la bulle lors de sa croissance.

Le choix du gaz est très important, car il faut un gaz qui se dissout suffisamment dans le fluide afin que le gradient de pression soit assez fort pour aboutir à la création de bulles. Dans ce cadre, le CO_2 se révèle assez rapidement être un bon choix compte tenu de sa disponibilité dans les laboratoires et de sa grande solubilité comparé à l'azote ou l'oxygène.

Ainsi selon Kirk Othmer (1979), la solubilité en masse du CO_2 dans l'eau à 25 °C sous la pression atmosphérique est de 0,15 % massique. Cela représente une concentration de 34 mol/m³.

D'autre part, la fraction molaire de O_2 et de N_2 dissoute est d'environ $1,2 \times 10^{-5}$, ce qui représente une concentration d'environ 0,66 mol/m³. La difficulté consiste à trouver un fluide qui non seulement possède les propriétés rhéologiques que l'on veut étudier mais qui est aussi capable de dissoudre une quantité appréciable de gaz afin que le gradient créé par la détente soit suffisant pour générer des bulles.

On remarquera ainsi que si la solubilité du CO_2 à 25°C sous une atmosphère est de 0,15% en masse dans l'eau (34 mol/m^3), elle n'est que de 0,05% dans le glycérol. De même, la solubilité du CO_2 dans le sirop de glucose est, selon Kirk et Othmer, de $0,333 \text{ cm}^3/\text{g}$, ce qui représente une concentration de 20 mol/m^3 . L'utilisation de l'Emkarox (HV45) est donc un bon compromis car le produit final est visqueux mais contient majoritairement de l'eau.

Les résultats présentés concernent 5 fluides newtoniens différents pour des expériences réalisées sous une pression relative de 2 bars (pression absolue de 3 bars), cette pression sert à saturer le liquide en gaz et provoquer la nucléation par une détente. Outre l'eau, quatre autres solutions aqueuses newtoniennes visqueuses de viscosité de 10, 30, 90 et 235 mPa.s ont été réalisées. Les propriétés de ces fluides sont représentées dans le tableau I.01

Nous nous intéressons, dans un premier temps, à la nucléation et à la croissance de bulles dans une solution aqueuse d'eau pure. Une observation complète de la croissance de bulles dans le temps est possible, comme le montre la figure II.62

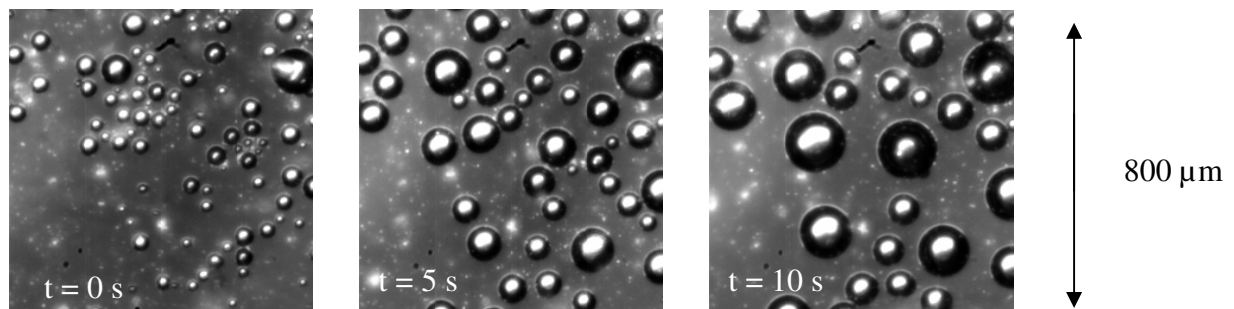


Figure II.62. Visualisation de la croissance de bulle suite à la détente rapide du CO_2 saturé dans de l'eau.

Comme le montre cette figure, on observe relativement bien la croissance des bulles de CO_2 au cours du temps. La nucléation étant très rapide, malgré l'utilisation d'un objectif microscopique, il est très difficile de la visualiser ; nous nous concentrons donc sur la croissance qui suit l'étape de nucléation. L'augmentation de la taille des bulles au cours du temps obtenue sur la figure II.62 résulte de deux phénomènes différents. En effet, outre le phénomène de croissance lui-même, on observe des phénomènes de coalescence dans le liquide. La figure II.63 illustre ces deux phénomènes distincts responsables du grossissement des bulles.

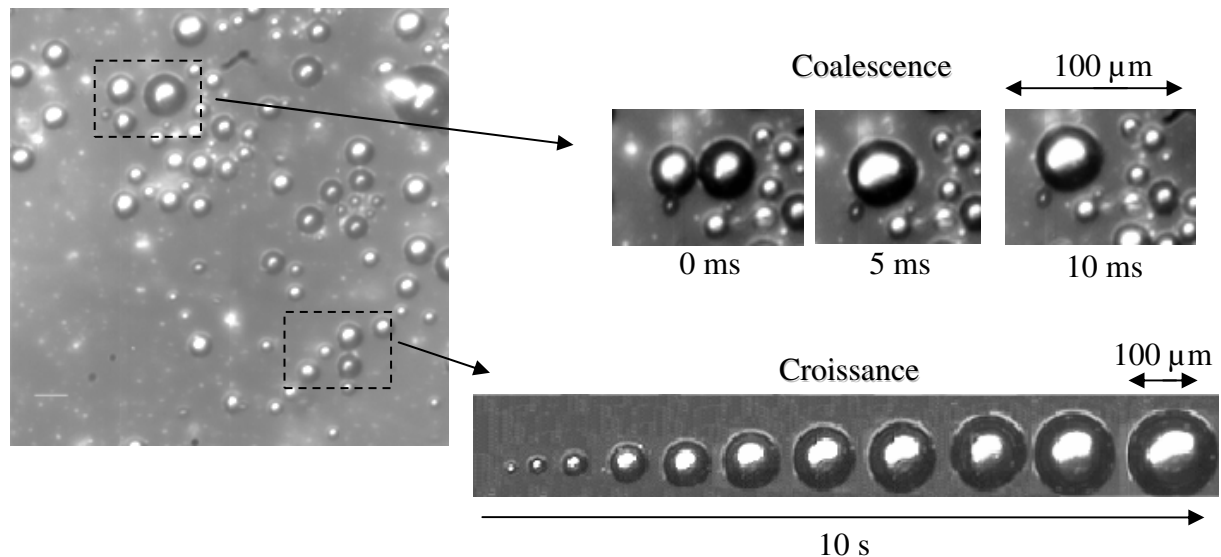


Figure II.63. Visualisation des phénomènes de croissance et de coalescence responsables du grossissement des bulles dans le liquide. Temps de croissance de 10 s et temps de coalescence de 10 ms

Pour la quantification, nous nous focalisons donc uniquement sur le phénomène de croissance. En effet, la coalescence est un phénomène très rapide et chaotique dont le manque de reproductibilité dans cette étude est néfaste et empêche sa quantification. Ainsi pour la mesure quantitative de la croissance, nous prendrons soin d'éviter les coalescences entre bulles pour se focaliser sur un seul phénomène.

Dans ces conditions, le résultat expérimental de la croissance de bulles de CO_2 dans de l'eau est donné dans la figure ci-dessous (II.64). On peut y distinguer les trois régimes de fonctionnement apparaissant successivement au fur et à mesure du grossissement de la bulle :

1. phase de croissance exponentielle : elle est difficilement visualisable mais on observe tout de même une forte croissance dans ce domaine. L'hydrodynamique gouverne le phénomène ;
2. phase d'épuisement avec bulle statique : un gradient de concentration est créé autour de la bulle et la diffusion lente du soluté limite la croissance de la bulle. La croissance est dans ce cas gouvernée par le transfert de matière ;
3. phase de détachement de la bulle de sa position initiale et croissance régulière due au renouvellement de surface.

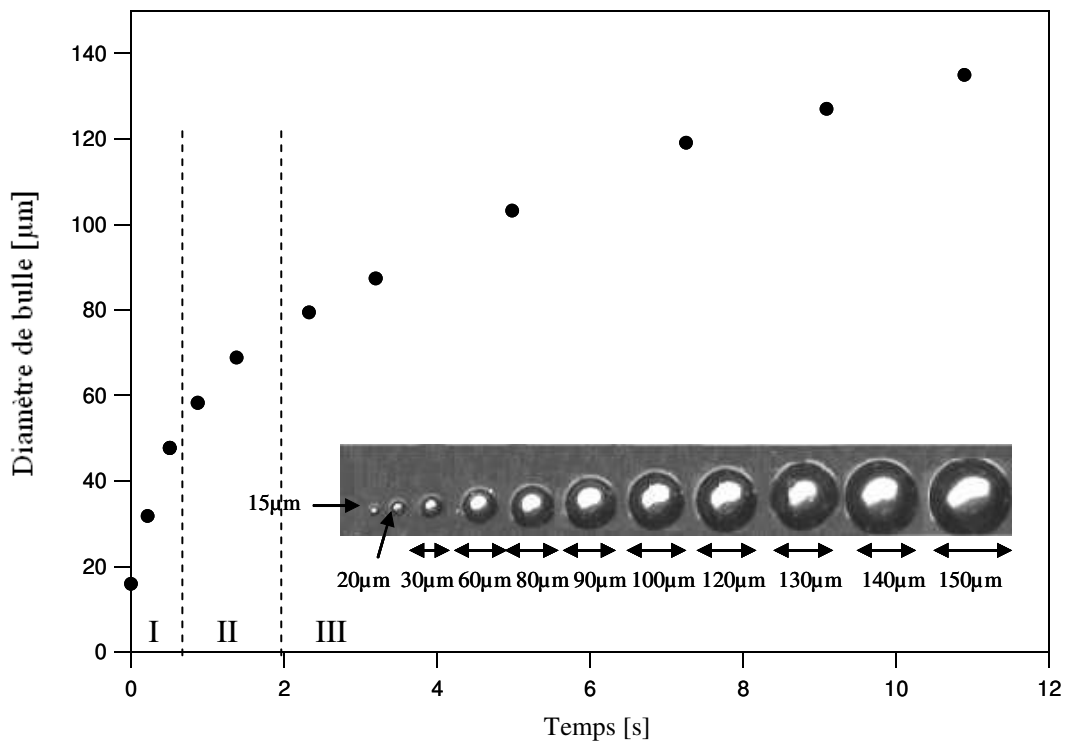


Figure II.64. Evolution de la taille de la bulle en fonction du temps pour la croissance d'une bulle de CO_2 dans de l'eau à la pression relative de 2 bars.

La résolution de la caméra rapide (type VNR ici), permet d'atteindre des bulles de quelques micromètres. En dessous du micromètre, il est impossible de mesurer la taille de la bulle.

Ainsi seule la croissance est mesurable. Afin d'obtenir une mesure locale des champs de vitesses, il faudra choisir des bulles de taille comprise entre 40 et 100 μm pour que le déplacement du fluide soit mesurable.

II.4.1.3. Visualisation par μ -PIV

L'utilisation de la technique μ -PIV nous permet d'obtenir des champs de vitesses locaux, au voisinage des bulles en croissance ou en coalescence.

La figure II.65 représente la coalescence de deux bulles de 105 et 82 μm de diamètre. L'image (a) représente les deux bulles qui vont coalescer (contour rouge), et l'image (b) représente la bulle obtenue (contour rouge). Le temps entre ces deux images est de 133 ms. Le champ de vitesse obtenu montre le déplacement de la bulle du bas vers la bulle du haut, engendrant un déplacement du fluide de bas en haut créant, sur la droite des bulles, une boucle de recirculation. On retrouve ainsi un mécanisme similaire à la coalescence à l'échelle macroscopique.

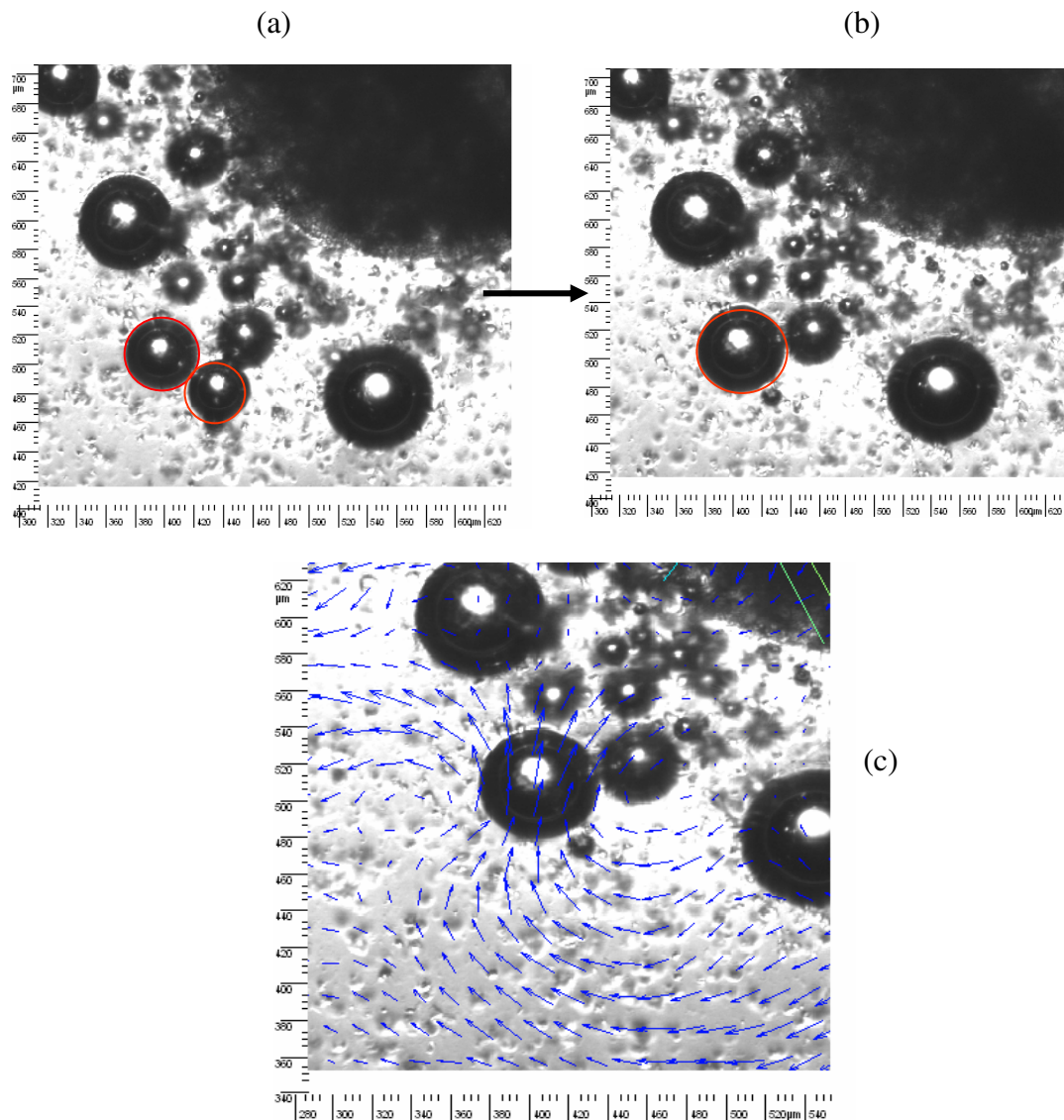


Figure II.65. Mesure locale d'un champ de vitesse autour de deux bulles en coalescence.

Après avoir étudié la coalescence par PIV, nous nous intéressons maintenant à l'étude des champs de vitesse d'une bulle en croissance dans de l'eau. Les figures II.66 et II.67 représentent les champs de vitesses d'une bulle en croissance, de diamètres respectifs de 70 et

100 μm . Le temps entre deux images nécessaires à la construction du champs de vitesse est de 10 ms. Les champs de vitesses obtenus sont axisymétriques et montrent un déplacement du fluide dans toutes les directions de l'espace.

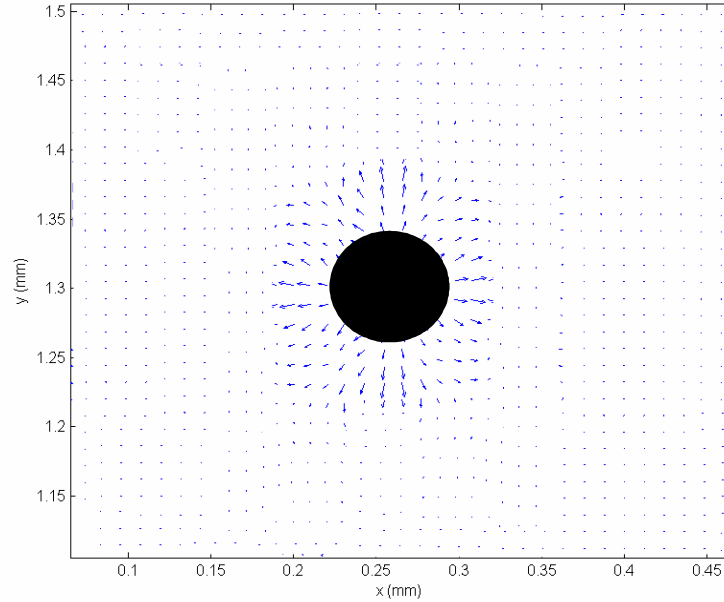


Figure II.66. Mesure μ -PIV de la croissance d'une bulle ($t = 1.6$ s après la détente et $D = 70$ μm).

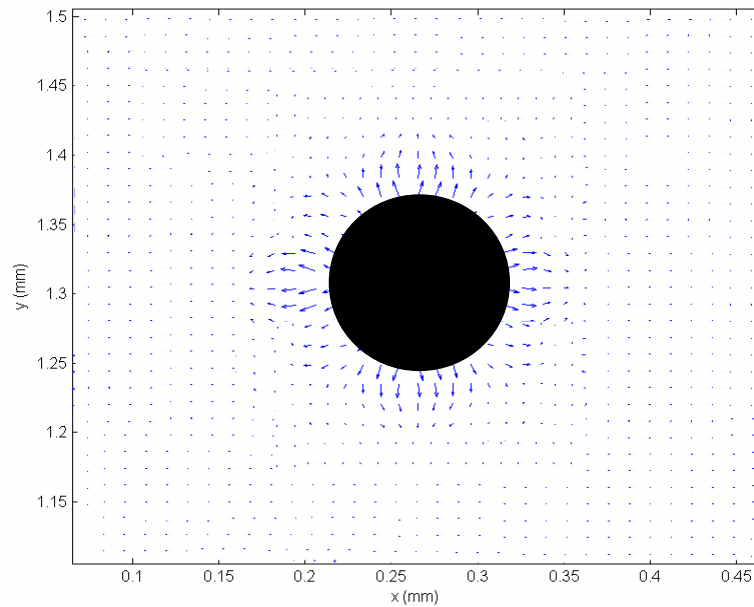


Figure II.67. Mesure μ -PIV de la croissance d'une bulle ($t = 4.8$ s après la détente et $D = 100$ μm).

On représente sur la figure II.68 les profils de vitesses selon un axe de symétrie de la bulle, pour trois diamètres de bulles lors de la croissance (40, 70 et 100 μm).

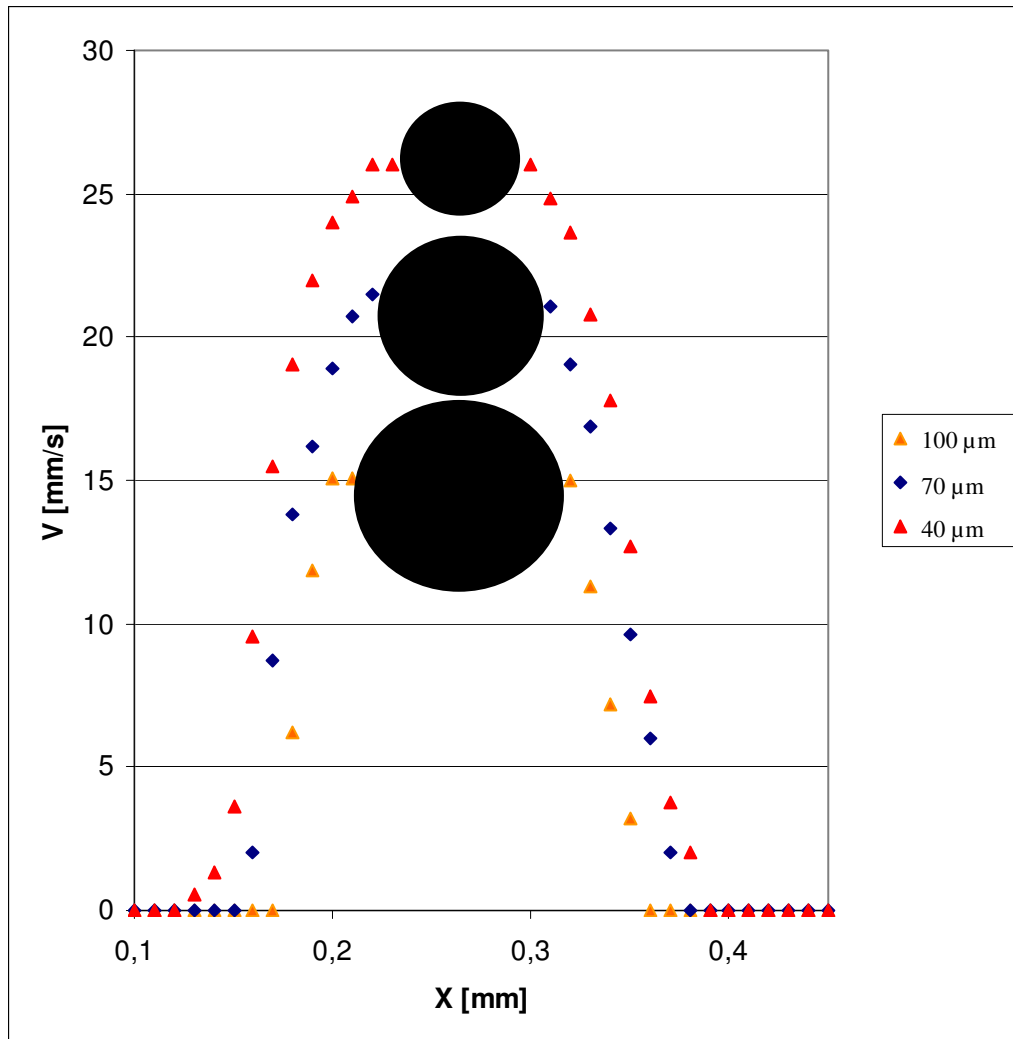


Figure II.68. Profil des vitesses dans le liquide entourant la bulle lors de sa croissance.

Comme il a été observé sur la figure II.68, plus la bulle est petite et plus sa vitesse de croissance est grande. En effet, pour la bulle de 40 μm de diamètre, la vitesse du fluide entourant la bulle a une valeur maximale de 27 mm/s. Pour la bulle de 70 μm , cette valeur décroît jusqu'à 23 mm/s, pour atteindre finalement 15 mm/s pour la bulle de 100 μm . La bulle se détachera de son support lorsqu'elle atteindra 150 μm de diamètre.

Il est intéressant de noter que, lors de sa croissance, la bulle marque une rapide augmentation initiale de sa taille, engendrant un déplacement dans le fluide de vitesse et d'envergure qui ne cesseront de diminuer avec le temps. Ceci aura comme conséquence de repousser les bulles

voisines dans cette étape de la croissance. Ce qui explique que les phénomènes de coalescence observés ont lieu à des tailles de bulles plus grandes (le plus petit diamètre de bulle observé permettant la coalescence était de 80 μm dans l'eau).

II.4.1.4. Influence de la viscosité

A présent, nous nous intéressons aux solutions aqueuses de Emkarox de viscosités 10, 30, 90 et 235 cPo pour étudier la nucléation. La pression relative de la chambre reste inchangée et égale à 2 bars. La figure II.69 montre l'évolution de la taille des bulles formées par nucléation en fonction du temps dans ces différentes solutions visqueuses et dans l'eau.

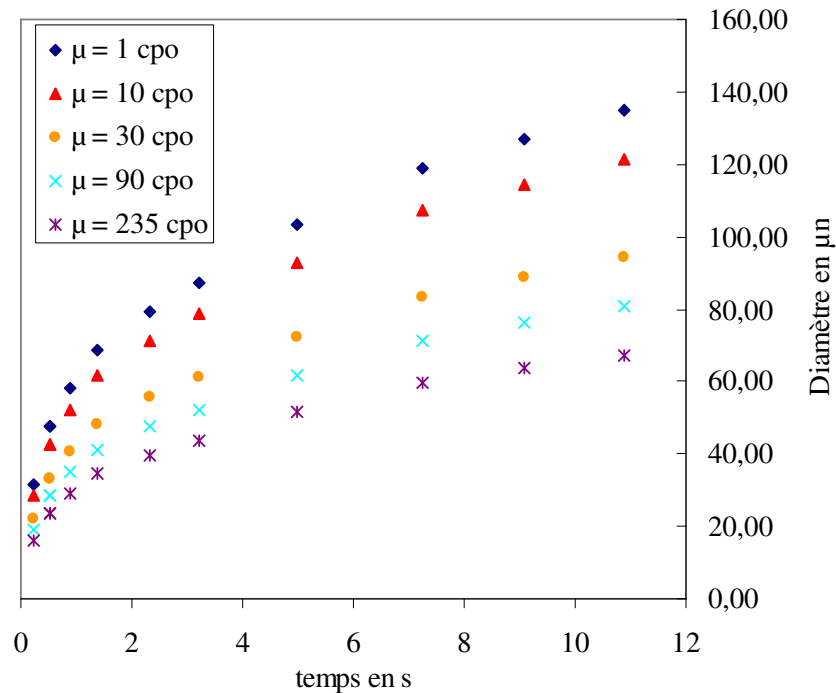


Figure II.69. Etude de la croissance de bulles de CO_2 dans différents fluides visqueux aqueux.

Les résultats montrent que pour toutes les expériences effectuées, quel que soit le fluide utilisé, l'allure générale de la courbe est la même. On retrouve l'évolution exponentielle observée pour la nucléation dans l'eau. Sur toutes les courbes, on observe une augmentation rapide de la taille de bulle au début du phénomène suivie d'une croissance linéaire du

diamètre, jusqu'au détachement qui se situe à une valeur du diamètre de la bulle d'environ 150-170 μm . Plus la viscosité du liquide est grande, plus le phénomène est lent.

La figure II.70 présente l'évolution du diamètre de la bulle en fonction du temps en coordonnées logarithmiques. Les courbes obtenues sont parfaitement logarithmiques et parallèles entre elles.

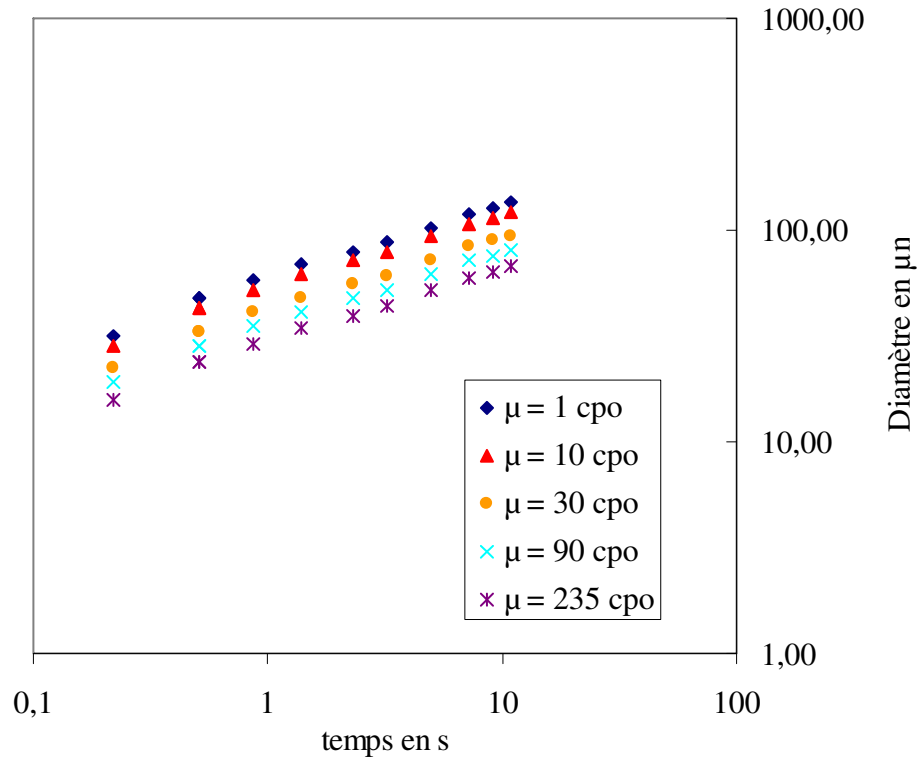


Figure II.70. Etude de la croissance de bulles de CO_2 dans différents fluides visqueux aqueux. Représentation logarithmique.

La pente obtenue est égale à 0,33, ce qui permet de représenter l'évolution de la taille de la bulle en fonction du temps par la relation II.51 :

$$d \approx d_\phi t^{\frac{1}{3}} \quad (\text{II.51.})$$

Avec d_ϕ un paramètre dépendant du fluide en $\mu\text{m s}^{-1/3}$, t le temps en s, et d le diamètre de la bulle en μm . Cette corrélation permet d'estimer l'évolution temporaire de la taille des bulles efficacement avec une précision de 2%.

Le paramètre d_ϕ peut être défini avec les propriétés visqueuses du fluide utilisé. En effet, celui-ci évolue de façon exponentielle négative selon l'équation II.52 :

$$d_\phi = 25\mu^{-\frac{1}{6}} \quad (II.52.)$$

Avec μ la viscosité en Pa.s. Cette estimation permet d'évaluer le coefficient avec une précision moyenne de 8% dans le domaine de viscosités étudiées [$1-235 \times 10^{-3}$ Pa.s].

Enfin, pour évaluer l'influence de la viscosité sur la croissance de la bulle, une dernière étude par μ -PIV est effectuée pour comprendre l'influence du liquide sur la nucléation. Nous avons mesuré le champ de vitesse local lors de la croissance d'une bulle de 70 μ m dans trois liquides différents (viscosité de 1, 10 et 90 mPa.s). Le profil suivant un axe de symétrie des champs de vitesses obtenus est tracé sur la figure II.71.

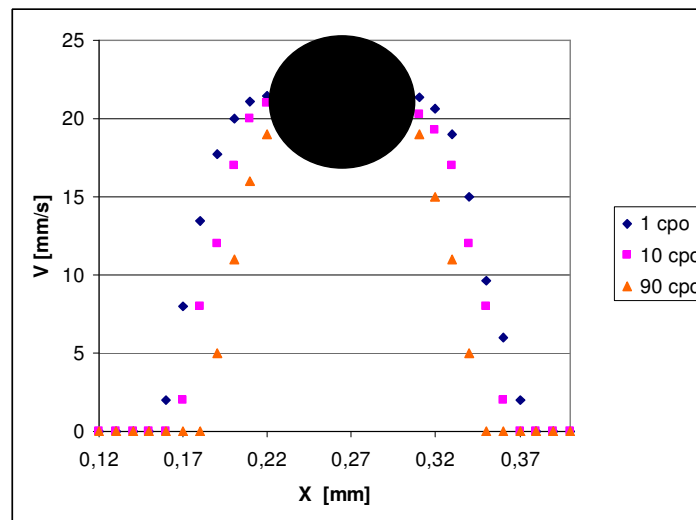


Figure II.71. Profil des vitesses dans différents liquides entourant la bulle lors de sa croissance.

Ces profils de vitesse laissent apparaître les mêmes conclusions que précédemment. Plus la viscosité est faible, plus la vitesse de croissance est grande. De plus, plus la viscosité est grande, moins la vitesse se propage dans le liquide. Ces deux remarques ont une incidence importante pour comprendre les phénomènes de coalescence de fluides lors de la croissance. En effet, nous avons remarqué que, à taille de bulle égale, la coalescence est d'autant plus facile que le fluide est visqueux. Ceci est dû aux faibles vitesses de fluide déplacé qui repousse de façon moindre des bulles voisines.

Pour un fluide de viscosité de 1 mPa.s, la coalescence se produit à partir de 80 μm , à 10 mPa.s, elle se produit à 60 μm et à 90 mPa.s, elle intervient à partir d'un diamètre de bulle de 50 μm , ce qui correspond expérimentalement à une vitesse critique de fluide de l'ordre de 20 mm/s.

II.4.1.5. Conclusion

Ce travail de recherche sur la micro-nucléation à l'échelle microscopique constitue une bonne étude préliminaire sur la faisabilité des mesures de croissance de bulles par analyse d'image d'une part et la détermination des champs de vitesses fins et localisés (quelques centaines de micromètres) par μ -PIV d'autre part.

Plusieurs conclusions et perspectives peuvent en être tirées :

- l'observation de la nucléation de bulles est faisable grâce à notre montage expérimental,
- il est possible de visualiser des phénomènes rapides de coalescence,
- l'analyse d'image est une méthode qui permet d'évaluer assez précisément la croissance de bulles,
- la mesure des champs de vitesse de croissance de bulles est possible par micro-PIV,
- les protocoles expérimentaux développés au cours de ces travaux ont permis d'obtenir une bonne reproductibilité de la mesure de la croissance des bulles. On a observé pour l'ensemble des expériences les mêmes régimes de fonctionnement et on a pu comparer les croissances pour les différents fluides. Ces expériences confirment l'importance des phénomènes de diffusion sur la croissance. Elles mettent aussi partiellement en évidence l'influence des propriétés rhéologiques des fluides. En particulier, il semblerait que le caractère visqueux influence sur la croissance et la coalescence,
- avec ces données, il sera possible d'élaborer un modèle permettant de quantifier la croissance en complétant les expériences avec d'autres fluides modèles visqueux.

II.4.2. Dynamique et formation de bulles dans des microréacteurs

Le passage au XXI^{ème} siècle est marqué par l'avènement de la miniaturisation. Celle-ci touche tous les domaines, y compris le génie des procédés. Tout d'abord, les microsystèmes nouvellement créés permettent d'évacuer efficacement la chaleur des réactions exothermiques et offrent d'excellents coefficients de transfert entre les fluides en présence. Parallèlement, cela engendre une utilisation moindre voire nulle de solvant, produit qui pose aujourd'hui les problèmes économiques et environnementaux du recyclage ou encore du stockage. Par ailleurs, les microsystèmes permettent d'obtenir de nouveaux produits et constituent également de nouveaux appareils pour la recherche, c'est l'essor des « laboratoires sur puce » (« *lab-on-chip* ») qui servent à l'acquisition intensive de données. Les données acquises en microréacteurs peuvent être utilisées lors du dimensionnement d'appareils industriels classiques, mais il est plus intéressant encore de les mettre à profit pour celui d'unités intensifiées en plein essor et très prometteuses. Dans une logique de développement des procédés, les microréacteurs offrent des perspectives incomparables de réduction du temps d'expérimentation, aussi bien pour les études préliminaires, les pilotes, ou la conception de nouvelles unités et leurs réalisations. L'objectif de ces travaux de recherche est d'étudier la formation de bulles dans des réacteurs à l'échelle microscopique. Pour ce faire, nous utilisons trois différents types de microréacteurs comme l'illustre la figure II.72. Le premier type de réacteur est appelé « *Flow focusing* », constitué de trois canaux d'entrée et un de sortie : deux canaux d'entrée de liquide symétriques et opposés, et un orifice central servant de canal d'entrée du gaz à l'intersection des deux conduites.

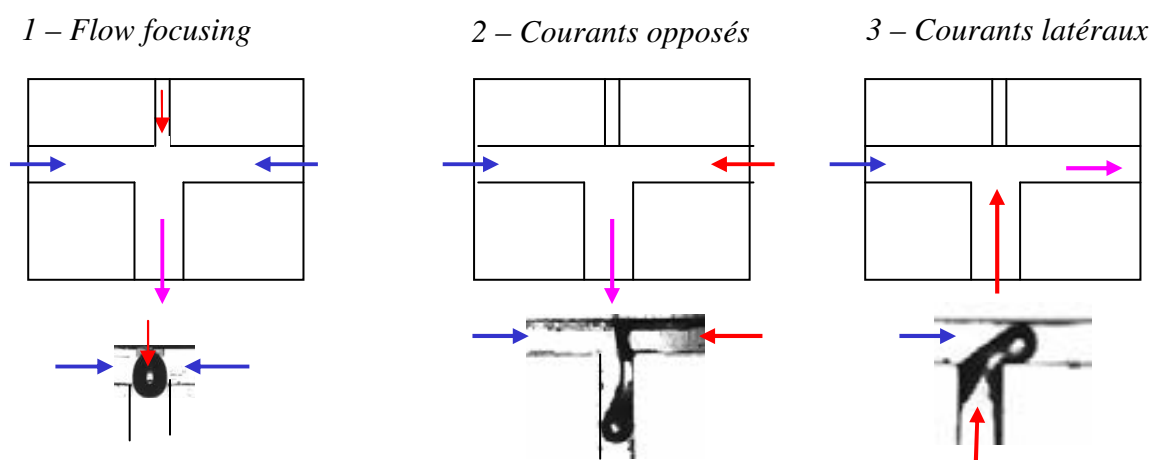


Figure II.72. Différents type de micro-mélangeurs étudiés.

La seconde configuration étudiée est appelé « courant opposé ». Elle est constituée de deux canaux d'entrée et un canal de sortie, les deux arrivées de gaz et de liquide se faisant dans des jonctions en forme de T ou Y. Pour ces deux types de mélangeurs, la taille des canaux ainsi que la géométrie des conduites (angles entre les différents canaux entrant) ont été modifiées. Il existe une variante de la seconde configuration, très souvent utilisée dans la littérature, le micro-mélangeur appelé « courants latéraux ». Pour ce type, constitué de deux canaux d'entrée et un de sortie, l'arrivée du gaz s'effectue normalement à la conduite du liquide conduisant à un cisaillement du flux de gaz.

Le but de cette étude expérimentale est de fournir des informations quantitatives et qualitatives sur la formation de bulles dans un micro-mélangeur dans l'optique d'établir des corrélations utiles au dimensionnement et au design de micro-mélangeurs.

II.4.2.1. Revue bibliographique

La réalisation d'écoulements diphasiques à l'échelle microscopique a suscité de très nombreuses études. Les micro-procédés offrent des avantages uniques que ce soit, en matière de transfert de chaleur, de l'excellente efficacité du transfert de matière, de la réduction de la dispersion axiale, et de la faible quantité de fluide mis en jeu. Afin de tirer profit de ces avantages, une bonne compréhension du comportement complexe des écoulements multiphasiques en microfluidique doit être développée, en particulier en mettant l'accent sur les systèmes gaz-liquide. Ces écoulements ont été largement utilisés pour différentes applications : les réactions très exothermiques, comme les fluorations (Jähnisch *et al.*, 2000 ; Chambers *et al.*, 2001), les hydrogénations (Kobayashi *et al.*, 2004 ; nitrobenzène par Yeong *et al.*, 2003 ; formation du cyclohexane par Losey *et al.*, 2001), des réactions biochimiques telles que l'analyse de l'ADN (Burns *et al.*, 1998) , les micro-échangeurs de chaleurs (Qu et Mudawar, 2002), la synthèse chimique (Song *et al.*, 2006), la formation de matériaux de synthèse (Chan *et al.*, 2005; Utada *et al.*, 2005; Yen *et al.*, 2005, Zhang *et al.*, 2006), et la réalisation de médicaments (Dittrich et Manz, 2006).

Les écoulements diphasiques dans les micro-canaux sont influencés par les conditions d'écoulement, la géométrie du canal, ainsi que les propriétés des deux fluides. En général, on constate que l'écoulement gaz-liquide dans les micro-canaux peut être classé en cinq régimes différents : le régime de « bulles », le régime de « bouchons », le régime « bouchons-annulaires », le régime annulaire, et le régime de spray (Waelchli et Rohr, 2006).

Le régime de bulles est caractérisé par la formation de bulles uniques sphériques avec des dimensions inférieures ou égales à la largeur du canal. L'augmentation du débit de gaz provoque la coalescence ; les bulles sont de forme allongée et prennent la forme d'un cylindre (avec un mince film liquide qui sépare la bulle de la paroi du canal). Ce régime est appelé régime de bouchons, ce qu'on appelle *slug flow*, *plug*, train de bulle ou encore bulle de Taylor. En augmentant encore le débit, le régime semi annulaire se développe et est caractérisé par la formation de vagues sur des bulles très longues. Un accroissement du débit de gaz conduit ensuite à des écoulements annulaires dans lesquels le liquide forme un film sur les parois et le gaz s'écoule au centre du canal. Lorsque le débit de gaz est encore augmenté, un régime de *spray* se développe avec l'apparition de très petites gouttelettes de liquide dans une phase gazeuse continue.

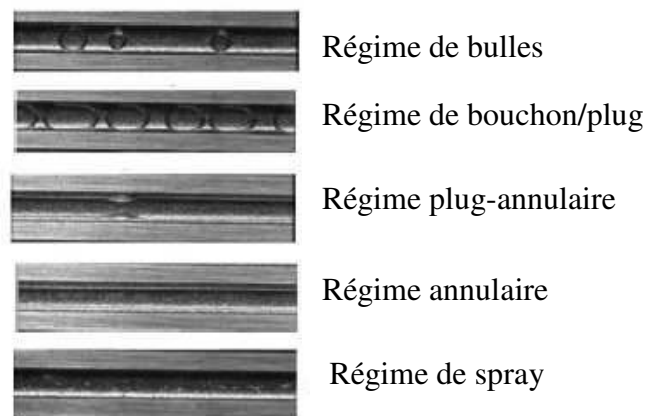


Figure II.73. Différents régimes d'écoulement diphasiques gaz-liquide dans les micro-conduites (Haverkamp et al. 2006)

Ces régimes d'écoulement et la carte d'écoulement ont été développés par plusieurs auteurs (Cubaud et Ho, 2004, Haverkamp *et al.* 2006). Ces cartes représentent la plupart du temps, les vitesses superficielles des phases gazeuses et liquides. Généralement, les régimes en présence de bulles semblent avoir lieu à haute vitesse du liquide et faible vitesse du gaz (là où le cisaillement par la phase continue est le plus important), les bulles longues se produisent à des vitesses intermédiaires de gaz et de liquide. Enfin à hautes vitesses de gaz, le régime est généralement annulaire.

En raison de leurs nombreuses applications dans des dispositifs microfluidiques, nous avons principalement mis l'accent dans cette étude sur les régimes avec formation de bulles, soit les régimes de bulles et de bouchons.

Les géométries les plus utilisées dans la littérature pour la production de bulles sont la section en forme de T (Garstecki *et al.*, 2006; van der Graaf *et al.*, 2006; Guillot et Colin, 2005; Isisako *et al.*, 2002; Thorsen *et al.*, 2001; Tice *et al.*, 2003; Xu *et al.*, 2006) et le « *flow focusing* » (Anna *et al.*, 2003; Cubaud *et al.*, 2005; Ganan-Calvo et Gordillo, 2001; Garstecki *et al.*, 2005).

Garstecki *et al.* (2005) ont utilisé un dispositif d'écoulement de type « *Flow focusing* », composé d'un petit orifice pour générer des bulles monodisperses. Ils ont constaté que la formation de bulles était due au gradient de pression, l'arrachement étant contrôlé par le débit de la phase liquide continue. Cubaud et Ho (2004) ont étudié les bulles en formation dans des microcanaux. Les bulles sont générées dans un mélangeur en forme de croix. Ils ont conclu que le mécanisme de rupture dans leur dispositif pourrait être interprété comme une compétition des différents gradients de pression intervenant dans les différents canaux de l'écoulement.

La technique μ -PIV a été utilisée avec succès pour caractériser des écoulements monophasique en microfluidique pour des sections en T (Lindken *et al.*, 2006) et des écoulements multiphasiques. Auparavant, Thulasidas *et al.* (1997) avait utilisé la technique PIV classique pour mesurer la vitesse de distribution dans la phase liquide d'un écoulement gaz-liquide dans des capillaires circulaires et de section carrée. Récemment, Xiong *et al.* (2007) ont décrit la formation de bulles dans un écoulement simple à co-courant. Les mesures de vélocimétrie par μ -PIV montrent que la bulle est formée par un changement soudain de la composante de la vitesse perpendiculaire à l'écoulement des gaz, autour de la frontière séparant les deux entrées.

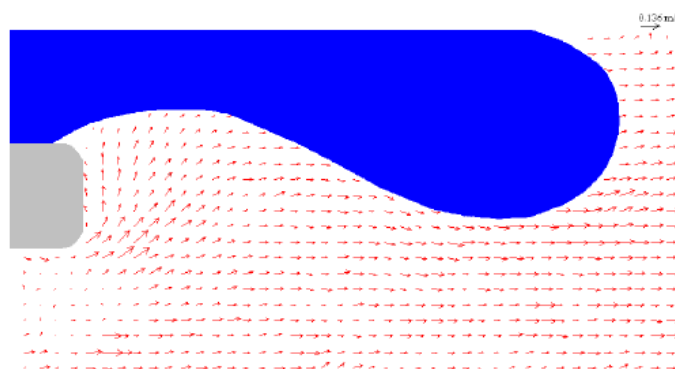


Figure II.74. Mesure du champ de vitesses par μ -PIV de la formation d'une bulle dans un mélangeur à co-courant, de section carrée de 500 μm (Xiong et al., 2007).

Fries *et al.* (2008) ont étudié les tourbillons présents dans le sillage d'une bulle en régime de « bouchons ». L'utilisation de la technique μ -PIV a permis de mettre en évidence l'existence de boucle de circulation dans les micro-canaux ; ils montrent que ce mouvement de recirculation est très sensible à la géométrie de la micro-conduite. En testant différentes vitesses de liquide et tailles de canaux, et différents rayons de courbure du canal, ces auteurs démontrent que, pour un écoulement segmenté gaz-liquide, l'utilisation de canaux sinueux permet d'augmenter le transfert de matière dans le réacteur.

La plus grande partie des études publiées dans la littérature et basées sur la technique de μ -PIV traite de l'écoulement d'une seule phase ou bien de la formation dans un seul canal. Très peu d'articles sont consacrés à l'étude des champs de vitesses lors de la formation de bulles. On peut par exemple citer les travaux de Van Steijn *et al.* (2007) qui ont étudié le champ de vitesse lors de la formation de bulles dans un micro-mélangeur en forme de T de 800 μ m de diamètre, comme le montre la figure II.75.

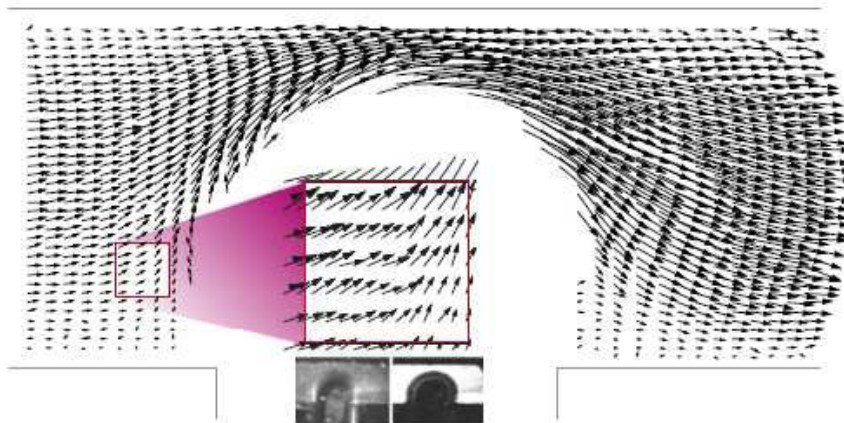


Figure II.75. Mesure du champ de vitesse par μ -PIV lors de la formation d'une bulle dans un mélangeur de forme T et de section carrée de 800 μ m (Van Steijn *et al.*, 2007)

Il est à noter qu'à ce jour et à notre connaissance, aucune mesure par μ -PIV de formation de bulles dans un réacteur de type « *Flow focusing* » ou de type « Jonction-Y » n'a été mentionnée dans la littérature.

Pour de nombreuses applications industrielles, il est essentiel de pouvoir prédire les caractéristiques de l'écoulement telles que la taille des bulles. Plusieurs études ont conduit à

l'établissement de corrélations permettant d'évaluer la longueur ou le volume de la bulle. Ganan-Calvo (1998) a proposé une corrélation pour les écoulements en régime de jet ; Ganan-Calvo et Gordillo (2001) ont étudié un micro-mélangeur de type «*flow focusing*» et ont établi une corrélation permettant d'évaluer la longueur de la bulle en fonction de la taille du micro-mélangeur et le rapport des débits, mais en l'absence de propriétés physiques du fluide. Cubaud *et al.* (2005) ont montré que la longueur des bulles suit une loi linéaire basée sur la taille du canal et la fraction volumique du liquide. Garstecki *et al.* (2006) ont étudié le même type de micro-mélangeur et ont aussi développé une corrélation linéaire entre le ratio des débits et la longueur de la bulle. Cependant aucune corrélation basée sur le volume de bulle ou sur les propriétés physico-chimiques n'a été établie pour le moment, et les corrélations existantes sont toujours basées sur une seule géométrie de micro-mélangeur ou sur une faible gamme de débits.

L'influence de la géométrie du micro-mélangeur a été étudiée par Haverkamp *et al.* (2006). Ils ont conçu deux géométries de mélangeur, de type T et Y, et ont étudiés l'écoulement gaz-liquide dans ces deux micro-mélangeurs. Ces auteurs ont remarqué que la rupture de la bulle sous l'action du gradient de pression n'est observée que dans le réacteur de type T, alors que le régime de jet était le seul mécanisme de formation de bulles dans le mélangeur en Y. Ces remarques sont toutefois valables uniquement pour ce type et cette taille de mélangeur.

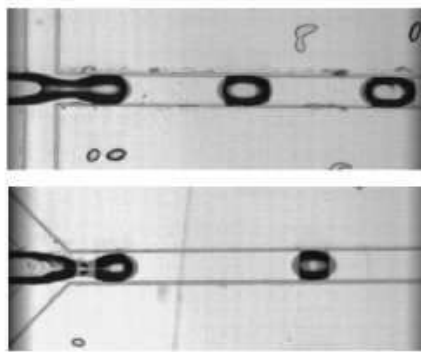


Figure II.76. Formation de bulles dans deux mélangeurs en Y et T selon Fan *et al.* (2007).

Fan *et al.* (2007) ont également étudié ces deux types de géométries. La forme de la bulle, sa taille, et le mécanisme de sa formation ont été étudiés pour différents débits et pour ces deux géométries. En comparant les résultats expérimentaux et ceux obtenus par simulation en utilisant l'approche Lattice-Boltzmann, un bon accord a été trouvé. Différents régimes d'écoulement ainsi que différentes formes de bulles ont été reliés au nombre capillaire Ca . Les travaux de la simulation ont confirmé que la rupture de la bulle était provoquée par la différence de pression entre les deux

phases et que la géométrie de la section de mélange avait également un impact sur la taille des bulles. Mais aucune quantification des tailles de bulles et de vitesses locales n'a été effectuée.

Notre étude est axée sur la formation de bulles dans les micro-mélangeurs. Etant donné que les forces les plus importantes en microfluidique sont la force d'inertie, la force visqueuse et les forces superficielles, le but de notre étude est de comprendre l'importance de ces forces pour différentes géométries de micro-mélangeurs, afin d'améliorer la compréhension de la formation de bulles dans les micro-mélangeurs. Trois configurations de micro-mélangeurs sont étudiées en utilisant la caméra rapide munie d'objectif microscopique pour la mesure de taille de bulle et un système μ - PIV permettant d'accéder aux champs de vitesses de la phase liquide.

II.4.2.2. Ecoulement monophasique – Validation de la mesure par μ -PIV

Afin de valider la mesure des champs de vitesse par μ -PIV, une étude en monophasique a été réalisée afin de comparer les profils de vitesses expérimentaux et théoriques. Les champs de vitesses, qui sont obtenus pour une valeur de $200 \mu s$ entre chaque image et de $140 ms$ entre chaque paire d'images, sont représentés sur la figure II.77. Le mélangeur utilisé pour cette validation est un réacteur en PMMA avec une section de forme Y, de section circulaire et d'un diamètre de $800 \mu m$.

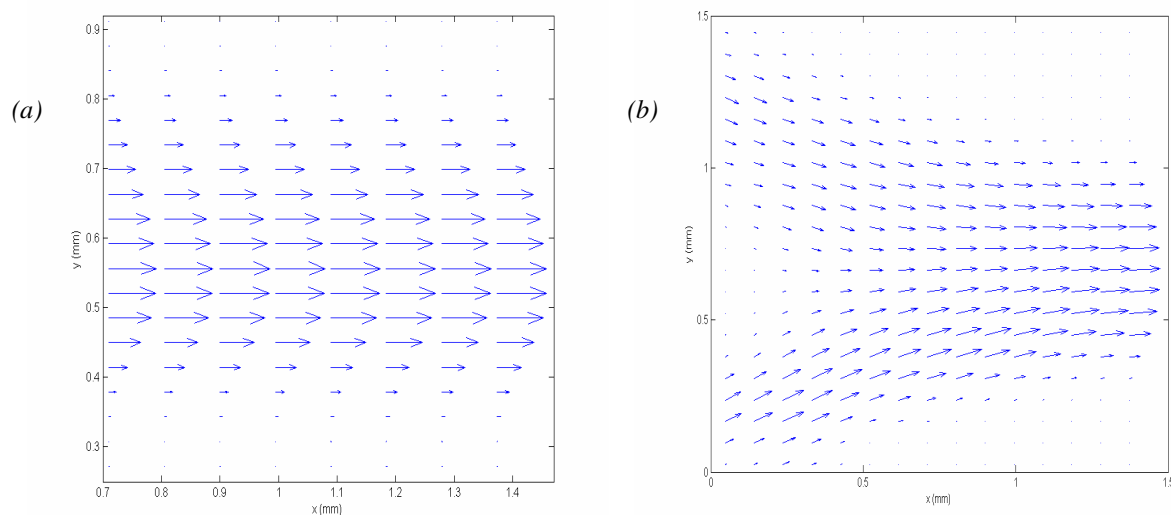


Figure II.77. Champs de vecteurs vitesse dans l'eau (a) dans un canal ($Q = 7,06 \cdot 10^{-9} m^3 s^{-1}$) de $600 \mu m$ de diamètre. (b) dans une section Y ($Q_l = 1,83 \cdot 10^{-8} m^3 s^{-1}$) de $800 \mu m$ de diamètre.

Les profils obtenus sont parfaitement symétriques (Figure II.77 a et b) et paraboliques, le régime d'écoulement étant laminaire. Afin de visualiser avec plus de précision la distribution des vitesses dans le canal, une représentation en 3 dimensions est reportée sur la figure II.78 qui permet de se rendre compte de la continuité de la mesure de vélocimétrie, nous assurant ainsi d'une bonne précision quant aux champs de vitesses qui seront mesurés en diphasique.

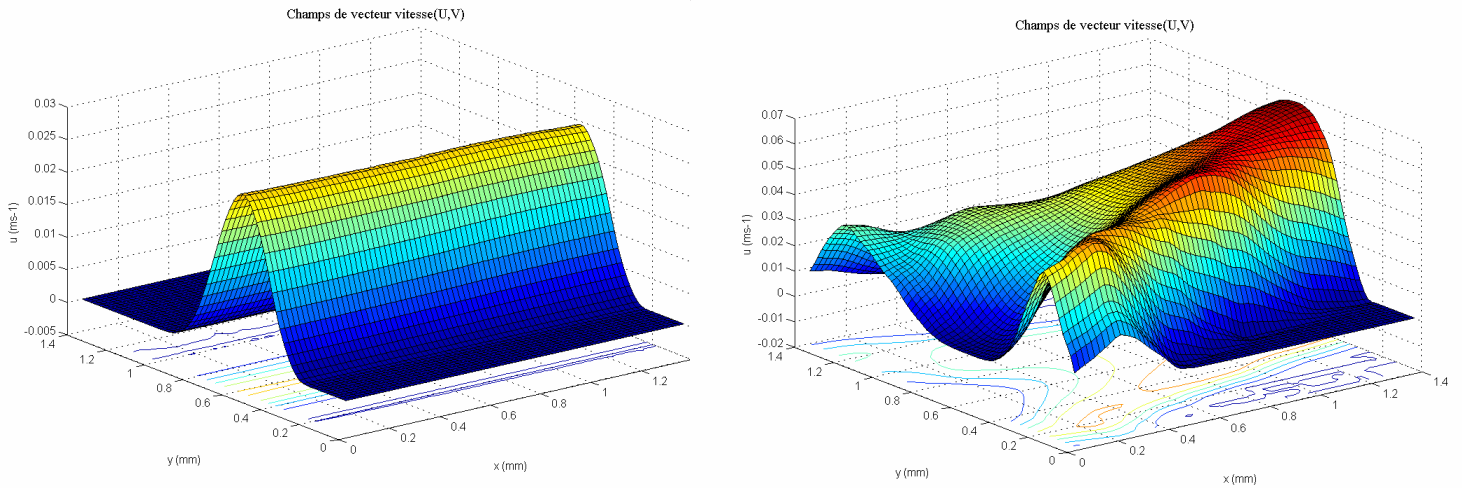


Figure II.78. Représentation en 3D des champs de vecteurs vitesse dans l'eau (a) dans un canal ($Q=7,06 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$) de $600 \mu\text{m}$ de diamètre. (b) dans une section Y ($Q_l=1,83 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$) de $800 \mu\text{m}$ de diamètre.

Le profil de vitesses dans le canal présenté sur la figure II.79.a est moyenné à partir de 15 autres champs de vitesse mesurés à différents instants. Le profil ainsi tracé est parabolique dans cette section circulaire.

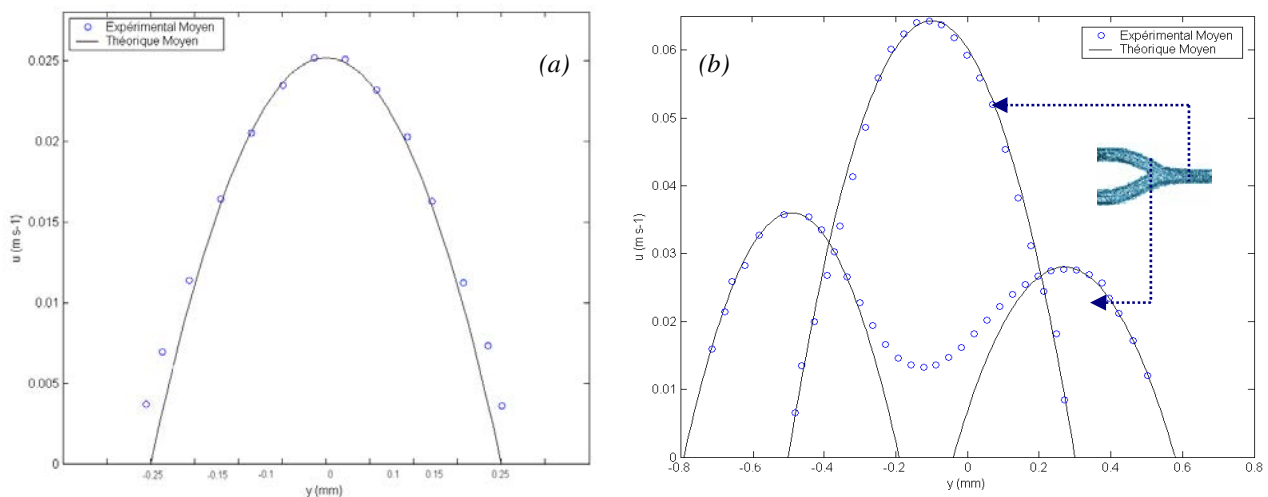


Figure II.79. Comparaison des profils théoriques et expérimentaux (a) dans un canal ($Q = 7,06 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$) de $600 \mu\text{m}$ de diamètre (b) dans une section Y ($Q = 1,83 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$) de $800 \mu\text{m}$ de diamètre.

Pour le profil dans la section-Y, la figure II.79.b présente la superposition des deux profils de vitesse en entrée et en sortie du Y. Ceux ci sont aussi paraboliques et la somme des vitesses aux deux branches d'entrée est égale à la valeur de la vitesse de la sortie. Les nombres de Reynolds dans chacun des dispositifs valent 15 et 52 pour des débits valant respectivement $7,06 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ et $1,83 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$, ce qui correspond à des écoulements de type laminaire. Le profil de vitesse théorique est tracé en superposant les valeurs expérimentales sur les figures (II.78.a) et (II.79.b) en utilisant le profil de vitesses parabolique (II.53).

$$v(r) = v_{\max} \left(1 - \frac{r^2}{R^2} \right) \quad (II.53)$$

Cette superposition montre un bon accord entre le profil expérimental et théorique au centre du canal mais un écart apparaît sur les bords. Cet écart peut être expliqué par la profondeur de champ qui empêcherait de mesurer une valeur nulle à la paroi car il est très difficile de mesurer le déplacement de ces particules sans mesurer celui des particules voisines, cela peut également venir de la taille précise des canaux ou encore de leurs rugosité. Néanmoins cette étude en écoulement monophasique a permis de valider la mesure de champs de vitesse nécessaires avant de démarrer l'étude des écoulements diphasiques gaz-liquide

II.4.2.3. Formation de bulles dans les micro-mélangeurs de type « *flow-focusing* »

Dans une intersection en croix, deux courants de phase continue liquide viennent pincer celui de phase gazeuse et les bulles se déplacent dans la continuité de l'arrivée de la phase aqueuse (cf. figure II.72). Cette géométrie est aussi appelée « *flow-focusing* ». Une restriction placée à l'endroit où se forment les bulles permet de générer une grande variété de bulles monodisperses. Dans ce travail, les résultats expérimentaux de formation de bulles obtenus dans trois géométries (angle de 180, 90 et 60°) différentes de micro-mélangeur de ce type sont présentés. Afin de comprendre les paramètres majeurs du processus de formation des bulles, une étude préliminaire est entreprise pour étudier l'influence de chacun des facteurs (débit, taille de la canalisation, viscosité, tension superficielle, géométrie du mélangeur). Les débits de gaz et de liquide varient de $10^{-12} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ à $10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$, permettant la formation de bulles de longueur compris entre 50 μm et 5 mm. La figure II.80 montre les images obtenues par la caméra rapide dans la zone d'arrachage des bulles d'un micro-réacteur en PMMA dont les canaux sont de section carrée et de côté W égal à 1000 μm . Les bulles d'air sont naturellement

générées par arrachage à l'intersection du courant aqueux avec le gaz. Elles sont enfin transportées à vitesse constante dans un canal droit.

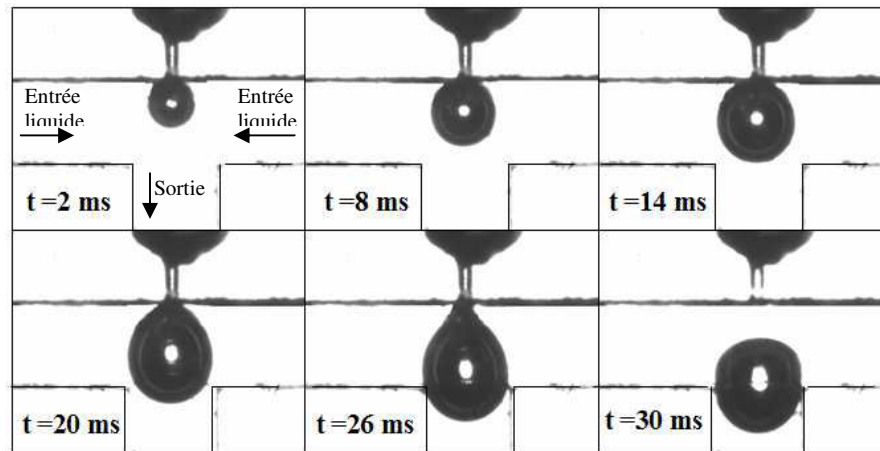


Figure II.80. Formation de bulles dans un micro-mélangeur de type « flow focusing » avec un angle de 180° entre les deux entrées de liquide. $V_b = 10^{-9} \text{ m}^3$. Dimension de l'entrée de gaz de $200 \mu\text{m}$, entrée et sortie des canaux de liquide sont de $W = 1000 \mu\text{m}$, système air-eau, les débits de phases liquide et de gaz sont de $10^{-8} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$, ($Q_g/Q_l = 1$).

La figure II.80 montre le processus de croissance d'une bulle de volume final de 10^{-9} m^3 au cours d'une période. On peut y voir l'évolution de la forme de la bulle à différents instants durant le processus, de sa formation jusqu'à son détachement. La formation des bulles est très régulière avec une fréquence de 34 s^{-1} . Les bulles sont sphérique au début de leur formation, puis évoluent pour prendre la forme d'une poire parfaitement symétrique. À ce stade, la bulle croît sans mouvement significatif dans la direction de l'écoulement. Par la suite, les effets inertiels de l'écoulement sur la bulle deviennent plus importants et l'interface se déplace tout en étirant la bulle formant un cou qui s'allonge jusqu'à sa rupture.

A l'aide du logiciel Matlab, nous avons traité les différentes images obtenues afin de calculer l'évolution du volume de la bulle en fonction du temps. Ainsi, pour 4 rapports entre les débit de phases aqueuse et gazeuse, nous avons suivi l'évolution du volume en fonction du temps. Ces 4 courbes sont reportées sur la figure II.81 qui permet de distinguer trois étapes au cours de la formation de la bulle : une première étape d'expansion rapide de la bulle, suivie d'une augmentation linéaire du volume de la bulle et enfin une dernière étape correspondant à un allongement très rapide de la bulle qui s'étend depuis l'orifice en raison du flux latéral conduisant à son détachement.

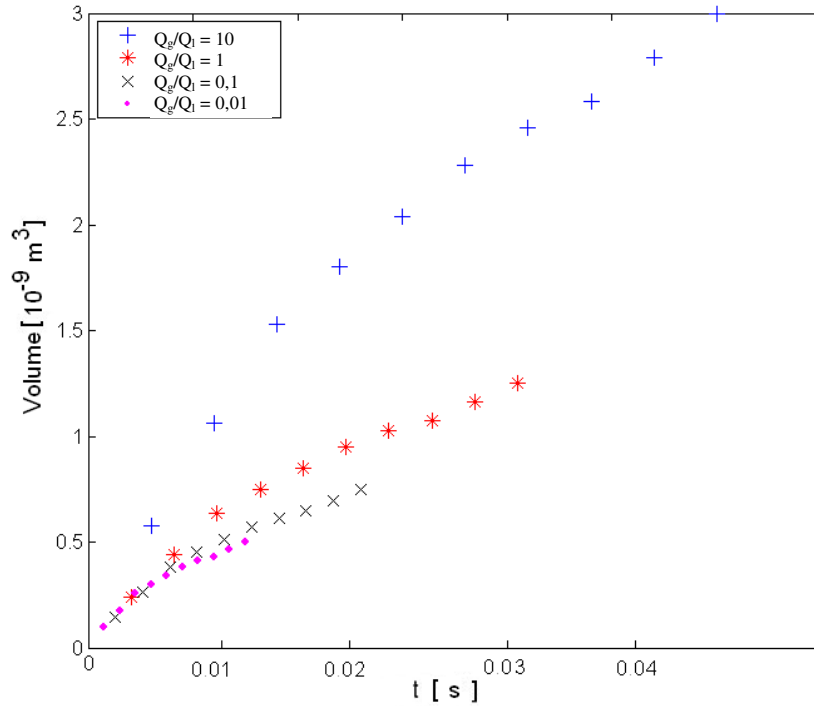


Figure II.81. Evolution du volume de bulles formées au cours du temps en fonction du temps pour 4 rapports de débits entre les phases liquides et gazeuses différents, dans un micro-mélangeur de type « flow focusing » avec un angle de 180° entre les deux entrées, système eau-air.

On peut d'abord remarquer que, plus le rapport de débit Q_G/Q_L est grand, plus le volume de la bulle est important. A géométrie de canal et propriétés des fluides fixées, la taille des bulles peuvent aisément être modifiées en jouant sur les débits de phase dispersée Q_G et de phase continue Q_L , comme nous le verrons par la suite.

D'autre part, l'évolution du volume en fonction du temps suit la même tendance d'accroissement exponentiel observé lors de la nucléation de bulles dans la partie II.4.1.2. bien que le phénomène présent ici soit nettement plus rapide. Cependant, il semble que la croissance des bulles suive toujours une loi de type puissance suivant la relation II.54. :

$$\frac{v}{vf} = \left(\frac{t}{tf} \right)^\xi \quad (II.54)$$

Dans le cas de la formation de bulles dans une phase continue aqueuse dans un micro-mélangeur de type *flow focusing*, les résultats obtenus sur la figure II.81 donnent une évolution du paramètre ξ en fonction du rapport des débits suivant la relation II.55. :

$$\xi = \frac{2}{3} \left(\frac{Q_G}{Q_L} \right)^{0,1} \quad (II.55)$$

Cette estimation du paramètre de la loi de puissance décrite en II.55 permet d'estimer la croissance des bulles dans l'eau avec une erreur relative inférieure à 8%. La figure II.82 montre les champs de vitesse obtenus par μ -PIV lors de la formation de bulles dans un micro-mélangeur de type *flow focusing*.

Afin de pouvoir mesurer la carte d'écoulements, nous devons nous placer à des vitesses d'écoulements en gaz très faibles, la caméra du système μ -PIV étant limitée à 4 Hz, il faut donc un débit en gaz très lent ($Q_G = 10^{-10} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$). Les champs de vitesses sont représentés sur les figures II.82.a, b, c et d.

- À $t/t_f = 0,05$ (figure II.82.a), la bulle commence à se propager dans le canal principal et ne semble pas perturber l'écoulement dans la jonction.
- À $t/t_f = 0,3$ (figure II.82.b), l'écoulement de la phase liquide continue contourne la bulle et à mesure que la taille de la bulle croît, l'écoulement entrant dans les deux canaux est de plus en plus déformé et repoussé à la paroi des canaux.
- À $t/t_f = 0,8$ (fig. II.82.c), les vecteurs vitesse ont pratiquement disparu dans le canal, en effet au voisinage de l'interface gaz-liquide et de la paroi, le liquide accélère (des vitesses relativement élevées pouvant aller jusqu'à quatre fois la vitesse moyenne sont obtenues) ce qui explique la baisse des vecteurs vitesse dans le reste du canal.
- À $t/t_f = 1$ (fig. II.82.d), le cycle de formation se termine par la rupture du col de la bulle et de sa libération dans le canal principal. A ce moment précis, l'écoulement est orienté dans deux directions opposées lorsque la bulle se détache, traduisant le retour rapide de la phase gazeuse vers l'orifice d'injection.

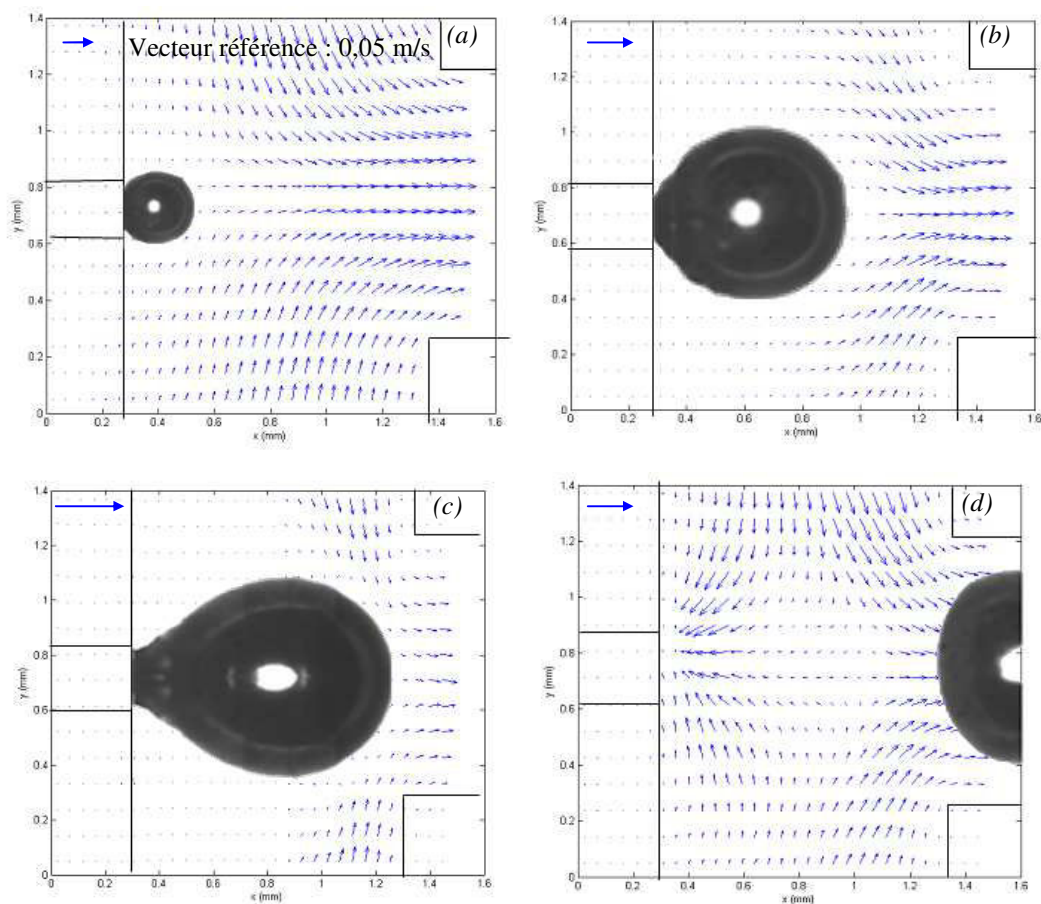


Figure II.82. Mesure du champ de vitesse obtenue par le système μ - PIV pour la formation d'une bulle de 10^{-9} m^3 dans un micro-mélangeur de type flow focusing (d'angle de 180°). Les mesures par μ -PIV sont situées au milieu du canal. L'entrée de gaz est de $200 \mu\text{m}$, les canaux carrés d'entrée et sortie pour le liquide sont de $1000 \mu\text{m}$, le liquide est de l'eau pure et le gaz de l'air (a) $t/t_f = 0,05$, (b) $t/t_f = 0,3$ (c); $t/t_f = 0,8$, (d) $t/t_f = 1$.

Le technique μ -PIV est un outil puissant pour évaluer les principales forces qui agissent lors de la formation des bulles. Comme indiqué sur les figures II.80.c et II.80.d, le col de la bulle subit un cisaillement qui peut être estimé à partir des vitesses de liquide parallèles à l'interface de la bulle lors de ses différentes étapes de rupture. Dans l'exemple présenté sur la figure II.80., le cisaillement est d'environ 500 s^{-1} au moment de la rupture. Mais, en évaluant la différence de pression d'autres forces agissant lors de la formation de bulles, on s'aperçoit que le cisaillement n'est pas le phénomène prépondérant.

Le tableau II.05 présente les trois principales pressions qui peuvent agir sur la formation des bulles et leurs valeurs pour l'exemple donné sur les figures II.80 et II.82.

	Pressions	Valeur pour l'exemple II.79 et 80
Cisaillement	$\tau = \mu \dot{\gamma} \quad (II.56)$	$\Delta P = 0.5 \text{ Pa}$
Tension superficielle	$\Delta P = \frac{2\sigma}{R} \quad (II.57)$	$\Delta P = 312 \text{ Pa}$
Gradient statique	Loi de Bernoulli : $\Delta P = \frac{1}{2} \rho v^2 \quad (II.58)$	$\Delta P = 5 \text{ Pa}$

Tableau II.05. Evaluation des différentes pressions intervenant lors de la formation de la bulle pour l'exemple donné sur les figures II.80 et II.82.

On voit que les forces de cisaillement et les gradients de pression sont faibles devant la pression capillaire, ce qui explique que la bulle reste pratiquement sphérique. Ensuite, on voit que les forces type cisaillement sont très faibles devant les gradients de pression. On peut donc s'attendre à ce que, in fine, on ait affaire à une compétition entre gradients de pression et effets capillaires. Ce calcul, rendu possible grâce à la mesure du champ d'écoulement autour d'une bulle en formation dans un micro-mélangeur, conforte certains résultats de la littérature (Cubaud *et al.*, 2005 et Garstescki *et al.*, 2006) sur le mécanisme physique de la formation. Par ailleurs, comme indiqué sur la figure II.80 et II.82, la forme des bulles n'est pas tellement déformée. Ceci peut être expliqué par les valeurs de pressions à la formation de bulles données dans le tableau II.05.

En plus de la mesure locale des écoulements par la technique μ -PIV, les propriétés des bulles formées telles que la longueur ou le volume ont été mesurées au moyen d'une caméra à haute vitesse et d'un débitmètre massique. L'analyse d'images couplée à une calibration fine permettent de déterminer la longueur des bulles. Le volume des bulles a été évalué de deux façons différentes : la première en récupérant en fonction du temps le volume de gaz obtenu en introduisant le mélange diphasique gaz-liquide dans une éprouvette initialement remplie de liquide, la seconde en utilisant un débitmètre massique (Aalborg *mass flowmeter* GFM17). Ces deux techniques de mesures ont permis d'obtenir des débits de gaz similaires. L'analyse

d'images nous permettant de mesurer la fréquence de formation des bulles, le volume des bulles est alors déduit en combinant de ces deux techniques différentes. Il est à noter que la régularité du débit de gaz est une donnée indispensable quant à la réalisation de tels écoulements à cette échelle, sachant que la moindre fluctuation conduit à des différences flagrantes de la taille des bulles, deux chambres tampons ont été utilisées pour amortir au maximum les fluctuations en débit de gaz. Le débit de liquide est, quant à lui, récupéré dans une fiole de précision au cours d'un temps suffisamment long pour atténuer les erreurs de mesure. Ainsi, en faisant varier le débit, tout en mesurant précisément la taille et la longueur des bulles, il est donc possible de déterminer les principaux facteurs physiques impliqués dans le mécanisme de formation.

La figure II.83 présente la variation de tailles observée pour des débits de gaz et de liquide (ici de l'eau) différents dans un micro-mélangeur de type *flow focusing* (angle 180°).

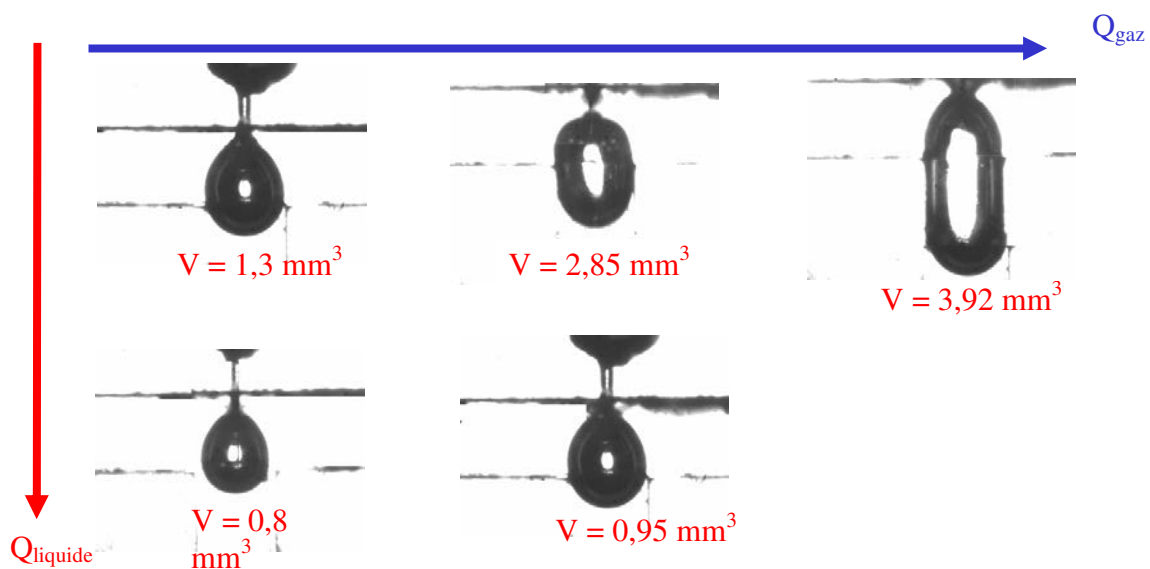


Figure II.83. Evolution du volume des bulles selon les débits de gaz et de liquide

Comme nous l'avons observé sur la figure II.81, les débits de phases gazeuse et liquide semblent avoir une influence importante sur la formation de bulles. Une augmentation du débit de la phase gazeuse conduit à une augmentation du volume de la bulle, tandis qu'une augmentation de la phase liquide conduit à une diminution de son volume. Afin de confirmer cette évolution de la taille, on s'intéresse cette fois au rapport adimensionnel entre la longueur de la bulle L et la section du canal W ce qui permettra de comparer ultérieurement les résultats de micro-mélangeurs de tailles différentes. La figure II.84 présente l'évolution du

rapport L/W en fonction du débit de la phase gaz ou liquide à débit de liquide ou gaz constant respectivement.

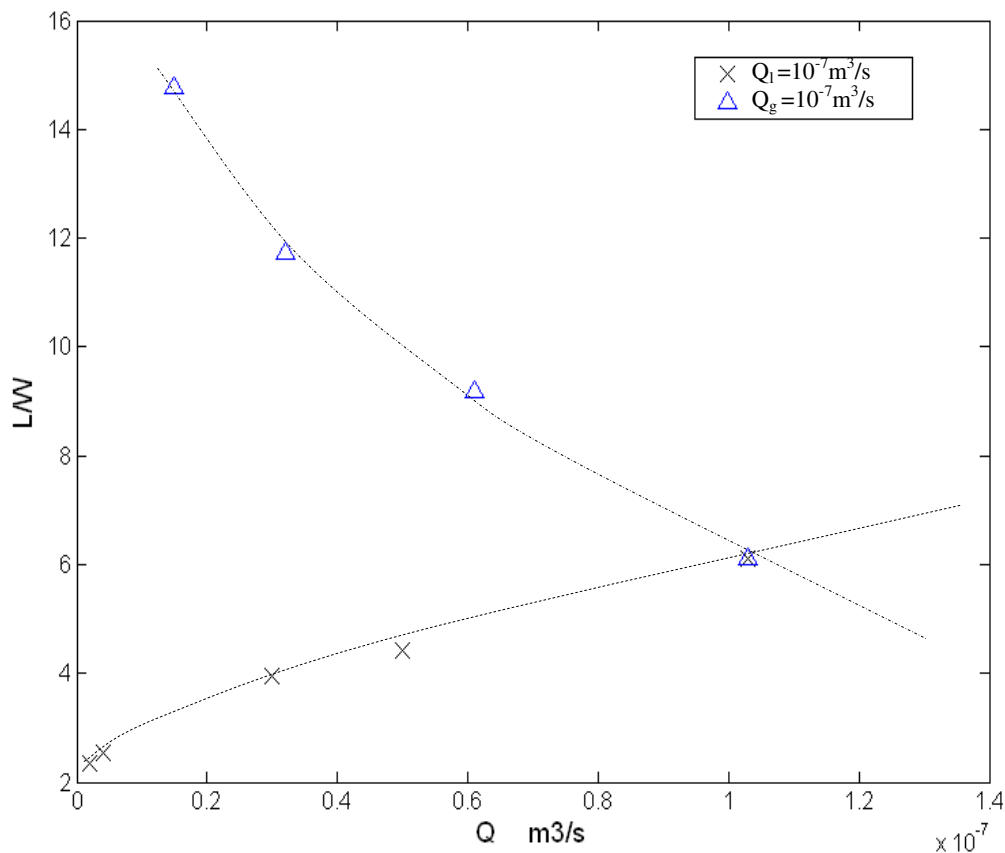


Figure II.84. Influence des débits de gaz et de liquide sur le rapport entre la longueur des bulles et le diamètre du canal (L/W). ($\times$) en fonction de Q_g , à Q_l constant ($\triangle$) en fonction de Q_l , à Q_g constant. Taille de l'entrée du gaz de $200\ \mu\text{m}$, du liquide de $1000\ \mu\text{m}$. Micro-mélangeur de type flow focusing (angle de 180°). Système eau-air.

Ainsi on retrouve les mêmes conclusions que pour la figure II.83. Cette évolution peut s'expliquer par l'augmentation du cisaillement sur la bulle dû à l'augmentation du débit de phase liquide conduisant à la formation de petites bulles. On peut toutefois noter que l'influence de la phase liquide semble légèrement plus forte que celle de la phase gaz dans l'exemple présenté. L'introduction du rapport des débits de la phase gazeuse Q_G et de la phase liquide Q_L devient alors utile si on veut suivre l'évolution du rapport L/W pour différentes valeurs de W . La figure II.86 montre l'évolution du rapport L/W pour la formation de bulles dans de l'eau en fonction du rapport Q_G/Q_L , pour trois micro-mélangeurs de type *flow focusing* (angle 180°) de taille de canaux différents. Deux tailles de canaux d'entrée du gaz sont utilisées (200 et $500\ \mu\text{m}$) et deux tailles du canal d'entrée du liquide et du canal de sortie du

mélange sont utilisées (500 et 1000 μm), en gardant toujours le canal d'entrée du gaz plus petit que le canal d'entrée du liquide pour permettre à la bulle de se former sans être perturbée dès les premiers stades de sa formation par les parois du micro-mélangeur. Pour cette expérience ainsi que pour toutes celles qui vont suivre, les débits de gaz et de liquide évolueront entre 10^{-12} et $10^{-7} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$, ce qui correspond à la plus grande gamme de débits possible offerte par notre système de réservoir sous pression (2 bars). La valeur de W est celle du canal d'entrée du gaz.

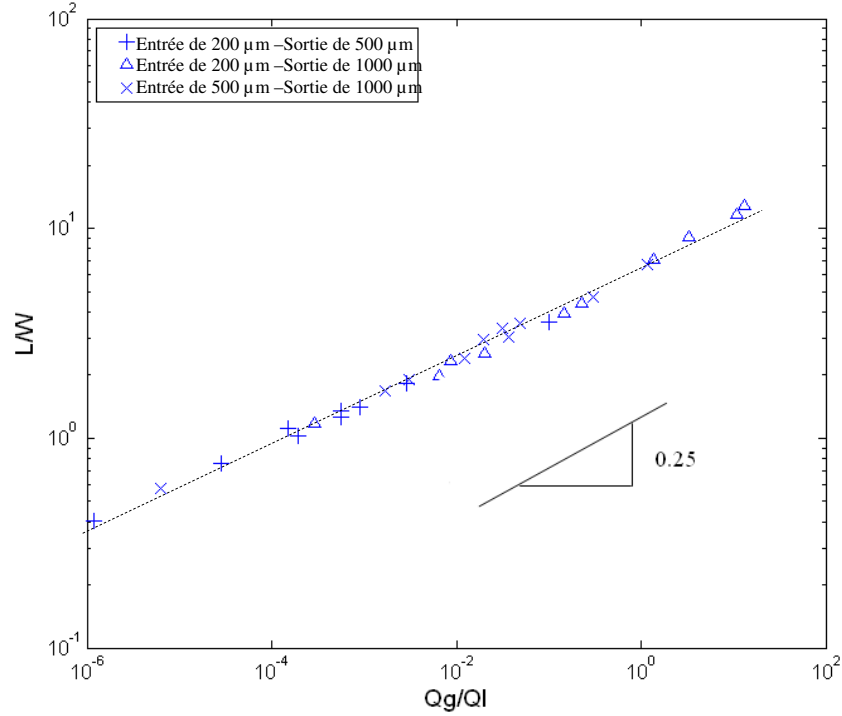


Figure II.85. Evolution du rapport L/W en fonction du rapport Q_g/Q_l pour différentes tailles de micro-mélangeurs de type flow focusing (angle 180°) pour la formation de bulles d'air dans l'eau.

On observe sur cette figure un parfait alignement des points qui suivent donc une loi de puissance. On remarque que, dans notre cas, les bulles sont suffisamment petites pour que la taille du canal de sortie n'influence pas la taille de la bulle, contrairement à la taille du canal d'entrée. L'évolution du rapport L/W en fonction du rapport Q_G/Q_L pour différentes tailles du canal d'entrée du gaz et taille du canal de sortie du mélange gaz-liquide peut être représentée par la corrélation suivante: (Avec $W = W_{\text{gaz}}$).

$$\frac{L}{W} = \beta \left(\frac{Q_G}{Q_L} \right)^\alpha \quad (\text{II.60})$$

Cette loi décrit bien l'influence à la fois des débits et aussi de la taille des micro-mélangeurs qui est prise en compte par le rapport L/W . L'exposant α ainsi obtenu est de 0,25, β semble dépendre des propriétés physico-chimiques du liquide et de la géométrie des micro-

mélangeurs. Par ailleurs, l'équation II.60 est conforme à celle proposée par Ganau et Gordillo (2001), qui ont trouvé un exposant pour leur loi de puissance de 0,37. Cet écart avec l'exposant de 0,25 de notre étude tient probablement aux effets de parois qui se produisent dans leurs microcanaux de taille plus faible et qui laissent donc moins de place à la bulle pour se former.

Pour confirmer ces hypothèses, d'autres fluides ont été utilisés en faisant varier la viscosité (1,10 et 30 mPa.s), la tension superficielle (40, 50 et 72 mN/m) ainsi que la géométrie du micro-mélangeur (angle entre les deux canaux de liquide de 60, 90 et 180°) pour la même gamme de débits que précédemment. La figure II.86 montre l'évolution du rapport L/W en fonction du rapport Q_G/Q_L dans trois contextes d'étude différents. Le premier graphique (II.86.a) permet d'étudier l'influence seule de l'angle entre les canaux d'arrivée, à viscosité de phase liquide et tension superficielle constante. Le second (II.86.b) montre l'influence de la tension superficielle à viscosité de phase continue et angle de micro-mélangeur constant, et enfin le dernier (II.86.c) permet d'étudier l'influence de la viscosité à tension superficielle et angle de micro-mélangeur constant.

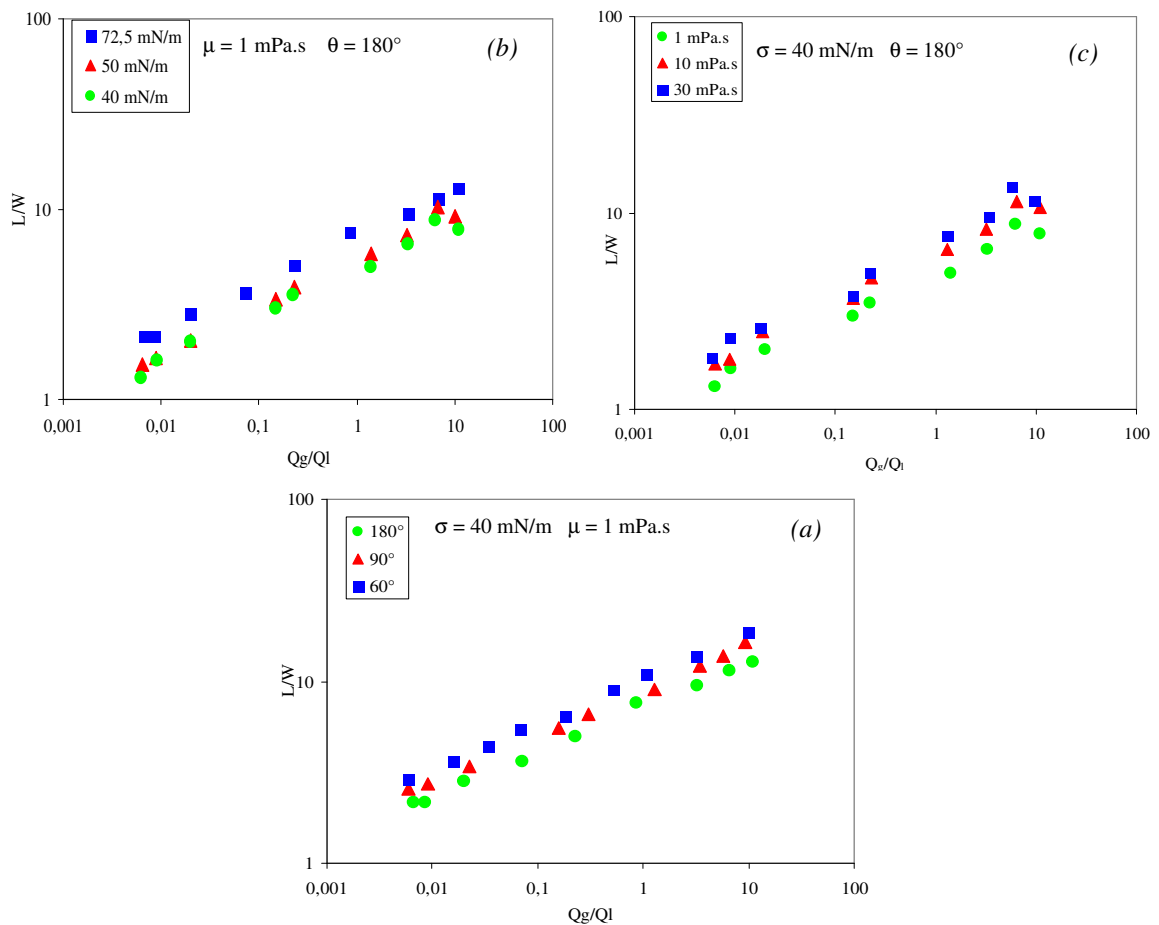


Figure II.86. Evolution du rapport L/W en fonction du rapport Q_G/Q_L pour différents systèmes étudiés.

On constate pour tous les systèmes étudiés, les mêmes tendances que celles obtenues sur la figure II.85. Les courbes suivent la même loi de puissance avec un coefficient $\alpha = 0,25$. L'influence de la géométrie de la section de mélange a été étudiée en testant trois micro-mélangeurs (cf. figure I.08), d'angles différents de 60, 90 et 180° entre les deux canaux d'entrée du liquide, l'entrée de gaz étant au centre de celles-ci. La taille des canaux dans ces mélangeurs était de 200 μm pour l'entrée de gaz et 1000 μm pour celles des phases liquides dans les deux canaux d'entrée. Des expériences ont été réalisées pour chaque géométrie en utilisant différentes conditions opératoires. Pour une géométrie donnée, l'augmentation du rapport des débits conduit à une augmentation de la longueur de la bulle. Mais plus l'angle θ du micro-mélangeur est grand, plus la taille des bulles formées est petite, pour un rapport des débits allant de 10^{-2} à 10. Ceci peut s'expliquer par une augmentation du cisaillement sur la bulle en formation dans le cas des grandes valeurs de θ . L'influence de la tension de surface a été étudiée dans un micro-mélangeur (180°) en utilisant trois concentrations différentes du tensioactif SDS dans de l'eau. Les résultats montrent que la taille de la bulle augmente avec la tension de surface (figure II.86b). Enfin trois fluides de viscosités différentes ont été utilisés (eau pure, HV45 10% et HV45 25%), en ajoutant de faibles quantités de tensioactif SDS pour que les fluides aient la même tension superficielle (eau pure +0,15 % de SDS et HV45 10% + 0,05% de SDS), correspondant à celle du HV45 25% (cf. tableau I.02) afin de découpler les effets de la tension superficielle et de la viscosité. L'effet de la viscosité du liquide a été étudié dans le micro-mélangeur ayant un angle 180° en utilisant trois liquides de même tension superficielle, ce qui a été obtenu en ajoutant le SDS, comme le montre la figure II.86.c. La taille des bulles augmente avec la viscosité du liquide, ce qui est dû aux forces visqueuses qui rendent le cisaillement très faible.

Ainsi, ces trois graphes nous permettent d'affirmer que le coefficient de la loi puissance $\alpha = 0,25$ semble être identique pour tous les systèmes étudiés, alors que β dépendrait de la viscosité, de la tension superficielle, et de la géométrie. Une analyse dimensionnelle a été entreprise pour prédire la taille de la bulle pour toutes les conditions opératoires et les différents micro-mélangeurs étudiés. Dans ce but, 150 données balayant toutes les conditions rencontrées, ont été utilisées pour déterminer une telle corrélation. Le tableau II.06. présente les corrélations obtenues pour chaque géométrie de microréacteur.

$\theta=60^\circ$	$\theta=90^\circ$	$\theta=180^\circ$
		
$\beta=10,3 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{\text{ref}}} \right)^{\frac{6}{5}} \left(\frac{\mu}{\mu_{\text{ref}}} \right)^{\frac{1}{15}}$ (II.61.a) $\varepsilon = 2,64\%$ (erreur max 10%)	$\beta=9 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{\text{ref}}} \right) \left(\frac{\mu}{\mu_{\text{ref}}} \right)^{\frac{1}{10}}$ (II.61.b) $\varepsilon = 3\%$ (erreur max 12%)	$\beta=7,08 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{\text{ref}}} \right)^{\frac{3}{4}} \left(\frac{\mu}{\mu_{\text{ref}}} \right)^{\frac{1}{8}}$ (II.61.c) $\varepsilon = 2,75\%$ (erreur max 13%)

Tableaux II.06. Différentes corrélations obtenues pour estimer β pour chacun des micro-mélangeurs

Les différentes corrélations permettant d'estimer le coefficient β données par le tableau II.06 font intervenir des nombres adimensionnels basés sur la viscosité et la tension superficielle, en utilisant les propriétés physiques de référence μ_{ref} et σ_{ref} de l'eau. Ces corrélations permettent de prédire pour chacune des trois géométries de micro-mélangeur la taille des bulles selon les équations II.61 avec une erreur relative entre les valeurs expérimentales et estimées inférieure à 3%, l'écart maximal observé étant de 13%. A ce stade, plusieurs conclusions peuvent être tirées. Premièrement, l'influence de la tension superficielle est nettement plus importante que l'influence de la viscosité. Ceci est en accord avec le tableau II.06 où la contrainte de cisaillement est plus faible que la pression due aux forces de surfaces. Deuxièmement, l'influence de la tension superficielle augmente lorsque l'angle du micro-mélangeur θ diminue, l'effet de l'élongation étant le plus important sur la bulle (cf. tableau II.06). Inversement à celle de la viscosité qui augmente avec θ du fait de l'augmentation du cisaillement.

L'usage de la technique de μ -PIV peut nous apporter quelques informations supplémentaires quant à la compréhension des forces intervenant lors du mécanisme de formation. La figure II.87 représente deux champs de vitesses lors de la formation d'une bulle dans des conditions similaires dans deux micro-mélangeurs de même taille mais de géométries différentes. Un angle de 180° (fig. II.87.a) et un angle de 60° (fig. II.87.b) sont comparés, le cisaillement pour chacune des deux géométries, l'élongation (rapport entre la longueur de la bulle et son rayon équivalent), ainsi que l'angle formé entre la bulle et la paroi sont indiqués sur cette figure. Les débits ainsi que les propriétés physico-chimiques sont ici fixés à titre comparatif.

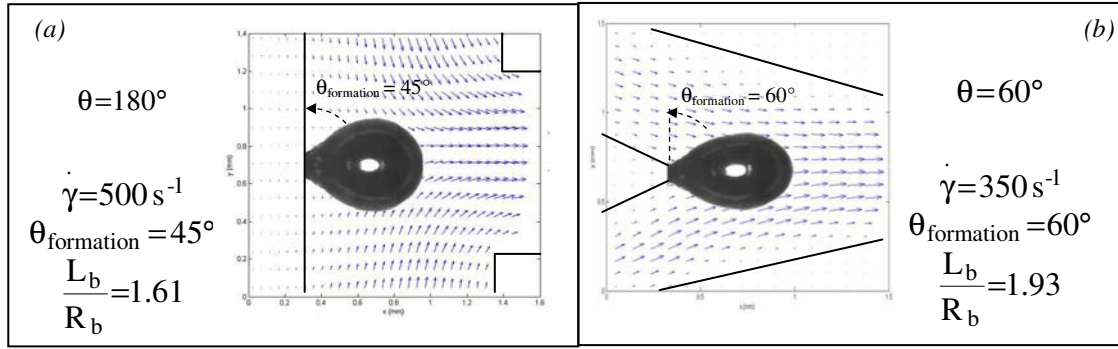


Figure II.87. Comparaison des champs de vitesses obtenus dans deux micro-mélangeurs de géométries différentes obtenus par μ -PIV à la formation d'une bulle dans de l'eau

On peut observer encore une fois que le cisaillement dans le mélangeur d'angle égale à 180° est plus important (500 s^{-1}) que dans celui ayant un angle de 60° (350 s^{-1}). L'influence de la viscosité étant plus importante lorsque le cisaillement est grand, on retrouve les conclusions obtenues à partir des corrélations basées sur l'expérience avec des exposants plus élevés lorsque l'angle est plus grand. On peut noter également que la bulle est plus allongée dans le cas d'un mélangeur de faible angle θ et que l'angle formé à l'office est plus grand. Ceci traduit une plus forte adhésion à l'orifice par la bulle, et donc un effet des forces de tension superficielles plus marqué, comme l'indiquent les corrélations établies.

Ainsi les informations fournies par l'analyse μ -PIV confirment les résultats corrélés obtenus à partir de l'analyse adimensionnelle. Dans le but de tenir compte à la fois de l'influence de l'angle sur la prédiction de la taille de la bulle, et sur les influences différentes de la viscosité et de la tension superficielle pour les différentes géométries, un nouveau nombre sans dimension défini par le rapport entre l'angle du mélangeur θ et sa valeur maximale $\theta_{\max}$ ($=180^\circ$) est introduit. Ainsi, à partir des 150 points expérimentaux de formations de bulles, la corrélation suivante (Eq II.62) a été obtenue :

$$\frac{L}{W} = 8,3 \left(\frac{\theta}{\theta_{\max}} \right)^{-\frac{1}{8}} \left(\frac{\sigma}{\sigma_{ref}} \right) \left(\frac{\mu}{\mu_{ref}} \right)^{\frac{1}{10}} \left(\frac{Q_{gaz}}{Q_{liquide}} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (II.62)$$

La figure II.88, qui représente le diagramme de parité entre les points expérimentaux et les points estimés à partir de la corrélation (II.62), montre un très bon accord.

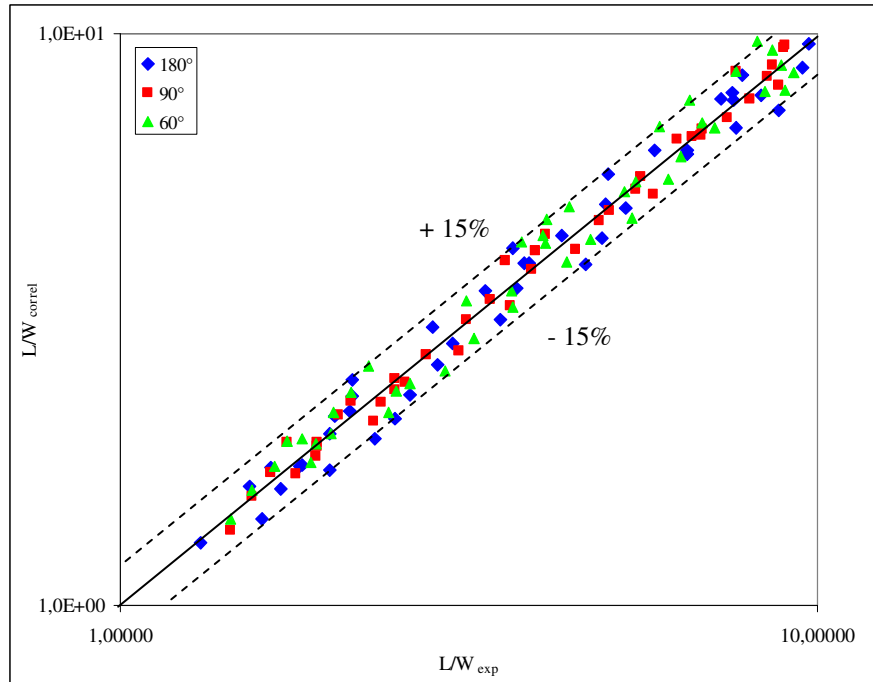


Figure II.88. Diagramme de parité obtenu entre les résultats expérimentaux et la corrélation proposée (II.62) pour la formation de bulle dans des micro-mélangeurs de type flow focusing.

L'erreur moyenne obtenue avec cette corrélation (II.62) est d'environ 6,5% (avec une erreur maximale de 18,7%). Cette corrélation permet donc d'estimer de façon précise la taille de la bulle formée dans un liquide de viscosité allant de 1 à 30 mPa.s, une tension superficielle allant de 40 à 72 mN/m, et différentes géométries et tailles du micro-mélangeur de type *flow focusing* ($\theta = 60, 90$ et 180° et $W_g = 200$ et $500 \mu\text{m}$). Cette corrélation est donc un outil utile pour le dimensionnement rapide de microréacteurs et tient compte des propriétés physico-chimiques du liquide et surtout de la géométrie du mélangeur.

Enfin, la même étude adimensionnelle a été effectuée en se basant sur le volume de la bulle dans les mêmes conditions opératoires. Afin de simplifier davantage la corrélation précédente, l'angle de contact θ_c de la phase liquide est introduit à la place de la tension superficielle, permettant ainsi la création d'un nombre adimensionnel basé sur les angles du micro-mélangeur θ et de contact θ_c .

Enfin, le rapport des viscosités entre les deux phases est introduit également pour obtenir la relation suivante :

$$\frac{V_b}{W_g^3} = 300 \left(\frac{\theta}{\theta_c} \right)^{-\frac{1}{6}} \left(\frac{\mu_L}{\mu} \right)^{\frac{1}{50}} \left(\frac{Q_G}{Q_L} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (II.63)$$

L'erreur moyenne de la prédiction obtenue par cette corrélation est d'environ 12%, le diagramme de parité n'est pas représenté ici car il est similaire à celui présenté sur la figure II.88. Comme il a été souligné auparavant, cette équation confirme plusieurs observations. L'influence de la tension superficielle est nettement plus forte que celle de la viscosité, mais est sensiblement similaire à celle des débits ou encore de la géométrie du mélangeur. Alors que l'angle du microréacteur, la viscosité du liquide ou encore le débit de phase gazeuse font augmenter la taille de la bulle, la tension superficielle et le débit de phase liquide la font diminuer.

Il est maintenant intéressant de savoir si de telles observations sont également possibles pour les micro-mélangeurs de type T et Y où il y a une entrée de gaz et une seule entrée de liquide.

II.4.2.4. Formation de bulles dans les micro-mélangeurs de « type Y » et de « type T »

Les micro-mélangeurs étudiés sont des jonctions de différentes formes :

- « type T » d'angle 180°.
- « type Y » d'angles de 60 et 90°.

Les canaux d'entrée de gaz W_g ou de liquide W_l sont de taille identique et de section carrée, on notera cette section W dans la suite de cette étude.

- Micro-mélangeur de type T (180°)

La formation des bulles dans ce type de micro-mélangeur est nettement différente des micro-mélangeurs de type *flow-focusing*. L'arrivée frontale des deux phases conduit à leur propagation dans le canal de sortie sans mener à la rupture de la bulle. La phase gazeuse s'allonge sous l'effet du cisaillement de la phase liquide jusqu'à sa rupture et la formation de la bulle comme l'illustre la figure II.89.

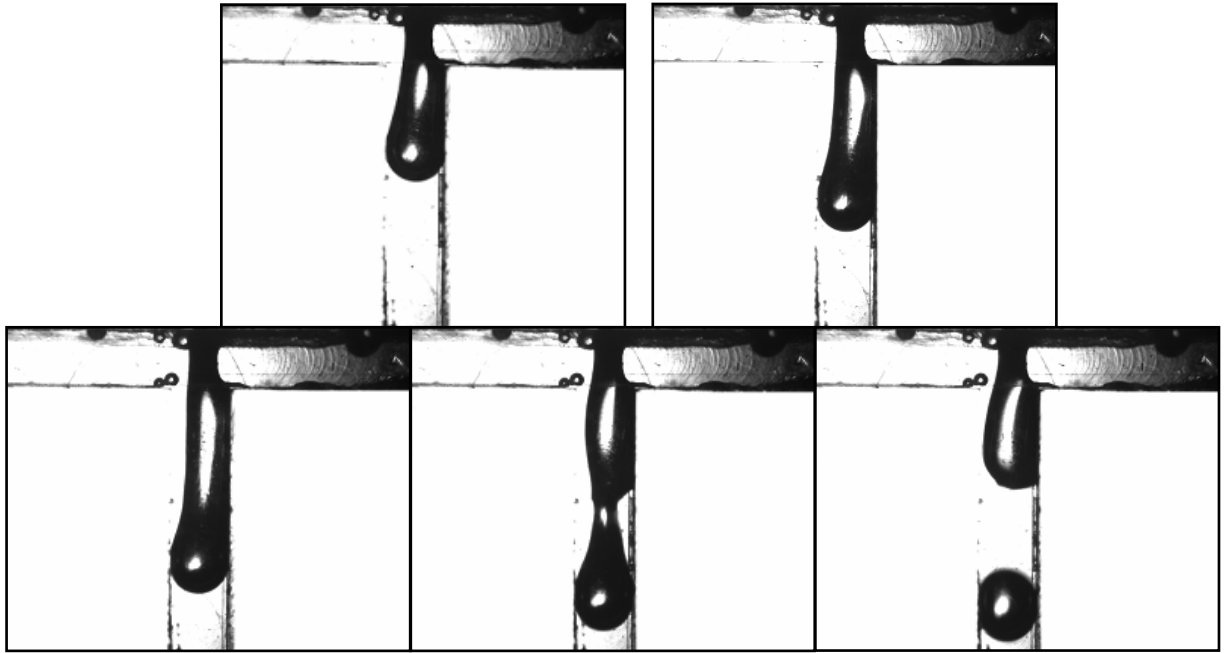


Figure II.89. Formation de bulles dans un micro-mélangeur de « type T » dans de l'eau. $W = 500\mu\text{m}$

Le débit des deux phases est approximativement $10^{-8} \text{ m}^3/\text{s}$, et le temps de formation de la bulle d'une centaine de microsecondes. L'outil de mesure des champs de vitesses par $\mu\text{-PIV}$ permet de visualiser les contraintes de cisaillement de la phase liquide sur la phase gazeuse menant à la rupture de la bulle. La figure II.90 présente les champs de vitesses à la rupture de la bulle.

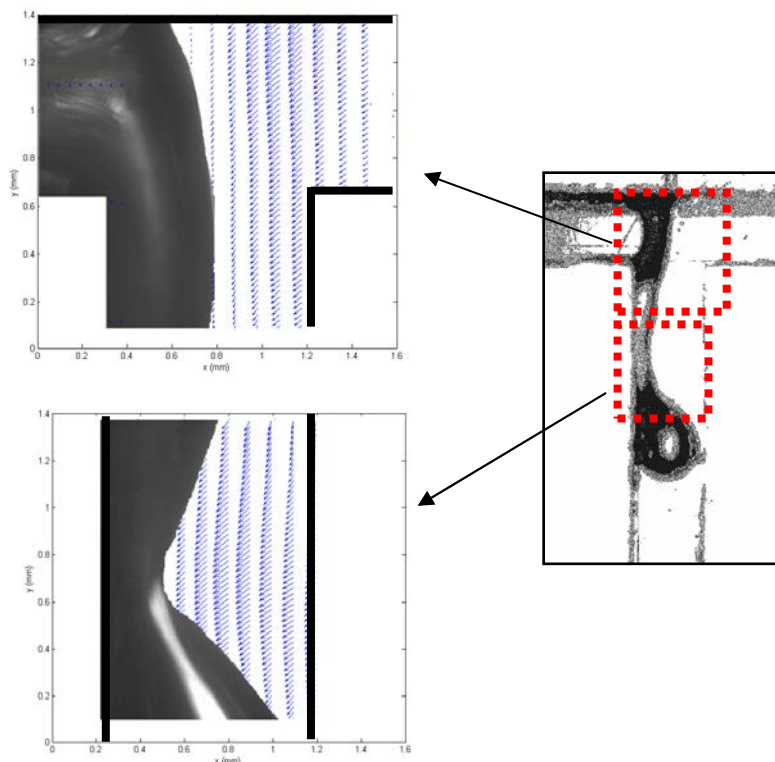


Figure II.90 Mesure locale des champs de vecteur vitesses lors de la formation d'une bulle dans un micro-mélangeur de type T dans de l'eau. $W = 500\mu\text{m}$. $Q_G = Q_L = 10^{-10} \text{ m}^3/\text{s}$.

Il n'est pas possible, contrairement au cas des micro-mélangeurs de type *flow focusing*, de mesurer les différentes pressions en raison de la complexité de la formation de la bulle. En effet, les interactions entre les deux phases sont plus complexes et la bulle n'est pas axisymétrique, il nous est donc impossible, dans ce cas, de conclure quand au gradient prédominant sur la formation. Le but de notre étude est donc de savoir qualitativement si ce sont les mêmes forces qui prédominent sur la formation en établissant une corrélation entre les paramètres principaux responsables de la formation.

La figure II.91 représente les variations de tailles observées pour des débits de gaz et de liquide différents dans un micro-mélangeur de « type T » (angle 180°).

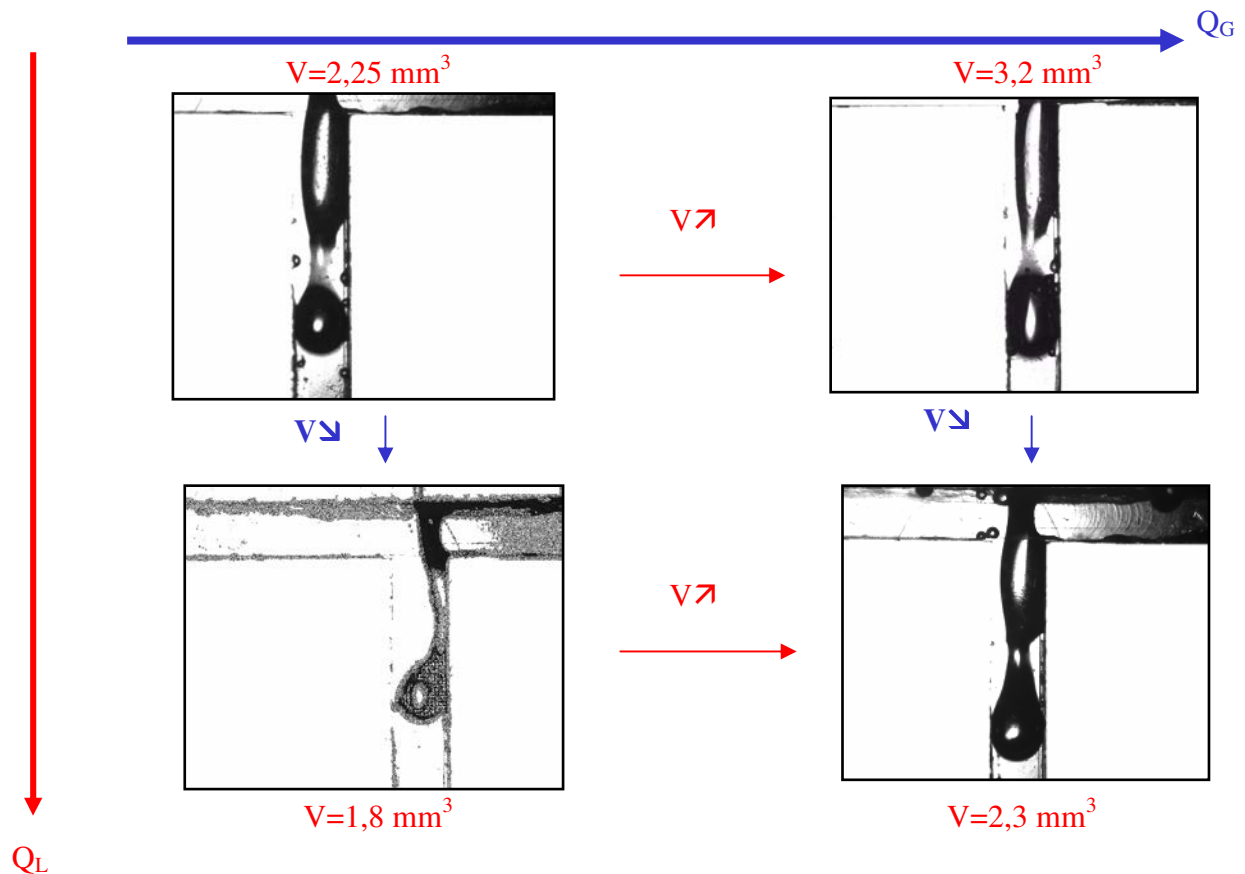


Figure II.91. Evolution du volume des bulles selon les débits de gaz et de liquide

De même que dans le cas du *flow-focusing*, une augmentation de débit de la phase gazeuse conduit à une augmentation du volume de la bulle, tandis qu'une diminution de ce volume est obtenue en augmentant le débit de la phase liquide. De plus, il est intéressant de noter que la rupture des bulles n'a pas lieu au même endroit contrairement, au micro-mélangeur de type *flow focusing*, comme le montre la figure II.92.

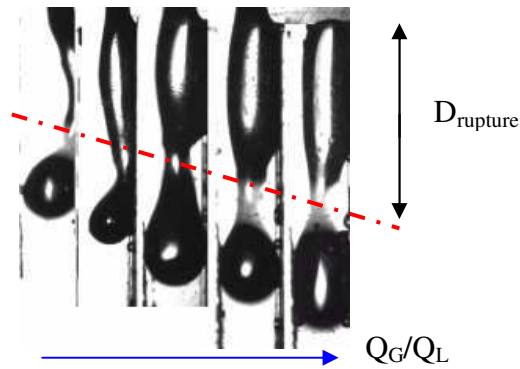


Figure II.92. Images des distances où ont lieu la rupture en fonction du rapport des débits.

La distance du lieu de rupture $D_{rupture}$ et de formation de la bulle semble donc dépendre du rapport des débits des phases gazeuse et liquide.

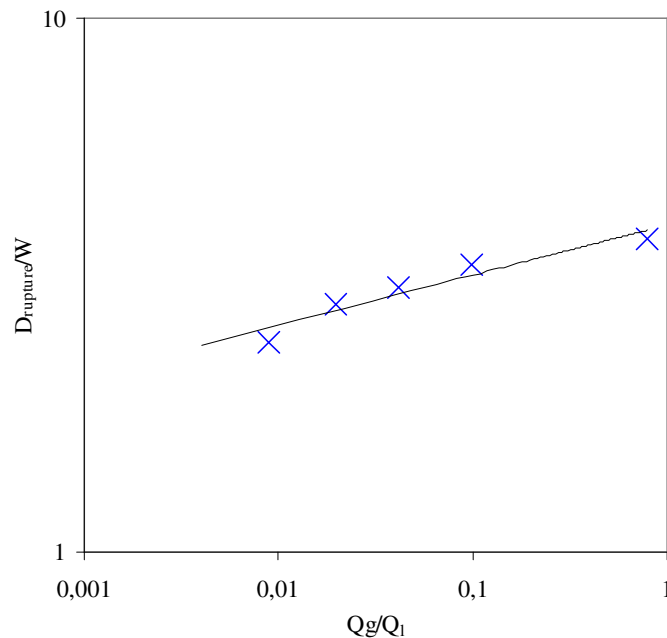


Figure II.93. Evolution de la distance où a lieu la rupture en fonction du rapport des débits.

Cette distance a été mesurée pour différents rapports de débits dans le cas du système eau-air. La figure II.93 montre l'évolution du rapport $D_{rupture}/W$ en fonction du rapport des débits Q_g/Q_l . Cette évolution peut être représentée, dans le cas de la formation de bulles dans l'eau, selon une loi puissance :

$$\frac{D_{rupture}}{W} = 4 \left(\frac{Q_{gaz}}{Q_{liquide}} \right)^{\frac{1}{10}} \quad (II.64)$$

Ce déplacement dans la conduite du lieu où la rupture intervient montre la difficulté à essayer de quantifier la compétition des forces intervenant lors de la formation des bulles. Néanmoins, l'étude sur la taille de bulles pourra nous renseigner sur l'importance des forces intervenant dans le mécanisme de formation des bulles dans ce type de micro-mélangeurs. Comme précédemment le rapport adimensionnel entre la longueur de la bulle L et la section du canal W sera considéré ici. La figure II.94 présente l'évolution du rapport L/W en fonction du débit de la phase gazeuse (à débit de phase liquide constant) et inversement. Pour cette expérience ainsi que pour toutes celles qui vont suivre, les débits de gaz et de liquide sont compris entre 10^{-10} et $10^{-7} \text{ m}^3/\text{s}$.

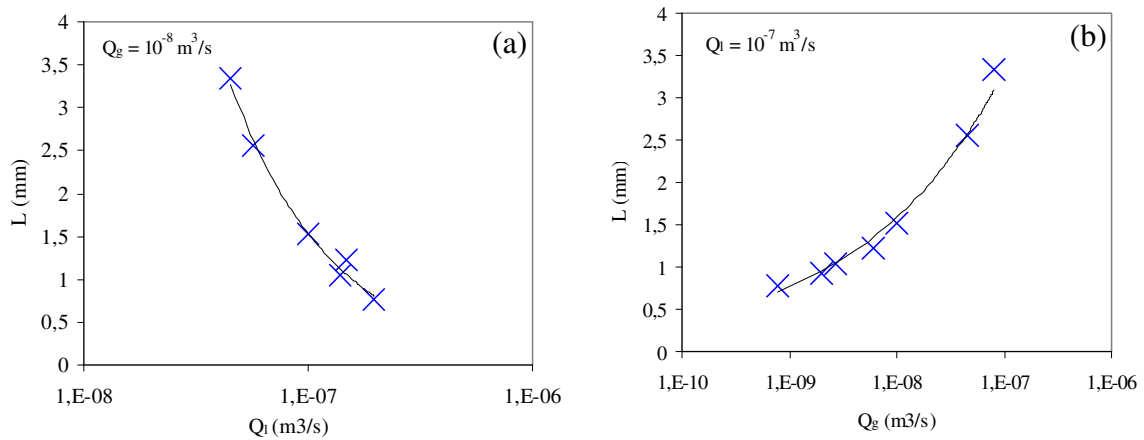


Figure II.94. Influence des débits de gaz et de liquide sur la longueur de la bulle L . (a) en fonction de Q_G à Q_L constant (b) en fonction de Q_L à Q_G constant. $W = 1000 \mu\text{m}$. Micro-mélangeur de « type T » (angle de 180°). Système eau-air.

On retrouve les observations expérimentales précédentes avec une augmentation du volume de la bulle lorsque le débit de la phase gazeuses augmente et une diminution de ce volume à débit de phase liquide croissant. Le tracé du rapport L/W en fonction du rapport Q_G/Q_L , permet d'obtenir un parfait alignement des points expérimentaux (figure II.96). Comme pour les réacteurs de type *flow focusing*, les points suivent la loi de puissance précédemment développée :

$$\frac{L}{W} = \beta \left(\frac{Q_G}{Q_L} \right)^\alpha \quad (II.60)$$

Cependant, on obtient ici un exposant légèrement différent : $\alpha = 0,2$. Avant de vérifier si cette valeur est valable pour toutes les gammes de viscosité ou de tension superficielle de la phase liquide, nous nous intéresserons au mélangeur de « type Y »

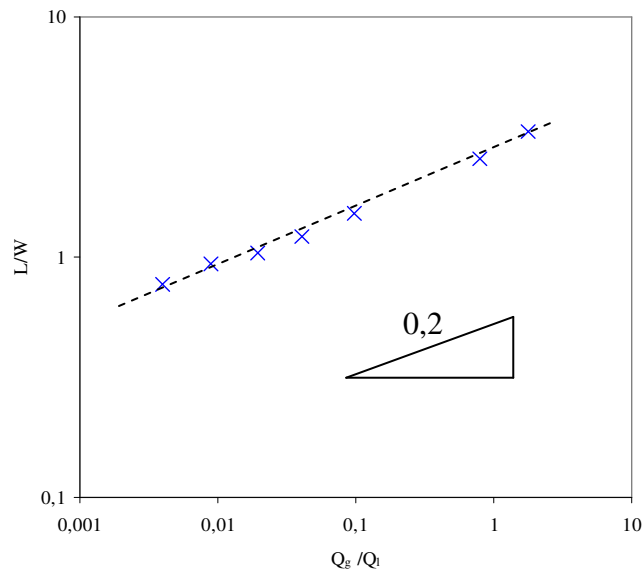


Figure II.95. Evolution du rapport L/W en fonction du rapport Q_G/Q_L pour un micro-mélangeur de « type T » (angle 180°) pour la formation de bulles d'air dans l'eau.

- micro-mélangeur de « type Y »

La formation de la bulle se fait en plusieurs étapes comme le montre la figure II.96., la première est une expansion radiale, puis lorsque la bulle atteint une taille critique, elle entame alors un mouvement d'élongation sous l'action des contraintes de cisaillement et de l'inertie tout en continuant à s'accroître. A ce stade, la bulle connaît, simultanément, une phase d'expansion et une phase d'élongation. La formation s'achève lorsque la bulle se détache sous la force exercée par l'eau qui cisaille le film d'air allongé. Les champs de vitesses permettent de mettre en évidence la présence de ces contraintes de cisaillement latéral à la bulle. Plus le débit de liquide est grand, plus la taille critique de la bulle diminue ; ainsi la phase d'élongation devient prépondérante sur l'autre phase.

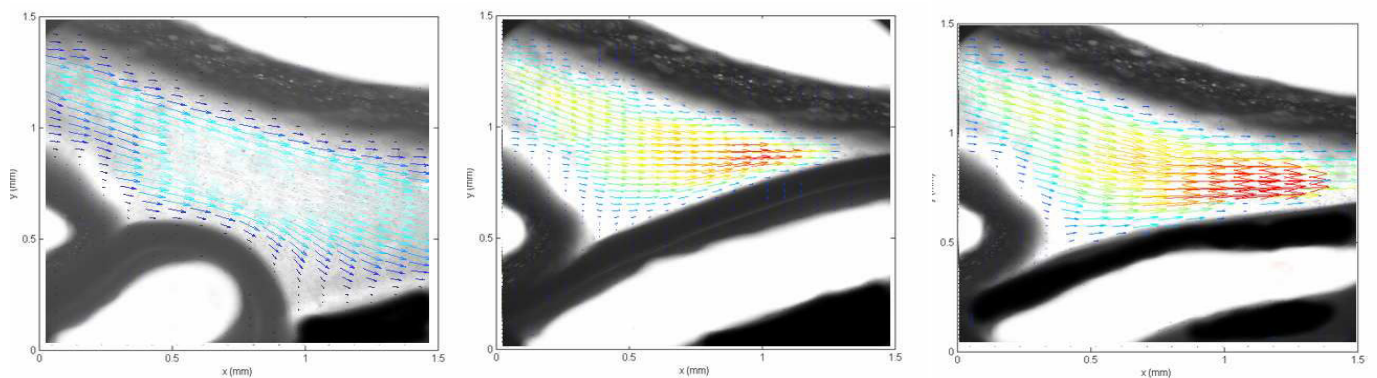
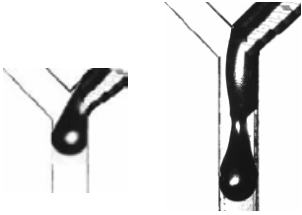
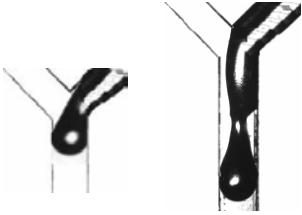
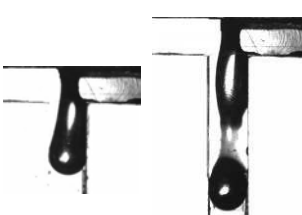


Figure II.96. Formation d'une bulle d'air dans de l'eau dans un micro-mélangeur de type « T » d'angle 60° de section circulaire de $800 \mu\text{m}$. Les champs de vitesses sont mesurés par la technique μ -PIV. Le temps entre les images est de 133 ms . Le volume de la bulle est de $1,4 \text{ mm}^3$ et les débits des deux phases valent $10^{-10} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$.

Comme lors de l'étude effectuée pour les micro-mélangeurs de type *flow focusing*, nous nous intéressons maintenant à la détermination de la relation entre le coefficient β et les propriétés physico-chimiques de la phase liquide et la géométrie des micro-mélangeurs. De même que pour l'étude du *flow focusing*, trois viscosités différentes sont étudiées (1, 10 et 30 mPa.s), ainsi que trois tensions superficielles différentes (40, 50 et 72 mN/m) dans trois géométries de micro-mélangeurs différents (un « type T » de 180° et deux « types Y » de 90° et 60°). Ces paramètres sont testés pour des débits de phases gaz et liquide compris entre 10^{-11} et 10^{-7} m³/s. L'ensemble de ces études montre encore une fois une similitude sur la valeur de l'exposant de la loi de puissance α avec $\alpha = 0,2$. Contrairement aux valeurs de β qui diffèrent selon le système. Ainsi, pour chaque géométrie de mélangeur, nous avons corrélé le facteur β de l'équation II.60 en fonction des propriétés physico-chimiques, les trois corrélations obtenues sont présentées dans le tableau II.07 :

$\theta=60^\circ$	$\theta=90^\circ$	$\theta=180^\circ$
		
$\beta = 7,9 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{\text{ref}}} \right)^{\frac{8}{3}} \left(\frac{\mu}{\mu_{\text{ref}}} \right)^{\frac{1}{18}}$ (II.66.a)	$\beta = 5,36 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{\text{ref}}} \right)^{\frac{5}{2}} \left(\frac{\mu}{\mu_{\text{ref}}} \right)^{\frac{1}{17}}$ (II.66.b)	$\beta = 1,79 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{\text{ref}}} \right)^{\frac{2}{3}} \left(\frac{\mu}{\mu_{\text{ref}}} \right)^{\frac{1}{13}}$ (II.66.c)
$\varepsilon = 4\% \text{ (max } 16\%)$	$\varepsilon = 4\% \text{ (max } 17\%)$	$\varepsilon = 5\% \text{ (max } 18\%)$

Tableaux II.07. Différentes corrélations obtenues pour estimer β pour chacun des micro-mélangeurs.

Ces corrélations permettent de prédire, pour chacune des trois géométries de micro-mélangeur, la taille des bulles selon l'équation II.66 avec une erreur relative inférieure à 5% et un écart maximal observé de 18% entre les valeurs expérimentales et estimées. A ce stade, plusieurs conclusions peuvent être tirées. Premièrement, l'influence de la tension superficielle est nettement plus importante que l'influence de la viscosité. Deuxièmement, l'influence de la tension superficielle augmente lorsque l'angle du micro-mélangeur θ diminue (où l'effet de l'élongation est le plus important sur la bulle cf. tableau II.07) et enfin, l'effet de la viscosité

augmente avec l'angle θ (lorsque le cisaillement croît). Dans le but de tenir compte de l'influence de l'angle sur la prédiction de la taille de la bulle, et sur les influences différentes de la viscosité et de la tension superficielle pour les différentes géométries, un nouveau nombre sans dimension est introduit : le rapport entre l'angle des deux entrées du mélangeur θ et sa valeur maximale $\theta_{\max}$ ($=180^\circ$). Ainsi à partir des 150 points expérimentaux de formation de bulles, la corrélation suivante (Eq II.67) a été obtenue :

$$\frac{L}{W} = 2,5 \left(\frac{\theta}{\theta_{\max}} \right)^{-\frac{1}{3}} \left(\frac{\sigma}{\sigma_{ref}} \right)^{\frac{6}{5}} \left(\frac{\mu}{\mu_{ref}} \right)^{\frac{1}{20}} \left(\frac{Q_{gaz}}{Q_{liquide}} \right)^{\frac{1}{5}} \quad (II.67)$$

La figure II.97, qui représente le diagramme de parité entre les points expérimentaux et les points estimés à partir de la corrélation (II.67), montre un très bon accord entre ceux-ci.

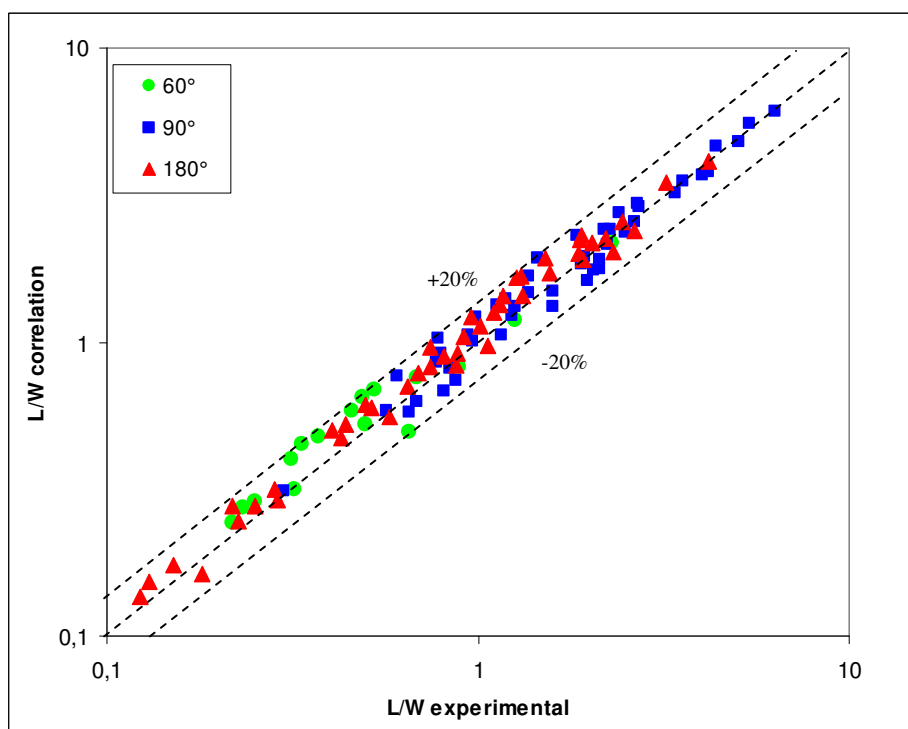


Figure II.97. Diagramme de parité obtenu entre les résultats expérimentaux et la corrélation proposée (II.67) pour la formation de bulles dans des micro-mélangeurs de types T et Y (angle 60, 90 et 180°).

L'erreur moyenne obtenue par cette corrélation (II.67) est d'environ 12% (avec une erreur maximale de 23%). Cette corrélation permet donc d'estimer de façon satisfaisante la taille de la bulle formée dans un liquide de viscosité allant de 1 à 30 mPa.s, une tension superficielle allant de 40 à 72 mN/m, et différentes géométries et tailles du micro-mélangeur ($\theta = 60, 90$ et

180° et $W = 500$ et $1000 \mu\text{m}$). Enfin, la même étude adimensionnelle a été effectuée en se basant sur le volume de la bulle dans les mêmes conditions opératoires. De même que précédemment, on simplifie la corrélation précédente en introduisant l'angle de contact θ_c de la phase liquide à la place de la tension superficielle pour prendre en compte les angles du micro-mélangeur θ et de contact θ_c pour obtenir la relation suivante :

$$\frac{V}{W^3} = 6.87 \left(\frac{\theta}{\theta_c} \right)^{-\frac{1}{2}} \left(\frac{\mu_L}{\mu_G} \right)^{\frac{1}{30}} \left(\frac{Q_G}{Q_L} \right)^{\frac{1}{5}} \quad (II.68)$$

L'erreur moyenne de prédiction des valeurs de volume de bulles par cette corrélation est d'environ 18%, le diagramme de parité n'est pas représenté ici car il est similaire à celui présenté sur la figure II.98. Au vu de l'exposant obtenue (1/30) pour le rapport de viscosité, ce terme n'est pas significatif dans la formation de bulle, et pourra être retiré de la relation II.68.

Comme nous l'avions précédemment souligné, cette équation confirme plusieurs observations. L'influence de la tension superficielle qui est nettement plus forte que celle de la viscosité, mais sensiblement similaire à celle des débits ou encore de la géométrie du mélangeur. Alors que l'angle du microréacteur, la viscosité du liquide ou encore le débit de phase gazeuse font augmenter la taille de la bulle, la tension superficielle et le débit de phase liquide la font diminuer. Cette corrélation obtenue nous permet donc de déterminer les forces prédominantes au sein du microréacteur.

II.4.2.5. Formation de bulles dans les micro-mélangeurs à courant latéraux

La dernière configuration testée est une variante du micro-mélangeur en forme de T (angle de 180°). L'entrée du gaz se fait ici en utilisant la sortie du micro-mélangeur T de sorte qu'elle soit perpendiculaire à l'entrée du liquide. On parle alors de courants latéraux ou encore de *shear flow* car la bulle se forme par arrachement dû au courant latéral qui la cisaille. En raison de cette configuration, il est impossible de changer la géométrie et donc d'observer les différents effets physico-chimiques. Nous nous contenterons donc ici d'une étude préliminaire de l'hydrodynamique de la formation de bulles dans ce type de micro-mélangeur.

La figure II.98 montre la formation d'une bulle dans deux cas extrêmes. Sur la figure (a), le débit de gaz est plus important que celui du liquide et on observe la formation de longues bulles en régime de *slug*, alors que sur la figure (b), le débit de liquide est plus important que le débit de gaz, entraînant la formation de petites bulles.

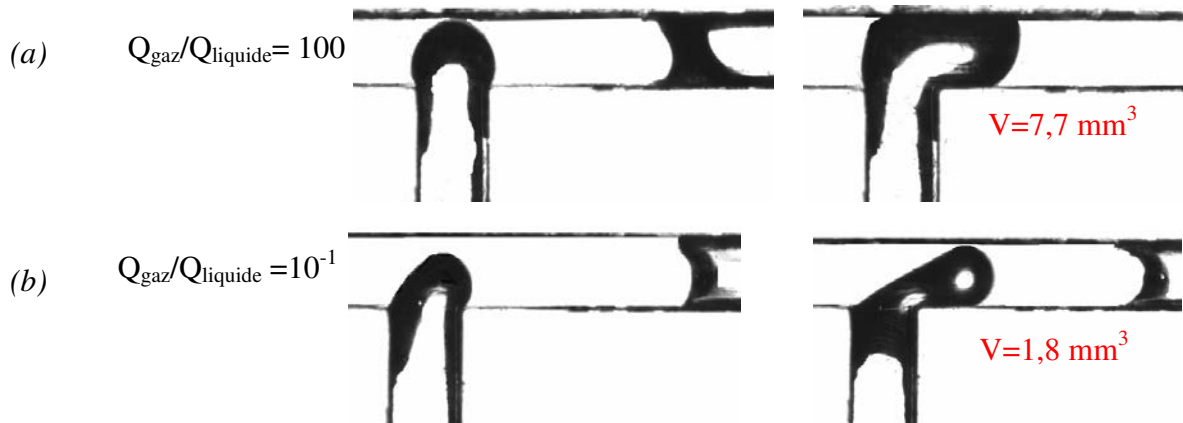


Figure II.98. Formation de bulles dans un micro-mélangeur à « courant latéraux » de section carrée de $500 \mu\text{m}$ dans de l'eau.

Le tracé de l'évolution du rapport L/W , en fonction du débit de liquide (à débit de gaz constant) et inversement est reporté sur la figure II.99.

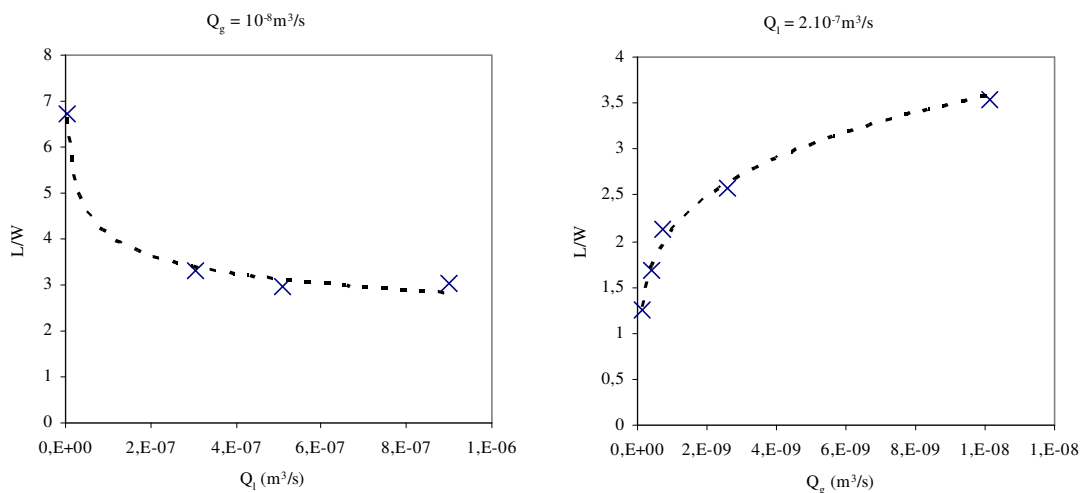


Figure II.99. Influence des débits de phase gazeuse (à gauche) et liquide (à droite) sur la taille (L/W) des bulles dans les micro-mélangeurs de type « shear flow » (courants latéraux).

Comme dans le cas des micro-mélangeurs précédents, on constate qu'une augmentation de débit de phase liquide conduit à une diminution de la taille de la bulle et qu'une augmentation du débit de la phase gazeuse permet d'accroître la taille de bulle. Ce phénomène peut

facilement être interprété à partir des mesures réalisées par μ -PIV. Ainsi, à partir de la figure II.100 correspondant à la formation d'une bulle d'air dans de l'eau obtenue pour deux rapports de débits différents. On peut observer, sur la partie (a) qu'avec un faible débit de liquide et un fort débit de gaz, le cisaillement sur la bulle est d'environ 100 s^{-1} , alors que sur la partie (b) où le débit de liquide est plus important que celui du gaz, la vitesse de cisaillement moyenne est de 250 s^{-1} . On voit ainsi l'influence du cisaillement sur la taille de la bulle. Dans le cas (b), la bulle est en effet nettement plus petite.

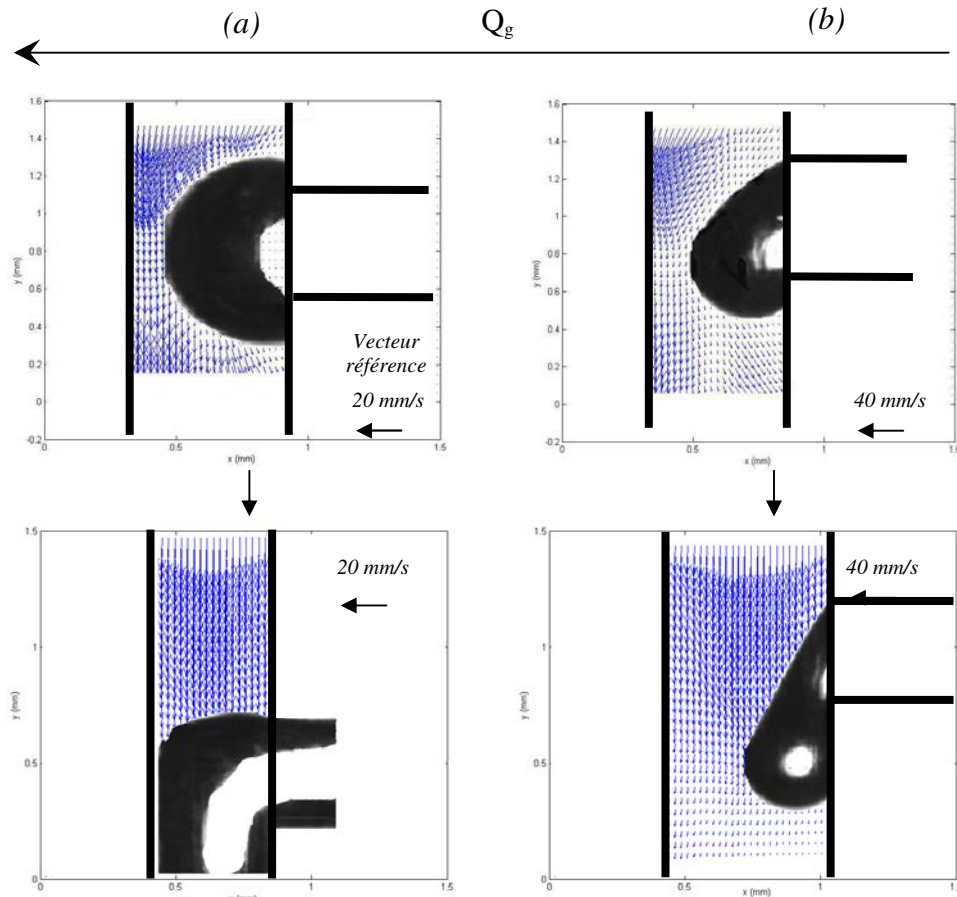


Figure II.100. Formation de bulles dans un micro-mélangeur à « courants latéraux » de section carrée de $500 \mu\text{m}$ dans de l'eau. (a) $Q_G/Q_L = 10$ (b) $Q_G/Q_L = 0,01$. $W = 500 \mu\text{m}$.

Comme pour les autres micro-mélangeurs, nous observons que la taille de la bulle est proportionnelle au rapport des débits entre les deux phases. Pour vérifier si les lois de puissance établies précédemment pour les autres configurations de micro-mélangeurs restent valables pour celui-ci, deux tailles de micro-mélangeurs pour cette configuration sont étudiés ($W = 500 \mu\text{m}$ et $1000 \mu\text{m}$). Les débits de gaz et de liquide varient entre 10^{-10} et $10^{-7} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$

chacun pour obtenir un rapport des débits Q_G/Q_L variant de 10^{-6} à 10, nous permettant ainsi de balayer des gammes importantes. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure II.101.

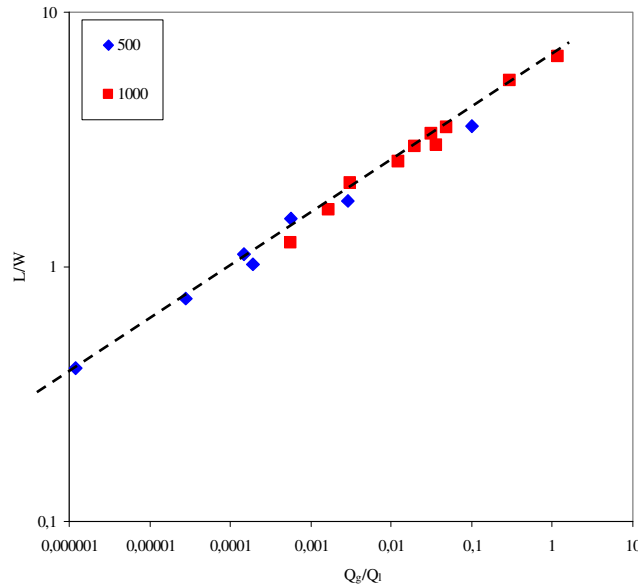


Figure II.101. Evolution du rapport L/W en fonction du rapport des débits Q_G/Q_L pour deux tailles différentes de canal (500 et 1000 μm).

On observe pour les deux différentes tailles de section, que les points s'alignent parfaitement sur cette figure, suivant ainsi la loi de puissance suivante :

$$\frac{L}{W} = 2,74 \left(\frac{Q_G}{Q_L} \right)^{0,23} \quad (II.69)$$

L'exposant obtenu (0,23) est très proche de ceux obtenus pour les deux autres configurations : 0,2 pour les types « T et Y » et 0,25 pour le type « *flow focusing* ». Bien que les configurations soient différentes, l'influence de la taille de la section et des débits des deux phases semblent similaire.

II.4.2.6. Comparaison des différentes configurations

A titre comparatif entre ces trois configurations, nous nous intéressons ici à la formation de bulles dans les mêmes conditions opératoires dans chacune des ces configurations. Les bulles d'air sont formées dans de l'eau pure, dans un mélangeur d'angle 180° , et dans la même gamme de rapport de débits. La comparaison entre ces trois configurations est reportée sur la figure II.102.

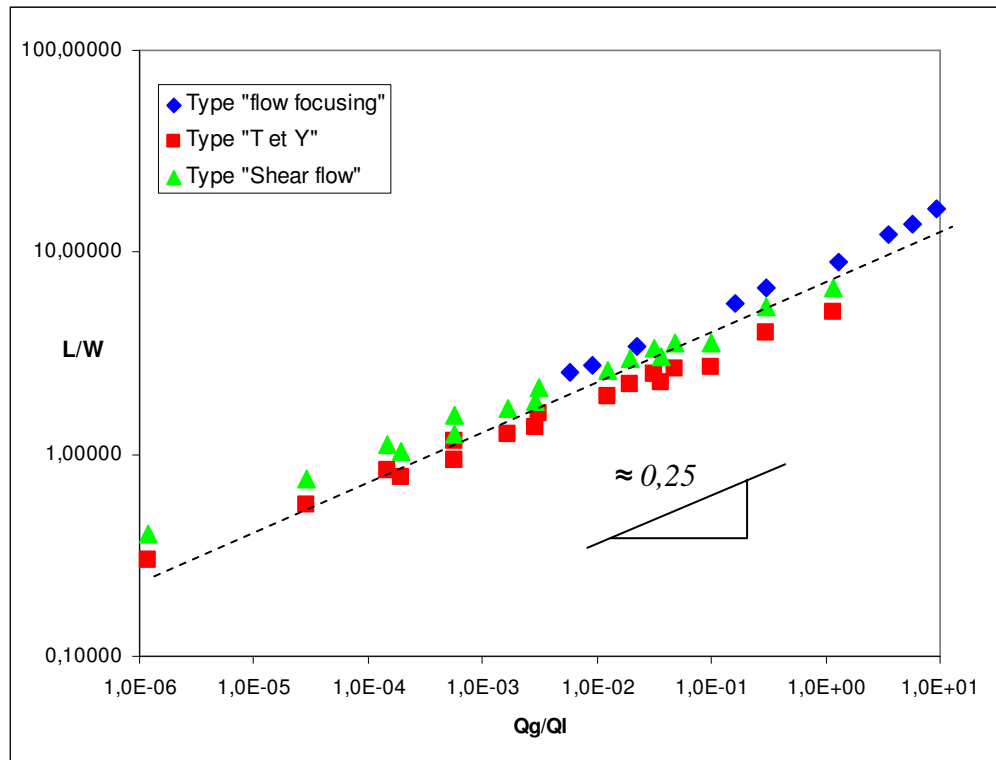


Figure II.102. Comparaison des résultats obtenus pour les trois configurations de micro-mélangeurs dans la même configuration eau/air/angle de 180°.

Bien que les configurations soient différentes, les tendances sont identiques, l'exposant α varie entre 0,2 et 0,25. Ceci permet ainsi de rassembler tous les points expérimentaux avec les différents micro-mélangeurs dans le but de déterminer une corrélation simplifiée permettant un dimensionnement rapide du micro-mélangeur.

Ainsi, nous regroupons les 164 données expérimentales correspondant à la formation de bulles dans les micro-mélangeurs de type « *flow focusing* » (tailles de canaux différentes, propriétés physico-chimique différentes, géométries différentes), les 114 données sur la formation de bulles dans les micro-mélangeurs de « type T et Y » (tailles de canaux différentes, propriétés physico-chimique différentes, géométries différentes) et enfin les 18 données sur la formation de bulles dans les micro-mélangeurs à « courants latéraux » / « *shear flow* » (taille de canaux différents) conduisant à la mise en commun de 296 points expérimentaux. Comme précédemment, une corrélation a été établie entre la longueur de la bulle et les différents paramètres effectuant la formation des bulles : la viscosité, la tension superficielle (introduite dans la valeur de l'angle de contact), les débits des deux phases, la taille des canaux, et enfin

la géométrie du micro-mélangeur. Cette corrélation globale est donnée par la relation (II.70) suivante :

$$\frac{L}{W} = 7,5 \left(\frac{\theta}{\theta_c} \right)^{-2/3} \left(\frac{\mu_L}{\mu_G} \right)^{1/50} \left(\frac{Q_G}{Q_L} \right)^{1/4} \quad (II.70)$$

Le diagramme de parité entre les 296 points expérimentaux et les valeurs corrélées est reporté sur la figure II.103.

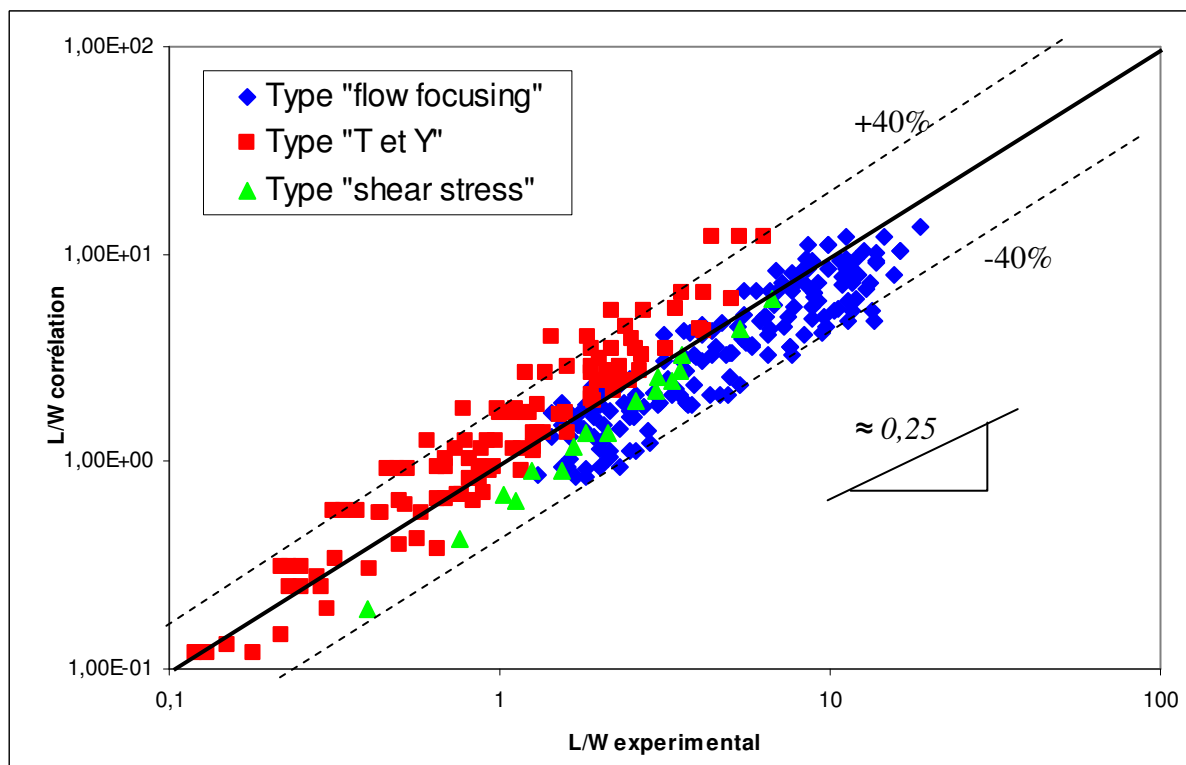


Figure II.103. Diagramme de parité entre les valeurs expérimentales et estimées à partir de la relation II.70.

L'erreur relative, qui est plus grande que précédemment, vaut ici 33%. Ceci révèle le fait que les mécanismes de formation ne sont pas, comme nous l'avons souligné, identiques entre toutes les configurations. Néanmoins, cette relation permet de traduire les forces prépondérantes lors de la formation. L'influence de la viscosité étant négligeable, nous pouvons donc conclure que la relation II.71 traduit bien des forces prépondérantes.

$$\frac{L}{W} \approx 7,5 \left(\frac{\theta}{\theta_c} \right)^{-2/3} \left(\frac{Q_{gaz}}{Q_{liquide}} \right)^{1/4} \quad (II.71)$$

II.4.2.7. Conclusion

Cette étude a permis de quantifier l'influence des différentes forces intervenant lors de la formation de bulles, notamment en établissant diverses corrélations (Tab. II.08) basées sur l'équation (II.60) :

$$\frac{L}{W} = \beta \left(\frac{Q_G}{Q_L} \right)^\alpha \quad (II.60)$$

Type de micro-mélangeur	$\theta=60^\circ$	$\theta=90^\circ$	$\theta=180^\circ$
	$\beta=10,3 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{ref}} \right)^{\frac{6}{5}} \left(\frac{\mu}{\mu_{ref}} \right)^{\frac{1}{15}}$ $\varepsilon = 2,64\% \text{ d'erreur}$	$\beta=9 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{ref}} \right) \left(\frac{\mu}{\mu_{ref}} \right)^{\frac{1}{10}}$ $\varepsilon = 3\% \text{ d'erreur}$	$\beta=7,08 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{ref}} \right)^{\frac{3}{4}} \left(\frac{\mu}{\mu_{ref}} \right)^{\frac{1}{8}}$ $\varepsilon = 2,75\% \text{ d'erreur}$
Flow Focusing $\alpha = 0,25$ 	$\frac{L}{W_g} = 8,3 \left(\frac{\theta}{\theta_{max}} \right)^{-\frac{1}{8}} \left(\frac{\sigma}{\sigma_{ref}} \right) \left(\frac{\mu}{\mu_{ref}} \right)^{\frac{1}{10}} \left(\frac{Q_{gaz}}{Q_{liquide}} \right)^{\frac{1}{4}}$ $\varepsilon = 6,5\% \text{ d'erreur}$		
	$\frac{V_b}{W_g^3} = 300 \left(\frac{\theta}{\theta_{contact}} \right)^{-\frac{1}{6}} \left(\frac{\mu_L}{\mu_G} \right)^{\frac{1}{50}} \left(\frac{Q_{gaz}}{Q_{liquide}} \right)^{\frac{1}{4}}$ $\varepsilon = 13\% \text{ d'erreur}$		
	$\beta=7,9 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{ref}} \right)^{\frac{8}{3}} \left(\frac{\mu}{\mu_{ref}} \right)^{\frac{1}{18}}$ $\varepsilon = 4\% \text{ d'erreur}$	$\beta=5,36 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{ref}} \right)^{\frac{5}{2}} \left(\frac{\mu}{\mu_{ref}} \right)^{\frac{1}{17}}$ $\varepsilon = 4\% \text{ d'erreur}$	$\beta=1,79 \left(\frac{\sigma}{\sigma_{ref}} \right)^{\frac{2}{3}} \left(\frac{\mu}{\mu_{ref}} \right)^{\frac{1}{13}}$ $\varepsilon = 5\% \text{ d'erreur}$
Type T et Y $\alpha = 0,2$ 	$\frac{L}{W} = 2,5 \left(\frac{\theta}{\theta_{max}} \right)^{-\frac{1}{3}} \left(\frac{\sigma}{\sigma_{ref}} \right)^{\frac{6}{5}} \left(\frac{\mu}{\mu_{ref}} \right)^{\frac{1}{20}} \left(\frac{Q_{gaz}}{Q_{liquide}} \right)^{\frac{1}{5}}$ $\varepsilon = 12\% \text{ d'erreur}$		
	$\frac{V_b}{W^3} = 6,87 \left(\frac{\theta}{\theta_{contact}} \right)^{-\frac{1}{2}} \left(\frac{\mu_L}{\mu_G} \right)^{\frac{1}{30}} \left(\frac{Q_{gaz}}{Q_{liquide}} \right)^{\frac{1}{5}}$ $\varepsilon = 18\% \text{ d'erreur}$		
 « Shear Flow » $\alpha = 0,23$	-	-	$\frac{L}{W} = 2,74 \left(\frac{Q_{gaz}}{Q_{liquide}} \right)^{0,23}$ $\varepsilon = 7\% \text{ d'erreur}$
Tous les micro-mélangeurs	$\frac{L}{W} = 7,5 \left(\frac{\theta}{\theta_c} \right)^{-\frac{2}{3}} \left(\frac{Q_{gaz}}{Q_{liquide}} \right)^{\frac{1}{4}}$ $\varepsilon = 33\% \text{ d'erreur}$		

Tableau II.08. Résumé de l'ensemble des corrélations obtenues pour les différents micro-mélangeurs et leurs différentes géométries avec les erreurs relatives pour chacune des corrélations.

Ces différentes corrélations basées sur l'expérience reflètent les fortes influences du rapport des débits entre les phases gazeuses et liquides et de la taille des canaux. Pour les différents micro-mélangeurs, ces influences ont été sensiblement similaires dans tous les systèmes étudiés. D'autre part, il est intéressant de noter que le cisaillement n'est pas un paramètre majeur de la formation, celle-ci est dominée par une compétition entre les différentes forces agissant sur la bulle et notamment celui de la tension superficielle dont l'influence est nettement plus importante que celle de la viscosité. Enfin, cette étude a permis de quantifier l'influence de la géométrie du micro-mélangeur. Celle-ci est plus importante pour les micro-mélangeurs de type « T et Y » que dans ceux de type « *flow-focusing* » à conditions que les effets de paroi ne soient pas prépondérants lors de la formation. La présence de deux entrées de phase continue liquide dans ces derniers écrase l'effet de la géométrie, alors que celui-ci est très important dans les microréacteurs de type T ou Y. Il faut rappeler néanmoins que ces corrélations permettent d'estimer de façon précise la taille de la bulle formée en présence de débits allant de 10^{-12} m³/s à 10^{-7} m³/s, dans un liquide de viscosité allant de 1 à 30 mPa.s, une tension superficielle allant de 40 à 72 mN/m, et les différentes géométries et tailles de micro-mélangeurs utilisées dans cette étude ($\theta = 60, 90$ et 180° et $W = 200, 500$ et $1000 \mu\text{m}$). Les corrélations obtenues seront à confirmer dans des gammes de viscosités différentes afin de s'assurer de la faible influence de la viscosité lors de la formation des bulles à l'échelle microscopique. En outre, la technique μ -PIV est un outil extrêmement utile qui nous permet de quantifier l'écoulement dans les microcanaux, de caractériser le cisaillement et de fournir des informations très utiles pour la simulation par Lattice Boltzmann ou VOF développée par notre équipe. Les champs de vitesse dans les trois configurations de micro-mélangeurs ont été obtenus, certains d'entre eux sont en accord avec ceux publiés dans la littérature (mélangeur à courant latéraux : Van Steijn *et al.*, 2007) et d'autres sont originaux (*flow focusing* et mélangeur en Y) et n'ont jamais été reportés dans la littérature. La combinaison des outils de visualisation microscopique à grande vitesse et des outils quantitatifs de détermination des champs de vitesses nous a donc permis une étude complète à la fois qualitative et quantitative sur la formation de bulles à l'échelle microscopique. Enfin, bien que les performances en matière de taille de bulles soit sensiblement identiques entre les différentes configurations, un facteur supplémentaire non quantifiable peut être ajouté : la praticabilité. En effet, d'un point de vue technique, il est beaucoup plus « simple » de former des bulles dans les micro-mélangeurs de type « *flow focusing* », car ces mélangeurs s'affranchissent des problèmes de mouillages et d'adhésion sur les parois. D'un point de vue réalisation, ils sont plus compliqués à fabriquer et nécessitent deux entrées de phase continue. Plus efficaces lorsqu'ils sont utilisés

dans les laboratoires, leur utilisation dans l'industrie résulte d'un équilibre entre leur facilité d'usage et leur difficulté de mise en œuvre. En guise de conclusion à ce chapitre portant sur les écoulements gaz-liquide, une comparaison entre les paragraphes II.1, II.2 et II.4 permet d'entrevoir certaines similitudes. En effet, la formation d'une bulle dans un liquide au repos (§ II.1) et dans un microréacteur de type *flow focusing* (§ II.4) présente de fortes ressemblances. Par exemple, comme le montre le tableau II.09, la forme au détachement est similaire. Les champs de vitesses à l'échelle microscopique ne sont pas semblables en raison de l'espace confiné, les boucles de recirculation n'apparaissant qu'à l'échelle mésoscopique. Ce tableau présente les résultats obtenus pour ces deux échelles, ainsi que la meilleure corrélation utilisée (Jamialahmadi *et al.*, 2001, pour l'échelle mésoscopique et l'équation II.63 proposée pour l'échelle microscopique). Ainsi si la comparaison de la formation de la bulle est faisable qualitativement, elle est impossible quantitativement. En effet aux grandes échelles, la formation de bulle est régie par un écoulement (de gaz), et les forces intervenants sont la poussée, les forces capillaires et visqueuses, tandis qu'aux petites échelles cette formation est régie par deux écoulements (gaz et liquide) et résulte essentiellement de forces de tension superficielle et de rapport des débits.

<i>Formation de bulles multi-échelle</i>	
<i>Meso-échelle</i>	<i>Micro-échelle</i>
<i>Visualisation PIV</i>	<i>Visualisation μ-PIV</i>
<i>Corrélation des résultats</i>	
Jamialahmadi <i>et al.</i> (2001) $\frac{d_b}{d_0} = \left(\frac{5,0}{Bo_0^{1,08}} + 9,261 \frac{Fr_0^{0,36}}{Ga_0^{0,39}} + 2,147 Fr_0^{0,51} \right)^{1/3} \quad (II.07)$ $\dot{V}_G \in [0; 1,510^{-3}] \text{ m}^3 \text{ m}^{-1}$ $\mu_L \in [10^{-3}; 0,09] \text{ Pa s}$ $\sigma \in [0,02; 0,08] \text{ N m}^{-1}$ $d_0 \in [0,5; 4] \text{ mm}$ $\rho_L \in [1000; 13000] \text{ kg m}^{-3}$ 8,13 % d'erreur relative moyenne 94 points expérimentaux	$\frac{v_b}{W_g^3} = 300 \left(\frac{\theta}{\theta_{\text{contact}}} \right)^{-\frac{1}{6}} \left(\frac{\mu_l}{\mu_g} \right)^{\frac{1}{50}} \left(\frac{Q_{\text{gaz}}}{Q_{\text{liquide}}} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (II.63)$ $Q_L, Q_G \in [10^{-12}; 10^{-7}]$, $W \in [500; 1000 \mu\text{m}]$, $\mu_l \in [0,001; 0,5]$, $\theta_c \in [60; 90]$, $\theta \in [0,040; 0,072]$ 12% d'erreur relative moyenne 145 points expérimentaux

Tableau II.09. Comparaison des résultats de la formation multi-échelle des bulles.

Néanmoins, si l'on rajoute un écoulement latéral à la formation des bulles à l'échelle mésoscopique (§ II.2), la formation est alors régie par deux écoulements. Le tableau II.10 illustre la comparaison effectuée entre cette partie et celle correspondant à la formation d'une bulle dans un microréacteur de type T.

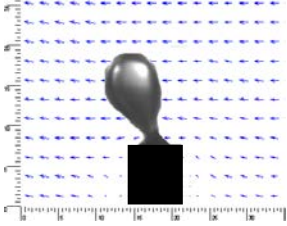
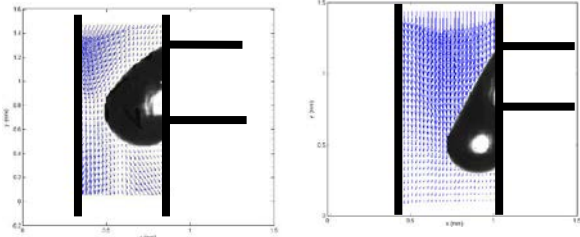
<i>Formation de bulles sous un écoulement orthogonale</i>	
<i>Meso-échelle</i>	<i>Micro-échelle</i>
<i>Visualisation PIV</i>	<i>Visualisation μ-PIV</i>
	
<i>Corrélation des résultats</i>	
$\frac{d_b}{d_{b(u_L=0)}} = \left(\frac{0,44 + 0,56 \exp^{-6,94 Fr_{Lb}}}{\sqrt{1 + \tan^2 \left(0,81 (Fr_{Lb} \sqrt{Bo_b})^{7/16} \right)}} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (II.36)$ $Fr_b \in [7 \times 10^{-3}; 4.5]$ $Bo \in [0,033; 2.165]$ $d_0 \in [1-4 \text{ mm}]$ 10% d'erreur relative moyenne	$d_b = 3,15 W_{g,1} \left(\frac{Q_{\text{gaz}}}{Q_{\text{liquide}}} \right)^{0,07} \quad (II.68)$ $Q_L, Q_G \in [10^{-12}; 10^{-7}]$ $W \in [500; 1000 \mu\text{m}]$ 7% d'erreur relative moyenne
89 points expérimentaux	27 points expérimentaux

Tableau II.10. Comparaison des résultats de la formation multiéchelle de bulles sous un champ de cisaillement.

Lorsque cet écoulement liquide latéral devient plus important que l'écoulement de gaz, le mécanisme de formation sera gouverné par la même force et la comparaison pourra être faite. Dans ce but, une expérience avec un débit de gaz identique a été choisie aux deux échelles ($Q_G = 8,33 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3/\text{s}$ i.e. $u_G = 0,08 \text{ m/s}$) pour un orifice et un microcanal de $1000 \mu\text{m}$. La vitesse de l'écoulement latéral, à l'échelle mesoscopique, varie entre 0 et 0,2 m/s. Au delà de cette valeur, il est très difficile de mesurer avec précision le volume des bulles formées dans la colonne. A l'échelle microscopique, la vitesse d'écoulement latéral varie de 0,2 à 0,4 m/s. En dessous de 0,2 m/s, l'écoulement de la phase gazeuse devient trop important et remplit la totalité du canal. Les effets de mouillage aux parois empêcheraient alors toute comparaison. La figure II.105 montre les valeurs expérimentales pour ces deux systèmes précédemment. Les

diamètres équivalents de bulles obtenus expérimentalement pour différentes vitesses d'écoulement latéral u_L et à débit de gaz fixé et ceux prédit par les corrélations sont reportées sur la figure II.104.

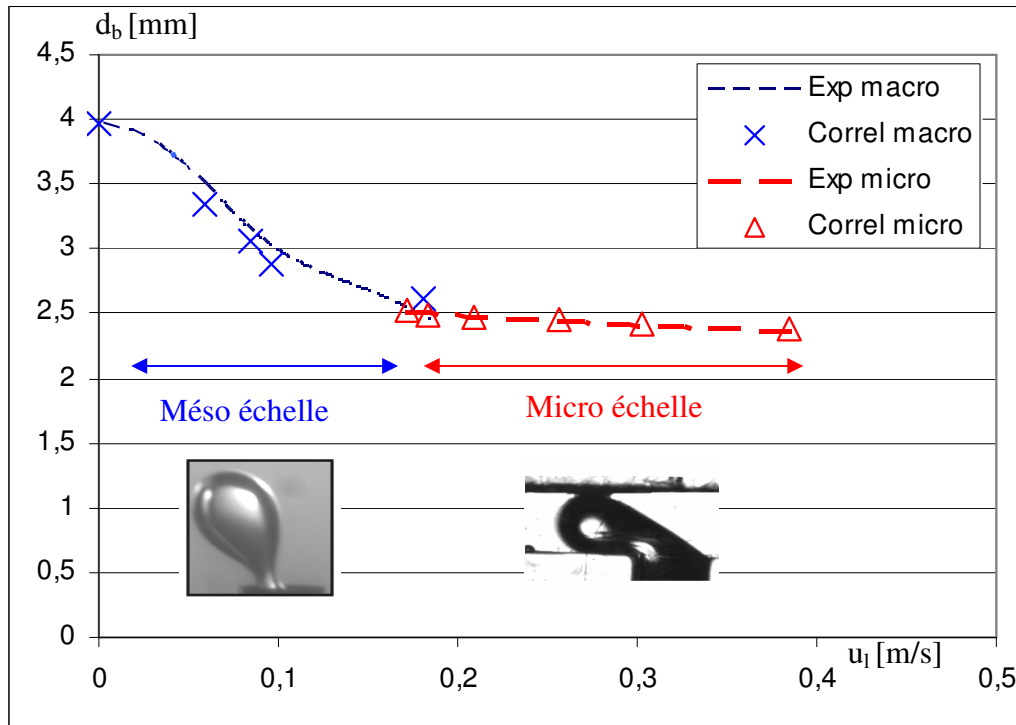


Figure II.104. Comparaison des corrélations obtenues à l'échelle méso et microscopique pour $d_0 = W = 1\text{mm}$ lors de la formation de bulles d'air dans l'eau sous un écoulement latéral. $Q_G = 10^{-8} \text{m}^3/\text{s}$. $U_G = 10 \text{mm/s}$.

Comme on a pu le voir dans les paragraphes II.2 et II.4, les résultats expérimentaux et corrélés sont en parfait accord. De plus, on observe une excellente continuité entre les résultats expérimentaux et les corrélations proposées pour les deux échelles mesoscopique et microscopique. La première échelle présente l'avantage de conduire à la formation de bulles en l'absence d'écoulement extérieur tandis que pour la seconde échelle, la formation de bulles s'effectue à grandes vitesses d'écoulements. La formation de bulles dans un micro-mélangeur de type T apparaît donc comme le régime asymptotique de la formation de bulle à l'échelle microscopique. En conclusion, lorsque les conditions expérimentales et les principales forces gouvernant la formation le permettent, l'approche multi-échelle montre une grande complémentarité entre les différentes échelles étudiées, ce qui rend possible le développement futur d'éventuelles corrélations multi-échelles sur la formation de bulles ou de gouttes afin d'améliorer la compréhension de ces phénomènes complexes.

Chapitre III :
Interfaces Liquide-Liquide

Chapitre III

III.1. Formation et déformation de gouttes

Les phénomènes interfaciaux, couplés avec l'hydrodynamique, interviennent dans de nombreux procédés industriels mettant en jeu les écoulements liquide-liquide en milieu newtonien et non newtonien. Parmi ces procédés nous citerons par exemple les procédés d'émulsifications intervenant dans de nombreux secteurs industriels tels que les cosmétiques, détergents, agroalimentaire, pharmaceutiques. Leurs applications sont très présentes dans la vie de tous les jours (crèmes, dentifrice, mayonnaise, lait, liquide vaisselle ou encore le bitume). La connaissance des déformations d'une interface liquide-liquide est donc une donnée importante pour ces procédés de mélange ou de séparation ou encore tout simplement pour la compréhension des mécanismes fondamentaux de formations de gouttes. La déformation des interfaces liquide/liquide demeure la difficulté majeure dans la modélisation des phénomènes polyphasiques. Dans cette étude nous nous intéressons à la formation et à la déformation de gouttes dans un milieu liquide de différentes façons. Dans la première partie, nous présenterons une revue bibliographique des différents travaux existant dans le domaine de la formation et la déformation des gouttes. La deuxième partie sera consacrée à l'étude expérimentale de la formation d'une goutte. La troisième partie portera sur la formation de gouttes dans l'eau sous un champ de cisaillement orthogonal. Cette étude constitue un complément des travaux de thèse de Renouf (2001). Enfin, la dernière partie traitera de la déformation de gouttes dans une cellule de cisaillement de type « écoulement de Couette ».

III.1.1. Synthèse bibliographique

Dans cette partie, nous ferons essentiellement un rappel des différentes caractéristiques concernant la formation de gouttes dans des milieux newtoniens.

III.1.1.1. Formation de gouttes à un orifice immergé

Heertjes et de Nie (1971) ont décrit qualitativement la formation des gouttes aux orifices (Figure III.01). La région 1 correspond à une fréquence de formation très faible, en situation de quasi équilibre. On retrouve alors l'équilibre entre les forces superficielles et de poussée effectué au chapitre II.1. La région 2 voit apparaître l'influence du débit de phase dispersée $\dot{V}_D$. Null et Johnson (1958), Narasinga *et al.* (1966), Heertjes et de Nie (1971) considèrent deux étapes lors de la formation de gouttes comme le suggèrent Kumar et Kuloor (1970) dans leur modèle de formation des bulles.

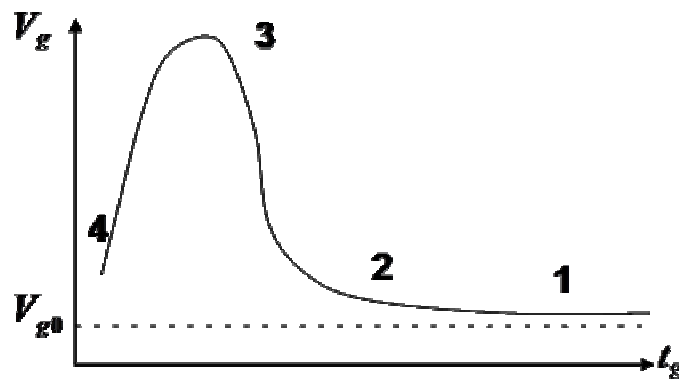


Figure III.01. Relation entre le volume des gouttes et leur durée de formation. Adapté de Godfrey et Hanson (1982).

Le volume de la goutte est dans ce cas la somme du volume obtenu en équilibre quasi statique V_{ge} et du volume additionnel correspondant au temps de détachement t_g (formation et déformation du col) soit:

$$V_g = V_{ge} + \dot{V}_D t_g \quad (III.01.)$$

C'est la modélisation du temps de détachement qui conduit à différentes corrélations du diamètre de goutte généré. Les troisième et quatrième régions correspondent à la génération de gouttes obtenues à partir des instabilités de jet de Taylor. La troisième région correspond au régime de jet court où la première onde génère la goutte, la région 4 au régime de jet long, la rupture se produisant lorsque le jet est suffisamment aminci. Entre ces deux régions, on observe un maximum dû à la compétition entre l'accroissement du flux de phase dispersée qui correspond à l'accroissement du débit d'alimentation et l'amincissement du jet lié à l'accélération sous l'influence de la force de gravité et d'inertie. On définit généralement les

conditions qui correspondent à ce que l'on appelle le "régime de jet". Lorsque le débit de phase dispersée reste modéré (en deçà du régime de jet), on retrouve les forces classiques déjà étudiées pour la génération des bulles. Certaines de ces forces sont souvent négligées. On retient en général les forces capillaires, de poussée, d'inertie et de traînée.

- Régime quasi statique : Zone 1.

Nous retrouvons dans ce cas un problème analogue à celui développé au §II.1, à savoir la relation :

$$\left(\frac{d_b}{d_0} \right)^3 = \frac{6k_\sigma}{E\ddot{o}_0} \quad (III.02)$$

La relation (III.02) apparaît généralement pour la génération des gouttes sous la forme suivante :

$$V_{g0} = F_{HB} \frac{\pi\sigma d_0}{g\Delta\rho} \quad (III.03)$$

F_{HB} est la correction de Harkins-Brown (1919) qui rend compte de la déformation de la goutte sous l'influence de la gravité et de la fraction liquide qui reste solidaire de l'orifice lors du détachement de la goutte.

- Débits modérés de phase dispersée : Zone 2.

Le problème du mouillage de l'orifice est beaucoup plus crucial dans la phase 2 que dans la phase 1. Il convient de prendre en compte en principe le phénomène de mouillage dynamique, c'est-à-dire la possibilité, à un instant donné, de se trouver en présence de plusieurs situations d'équilibre de forces avec l'évolution de l'angle de mouillage. Nous laisserons ce problème de côté pour l'instant.

➤ **Le modèle de Scheele et Meister (1968)**

Il constitue une amélioration du modèle proposé initialement par Narasinga Rao *et al.* (1966) qui est analogue à celui proposé par Kumar et Kuloor (1970) établi pour les bulles. En l'absence d'écoulement extérieur, la symétrie cylindrique est supposée respectée.

$$V_g = F_{HB} \left\{ \pi \frac{d_0 \sigma}{g \Delta \rho} + 20 \frac{\mu_c \dot{V}_D d_0}{g \Delta \rho d_g^2} - C_{\dot{V}} \frac{\rho_D \dot{V}_D u_0}{g \Delta \rho} + 4,5 \left[\frac{\rho_D \sigma d_0^2 \dot{V}_D^2}{(g \Delta \rho)^2} \right]^{1/3} \right\} \quad (III.04.)$$

Cette relation a permis de représenter un grand nombre de résultats avec une précision moyenne de 11% sur le volume, l'ensemble des valeurs étant prédit à mieux de 30% près. Le domaine des paramètres a été assez largement couvert avec:

$$\left| \begin{array}{lll} \rho_D \in [683;986] \text{ kg m}^{-3} & \rho_C \in [990;1254] \text{ kg m}^{-3} & \sigma \in [1,79;45,4] \text{ mN m}^{-1} \\ \mu_D \in [0,393;121] \text{ mPa s} & \mu_C \in [0,958;515] \text{ mPa s} & d_0 \in [0,813;6,88] \text{ mm} \end{array} \right.$$

- **Modèles analogues.**

Il existe un certain nombre de modèles tous issus d'un bilan de forces et comportant plus ou moins d'empirisme pour représenter au mieux la réalité. On citera historiquement les modèles de Hayworth et Treybal (1950) et Null et Johnson (1958) même si ces modèles sont abandonnés en pratique du fait d'écarts souvent considérables entre les résultats expérimentaux et ces corrélations.

➤ **Modèle de De Chazal et Ryan (1971).**

De Chazal et Ryan (1971) ont montré que la corrélation (III.04) prévoit parfois des valeurs trop importantes. Ils proposent une corrélation alternative sous la forme:

$$V_g = \pi \frac{d_0 \sigma}{g \Delta \rho} \left[F_{HB} + 0,824 \frac{g \Delta \rho u_0 d_0}{\sigma u_t} V_g^{1/3} - 0,428 (1 + \chi) \frac{\rho_D u_0^2 d_0}{\sigma} \right] \quad (III.05)$$

Cette corrélation est assez peu employée du fait de sa complexité, bien qu'elle prenne en compte les mêmes forces (traînée, capillaire et poussée) que la corrélation III.04 de Scheele et Meister. Le terme purement capillaire est identique. En ce qui concerne les autres mécanismes, la rétraction du col n'est pas imputée au coefficient F_{HB} mais est prise en compte directement dans les termes de la relation.

➤ **Modèle de Kagan et al. (1973).**

Le modèle de Kagan présente le grand mérite d'être explicité sous la forme :

$$V_g = \pi \frac{d_0 \sigma F_{HB}}{g \Delta \rho} \left[1 + 2,39 \sqrt{\frac{g \Delta \rho d_0^2}{8 \sigma}} We^{*1/3} - 0,45 We^* \right] \quad (III.06.)$$

$$\text{Avec :} \quad We^* = \frac{(\rho_c + \rho_D) u_0^2 d_0}{4 \sigma}$$

Sous forme adimensionnelle, cette relation s'écrit comme suit :

$$\frac{d_g}{d_0} = F_{HB}^{1/3} \left\{ \frac{6}{E\ddot{o}_0} + 3,20 \left[\left(1 + \frac{\rho_D}{\rho_c} \right) \frac{Ri_0}{\sqrt{E\ddot{o}_0}} \right]^{1/3} - 0,675 \left(1 + \frac{\rho_D}{\rho_c} \right) Ri_0 \right\}^{1/3} \quad (III.07.)$$

On retrouve un terme capillaire et un terme inertiel très voisins de ceux de la corrélation de Scheele et Meister. On ne voit pas apparaître dans le terme de frottement la viscosité de la phase dispersée ; il faut noter cependant que selon certains auteurs, cette force se manifeste assez tardivement avec la vitesse et la viscosité. C'est sans doute pour cette raison que la corrélation de Scheele et Meister est convenable avec une évaluation très grossière du coefficient de frottement. Il conviendrait de préciser le domaine expérimental sur lequel cette relation a été définie.

➤ **Relation empirique de Humphrey (1980)**

La relation étant empirique, elle ne peut être appliquée qu'à l'intérieur du domaine de conditions opératoires expérimenté.

$$E\ddot{o}_0 \in [10^{-2}; 1,2] \quad \frac{E\ddot{o}_0}{Ar_{D0}} = \frac{\mu_D^2}{\rho_D d_0 \sigma} \in [5 \cdot 10^{-6}; 6 \cdot 10^{-3}] \quad \frac{d_g}{d_0} \in [1;5]$$

$$\left\{ \begin{array}{ll} Re_{D0} = \frac{\rho_D u_0 d_0}{\mu_D} \leq 100 & \frac{d_g}{d_0} = 0,39 E\ddot{o}_0^{-0,58} Ar_{D0}^{0,09} + 0,39 \\ Re_{D0} \in [100;1400] & \frac{d_g}{d_0} = 0,39 E\ddot{o}_0^{-0,58} Ar_{D0}^{0,09} + 0,12 Re_{D0}^{0,11} + 0,39 \end{array} \right. \quad (III.08.)$$

- Le mouillage de l'orifice.

Nous avons observé sur les résultats de Barhate *et al.* (2004) une influence relative de la phase dispersée par rapport à la phase continue sur la qualité prévisionnelle des modèles traditionnels. Il s'agit, lorsque les forces liées au mouvement sont faibles, d'un problème de mouillage différentiel. Ce phénomène est confirmé par les travaux de Chen *et al.* (2001) qui ont étudié la formation de gouttes de diverses solutions salines dans le n-dodecane en utilisant des buses en acier inoxydable de diverses configurations, mouillables par la phase dispersée. Il apparaît que les corrélations classiques de Scheele et Meister et Kagan restent utilisables à condition de remplacer le diamètre interne de la buse par un diamètre augmenté en fonction de la géométrie exacte de cette dernière. Il pourra s'agir par exemple du diamètre extérieur pour les parois de faible épaisseur relative. En réalité, cette pratique n'arrange rien car les corrélations perdent leur caractère prédictif. On ne sait pas vraiment à priori quel diamètre prendre, lequel doit être fonction de la nature des liquides, du matériau de la buse, de sa forme, de l'état de surface...

III.1.1.2. Formation de gouttes sous un champ de cisaillement orthogonal

Jusqu'à présent, peu de travaux expérimentaux sont disponibles dans la littérature pour la formation de gouttelettes sous un champ de cisaillement orthogonal. Les études existantes concernent principalement le cas de la formation de gouttes pour réaliser des émulsions microscopiques. Umbanhowar *et al.* (2001) ont étudié la formation d'émulsions (diamètres de gouttes allant de 2 à 200 μm) en utilisant une cellule de cisaillement orthogonale. La phase dispersée est introduite dans une cellule à écoulement latéral par l'intermédiaire d'un capillaire conique. La goutte se décroche du capillaire lorsque les forces de poussée et d'écoulement latérale dépassent la force de tension interfaciale. Cette technique expérimentale permet la production d'émulsions très mono-disperses, avec une polydispersité inférieure à 3 %. Ces auteurs ont montré que le volume de la goutte dépendait de la taille du capillaire, de la vitesse de la phase continue et des propriétés physicochimiques des deux phases.

III.1.1.3. Déformation de gouttes dans une cellule de cisaillement

Il existe trois types de dispositifs qui sont communément utilisés dans la littérature pour générer des forces de cisaillement : des cellules circulaires et des plateaux parallèles.

- La cellule circulaire est utilisée pour générer des champs de cisaillements simples, la goutte est placée entre les deux cylindres concentriques avec rotation d'un seul des deux cylindres ou des deux.
- Les plateaux parallèles sont transparents et consistent en un disque plat stationnaire et un disque plat rotatif et entre lesquels est placée la goutte.
- Deux cylindres coaxiaux.

En mécanique des fluides, un écoulement de Couette désigne l'écoulement d'un fluide visqueux entre deux surfaces dont l'une est en mouvement par rapport à l'autre. L'écoulement est dû à la force d'entraînement visqueuse qui agit sur le fluide.

Dans leur étude sur la déformation des gouttes sous un champ de cisaillement, Sundararaj *et al.* (1994) ont visualisé des gouttes de polycarbonate se déformant dans une solution de polyéthylène. La figure III.02 montre la déformation de la goutte et de sa rupture à une vitesse de cisaillement de 1 s^{-1} et un rapport de viscosité (entre la phase dispersée et la phase continue) de 1,8.

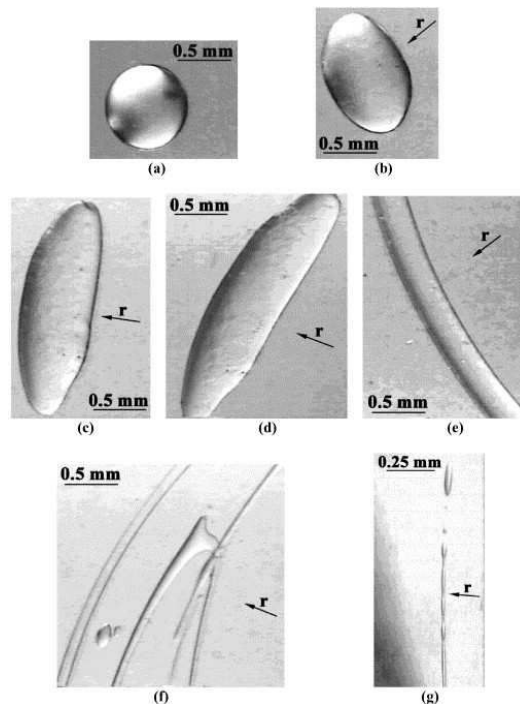


Figure III.02. Déformation d'une goutte de polycarbonate dans une solution de polyéthylène sous un champ de cisaillement (Sundararaj *et al.*, 1994).

Lorsque la vitesse de cisaillement atteint 7 s^{-1} , la goutte initialement sphérique prend une forme ellipsoïdale et continue à s'étirer dans le sens de l'écoulement et à prendre une forme aplatie. La déformation assymétrique de la goutte suggère que le champ de cisaillement à travers la goutte n'est pas homogène et il est beaucoup plus important au niveau du rayon extérieur qu'au niveau du rayon intérieur ce qui fait que la goutte en forme de feuille s'allonge selon la direction de l'écoulement et se réduit selon la direction radiale. En avançant dans le temps, la goutte prend la forme d'un fil et devient de plus en plus mince puis se rompt en petites gouttelettes. Sundararaj *et al.* ont proposé deux types de rupture des gouttes ; le type A et le type B (figure III.03). Pour le type A, la goutte s'étire et prend la forme d'une feuille puis celle d'un fil fin et finit par se rompre en petites gouttelettes. Pour le type B, la goutte prend la forme d'une feuille étendue avec un bout en fil minuscule qui se rompt en plusieurs gouttelettes.

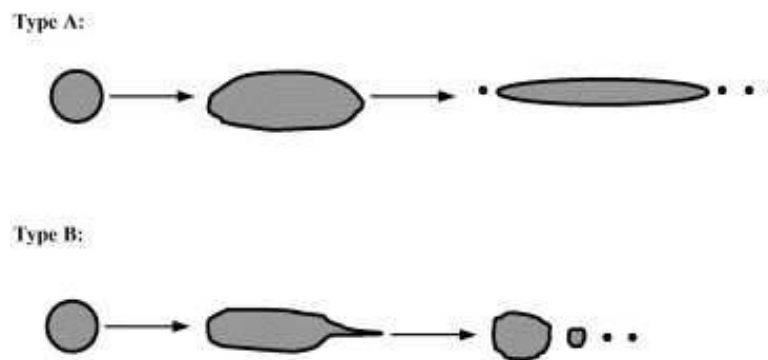


Figure III.03. Types de rupture de la goutte sous un champ de cisaillement (Sundararaj *et al.*, 1994).

Sundararaj *et al* ont défini plusieurs conditions afin de prédire le type de rupture. Pour les faibles rapports de viscosité entre les deux phases, la rupture de la goutte se fait selon le type A alors qu'elle se fait selon le type B pour les grands rapports de viscosité. La rupture se fait plus facilement et plus rapidement pour un rapport de viscosité proche de l'unité.

Par ailleurs, Gilberto *et al.* (1996) se sont aussi intéressés à la déformation des gouttes sous un champ de cisaillement pour des gouttes d'huile de silicone dans une solution de polybutène dans un système de disques parallèles transparents.

La figure III.04 montre la déformation des gouttes à un nombre capillaire Ca de 0,4.

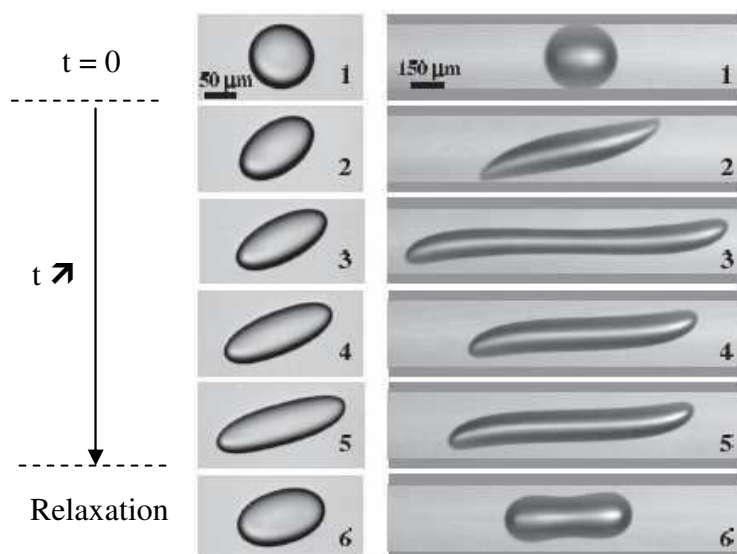


Figure III.04. Déformation d'une goutte d'huile de silicone dans une solution de polybutène sous un champ de cisaillement (Gilberto et al., 1996).

La séquence à gauche correspond à un rapport entre le diamètre initial de la goutte et l'entrefer du système $a/h=0,07$ (cas où l'entrefer entre les disques est plus important que le diamètre initial de la goutte) et illustre les formes obtenues en l'absence de l'effet des parois. Partant d'une forme sphérique au repos (1), la goutte commence à se déformer et s'oriente dans le sens du cisaillement (2)-(4) jusqu'à atteindre une forme stable (5). À l'arrêt du cisaillement, la goutte se relaxe et reprend sa forme sphérique. La séquence à droite de la figure III.04 correspond à un rapport $a/h=0,5$ (cas où l'entrefer est égal au diamètre initial de la goutte). La goutte, étant sphérique au repos (1), commence à se déformer et à s'orienter en passant par un maxima (3) et un minima (4) avant d'atteindre une forme stable (5). La déformation n'est pas ellipsoïdale comme pour le cas où $a/h=0,07$ mais la goutte a une forme sigmoïdale avec des extrémités pointues (2).

III.1.1.4. Etude PIV des formations et déformations de gouttes

Des études sur la formation des gouttelettes dans les micro-mélangeurs sont de plus en plus nombreuses (cf. II.4) avec le développement des micro-technologies. Mais à ce jour, ce domaine d'étude reste encore à explorer. En effet à notre connaissance, aucune étude référencée dans la littérature ne traite d'analyse par PIV de la formation ou de la déformation de gouttes.

III.1.2. Formation de gouttes à un orifice immergé

Nous présentons ici les résultats relatifs à la taille des gouttes obtenues pour des fluides de différentes viscosités (jusqu'à 0,1 Pa.s) dans un fluide de faible viscosité pour lequel les forces de frottement extérieur devraient être négligeables. Ces essais ont été conduits pour différentes tailles de buses.

III.1.2.1. Différences avec la formation de bulles

Nous avons tenté au chapitre II.1 de décrire les différentes forces intervenant dans le processus de génération d'une bulle dans un liquide. En ce sens, la génération d'une goutte de liquide au sein d'une phase liquide continue est strictement semblable à la génération d'une bulle de gaz. La différence tient aux rapports de forces et à la mouillabilité de la buse. Or on sait d'une manière générale que le comportement d'un phénomène est lié au rapport des forces mises en jeu plutôt qu'à la valeur absolue de ces forces (bien sûr dans une gamme d'échelles convenable). Ce qui peut se modifier en liquide-liquide, c'est la diminution de la force de poussée, Δp remplaçant ρ_L , la modification des forces interfaciales, la tension interfaciale (que nous continuerons à appeler σ par simplicité) remplaçant la tension superficielle. Enfin la cohésion du liquide constituant la phase dispersée est supérieure à celle du gaz, modifiant ainsi les mécanismes de rupture au col et d'une manière générale l'ensemble des phénomènes dynamiques. En particulier, le rapport des viscosités $\kappa = \mu_D/\mu_C$ est un paramètre qui joue un rôle primordial. Enfin et dans le cas de l'utilisation de tensioactifs en mode non saturé, la dynamique interfaciale des tensioactifs peut jouer un rôle sur la génération des gouttes bien qu'en général, la génération des gouttes à un orifice soit un phénomène relativement lent par rapport à ce que l'on observe lors de la génération d'émulsions dans les appareils dynamiques classiques. Deux types d'instabilité peuvent apparaître en liquide-liquide que l'on ne rencontre guère en gaz liquide car $\rho_G \ll \rho_L$ et $\mu_G \ll \mu_L$. La première correspond à l'injection d'un fluide léger à la base d'une couche de fluide lourd. Cette situation crée des instabilités de type Rayleigh-Taylor qui peuvent participer aux petites échelles à la déformation des interfaces. Hormis les simulations numériques qui peuvent renseigner sur ces phénomènes, les analyses qui en ont été faites sont perturbatoires et se limitent aux petites déformations. Par ailleurs, la vitesse de déformation angulaire constatée aux interfaces peut générer des instabilités de Kelvin-Helmholtz. La viscosité de la phase dispersée peut stabiliser l'interface mais en général, la tension interfaciale inférieure à la tension superficielle de la phase continue ne participe plus guère à cette stabilité.

III.1.2.2. Formation d'une goutte d'huile dans de l'eau

Le système de génération des gouttes est le même que pour la formation de bulles. Mais nous utilisons ici uniquement l'orifice capillaire. L'orifice plat n'est pas utilisé en raison des phénomènes de mouillage qui interviennent à la base de la buse. Les orifices capillaires sont en acier inoxydable et ont été préalablement polis et usinés afin de diminuer au maximum le mouillage. Plusieurs tailles d'orifice (0,5 ; 1 ; 2 ; 3 et 4 mm) ainsi que différentes phases liquides dispersée dans de l'eau ont été utilisées dans cette étude.

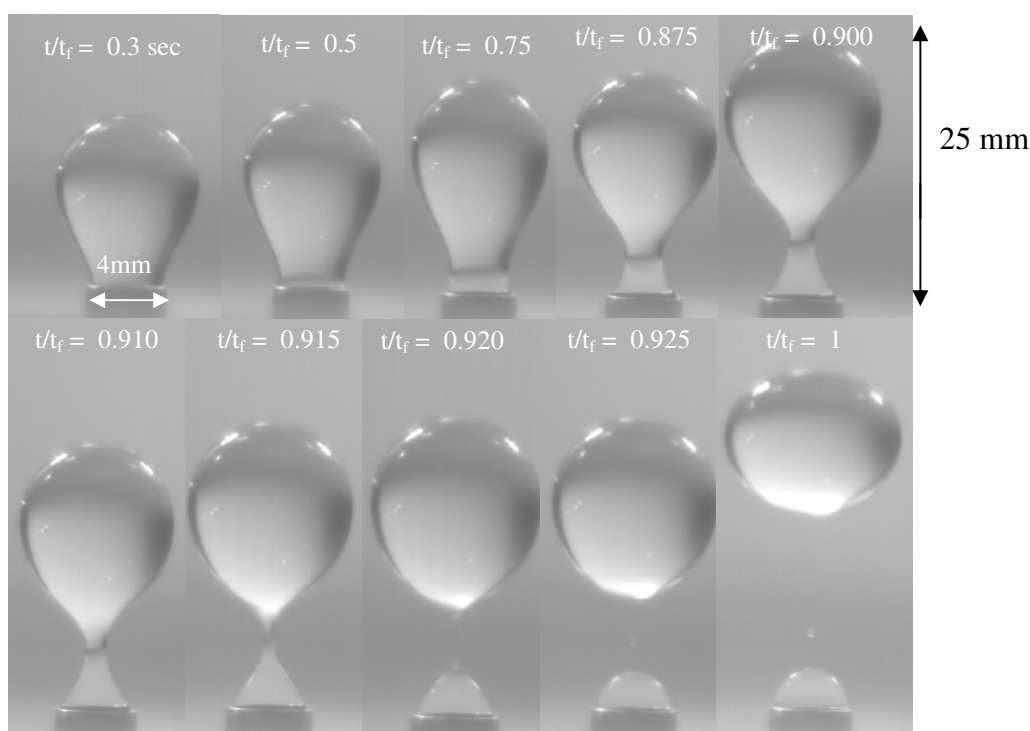


Figure III.05. Formation d'une goutte d'huile de silicone HS100 de $300 \times 10^{-9} \text{ m}^3$ sur un orifice de $4 \times 10^{-3} \text{ m}$ de diamètre dans de l'eau au repos. $Q_L = 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$.

La figure III.05 montre une séquence obtenue par caméra rapide, représentant la formation d'une goutte d'huile de silicone HS100 dans l'eau sur un orifice capillaire de 4 mm à un débit en phase liquide de $10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$. A partir de ces images, on peut distinguer deux phases lors de la formation de la goutte : une phase d'expansion, phase de grossissement sphérique de la goutte, puis une phase d'élongation au cours de laquelle la goutte continue à se développer et à se soulever vers le haut tout en restant reliée à l'orifice par son cou, prenant alors une forme de poire ou encore de larme. Après le détachement, et dès qu'elle atteint une certaine vitesse,

la goutte monte dans le liquide en prenant une forme généralement calotte sphérique. On remarque que dans la plupart des cas, la goutte est accompagnée d'une gouttelette satellite dont le volume est inférieur à 1% de celui de la goutte principale.

III.1.2.3. Etude PIV de la formation d'une goutte d'huile dans de l'eau

Les champs de vitesse mesurés par PIV sont détaillés sur la figure III.06. En raison de la faible vitesse de la phase d'expansion de la goutte, il est très difficile de mesurer un profil de vitesse précis pour cette phase. Mais nous pouvons supposer que les champs de vitesses pour cette étape sont similaires à ceux obtenus pour la formation de bulles (Fig II.05).

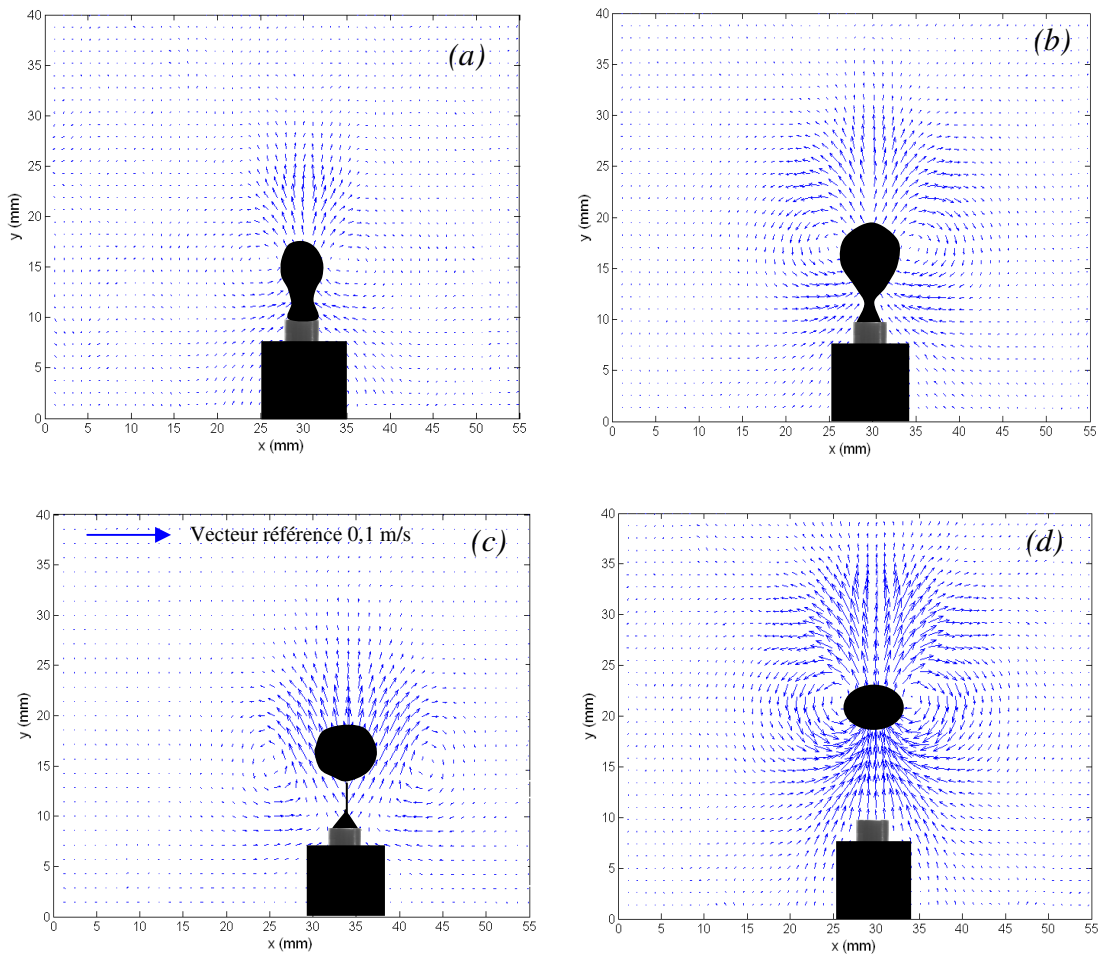


Figure III.06. Champs de vecteurs vitesses lors de la formation d'une goutte de HS100 sur un orifice capillaire de 4mm de diamètre interne et 4 mm de hauteur. Vecteur référence de 0,1 m/s.. $Q_t = 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$.

La phase d'ascension de la goutte étant plus rapide que celle de l'expansion, il nous est donc possible de la visualiser par PIV. De plus, comme le phénomène est plus lent que pour la formation de bulles, il peut être encore plus détaillé. Les figures III.06a III.06.b et III.06.c montrent l'élongation de la goutte sous l'action de la force de poussée, conduisant à son étirement dans le sens vertical. La retombée de liquide poussé par le sommet de la goutte est à l'origine de l'apparition de zones de recirculation latéralement aux gouttes. Ces boucles latérales sont axisymétriques tout comme les champs de vitesse de goutte en formation. Les boucles de recirculation créées sont à l'origine d'un cisaillement sur le cou de la goutte, conduisant à son amincissement. Ceci, couplé à l'élongation due à l'inertie de la goutte va conduire à son détachement. Sur la figure III.06.d, le cycle de formation se termine par la rupture du cou de la goutte et sa libération dans la colonne. Les champs de vitesse montrent que l'écoulement du fluide a lieu dans la même direction que le déplacement de la goutte. On distingue la zone du front (zone immédiatement au-dessus de la goutte) ainsi que le sillage qui correspond au mouvement ascendant du fluide et des boucles de recirculation axisymétriques de part et d'autre de la goutte, ce dernier champ d'écoulement est en accord avec les études d'ascension de bulles (§ II.1 et II.3) ainsi que les études précédentes (Li *et al.*, 2001, Frank *et al.*, 2006).

La mesure globale de l'écoulement ne permettant pas de voir la formation de la gouttelette satellite. Pour cela, on effectue une mesure de champs de vitesse localisé sur la zone de rupture comme le montre la figure III.07.

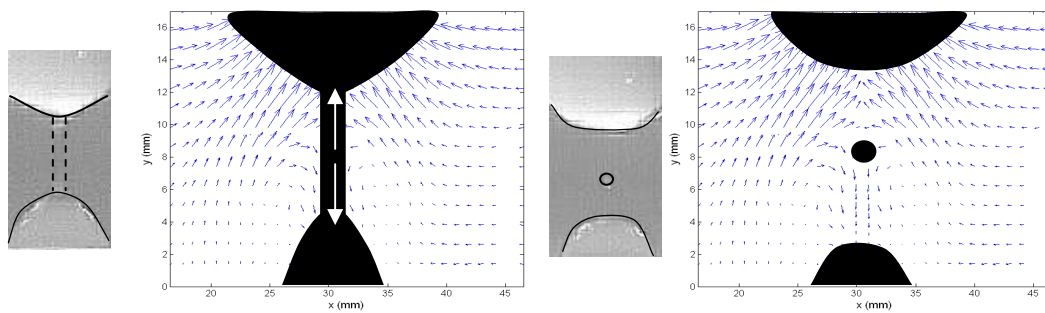


Figure III.07. Champs de vitesse mesurés par PIV lors de la rupture de la goutte formant une gouttelette satellite. Système HS100-eau. Orifice capillaire de diamètre interne de 4 mm. $Q_L = 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$.

La figure III.07 permet de voir deux écoulements dirigés dans des sens opposés, ce qui montre que la gouttelette satellite se forme sous l'action de la force capillaire qui tend à retenir la goutte à l'orifice et la force de poussée qui fait s'élever la goutte. Ce phénomène est propre à la formation des gouttes et n'a jamais été observé pour les bulles dont la tension superficielle est plus élevée, rendant impossible la formation de bulles satellites.

Les résultats obtenus par la caméra rapide et par le système PIV montrent que l'écoulement lors de la formation d'une goutte est assez complexe. Afin d'améliorer la compréhension des paramètres régissant cette formation, nous allons tester différents paramètres opératoires.

III.1.2.4. Influence de la taille des orifices

On s'intéresse en premier lieu à la formation de gouttes d'huile de silicone HS50 dans de l'eau. Le volume des gouttes formées à partir des orifices capillaires en laiton dont le diamètre varie entre 0,5 et 4 mm est mesuré pour différents débits d'huile. La figure II.08 regroupe l'ensemble des résultats obtenus.

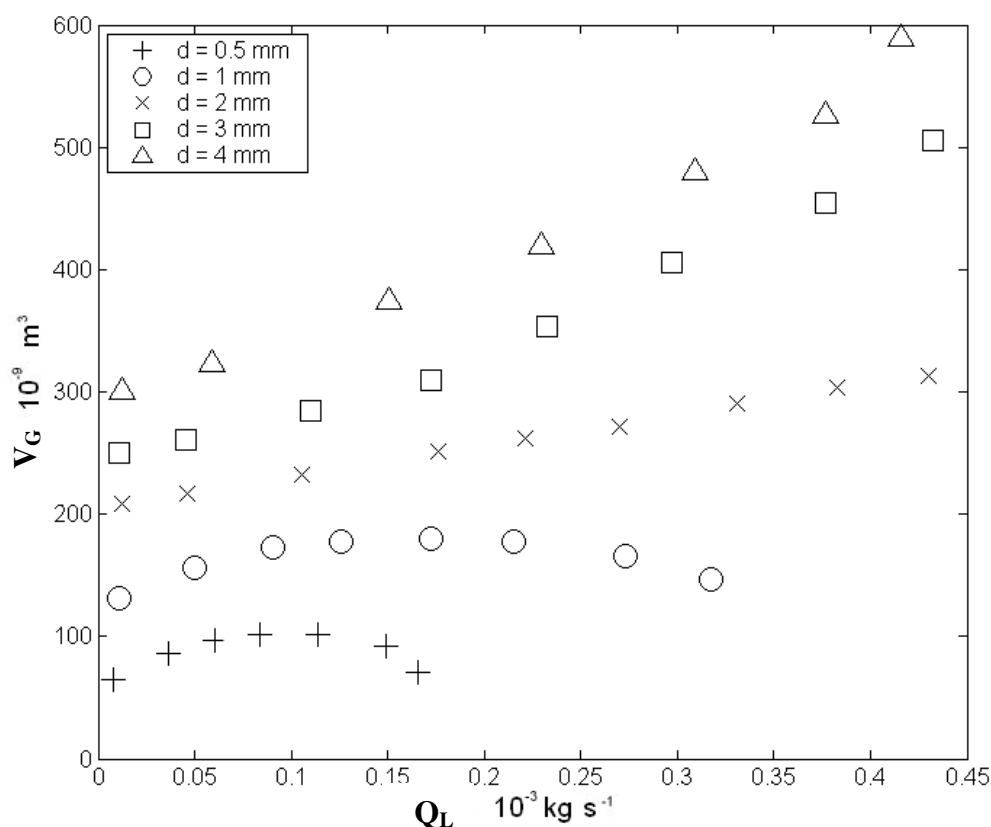


Figure III.08. Influence de la taille de l'orifice pour le système HS50-eau.

On observe également un accroissement de la taille de la goutte avec celle de l'orifice, toutes choses égales par ailleurs. A titre de comparaison avec les bulles, on observe des volumes de phase dispersés nettement plus grands. Ceci s'explique par un temps de formation plus élevé pour les gouttes en raison de la force d'Archimède moins importante dans le cas présent.

On constate dans un premier temps, que le volume des gouttes augmente linéairement avec le débit de phase dispersée pour atteindre un maximum puis diminue passé un certain débit critique. Les mesures de volume s'arrêtent lorsque le régime de jet est atteint rendant impossible toute identification d'une goutte.

III.1.2.5. Influence des propriétés physico-chimiques de la phase dispersée

Pour étudier l'influence des propriétés physico-chimiques, le volume des gouttes d'huile formées à partir d'un orifice capillaire d'un mm de diamètre est mesuré pour trois phases dispersées différentes (HS5, HS10 et HS100). La figure III.09 regroupe l'ensemble des résultats obtenus.

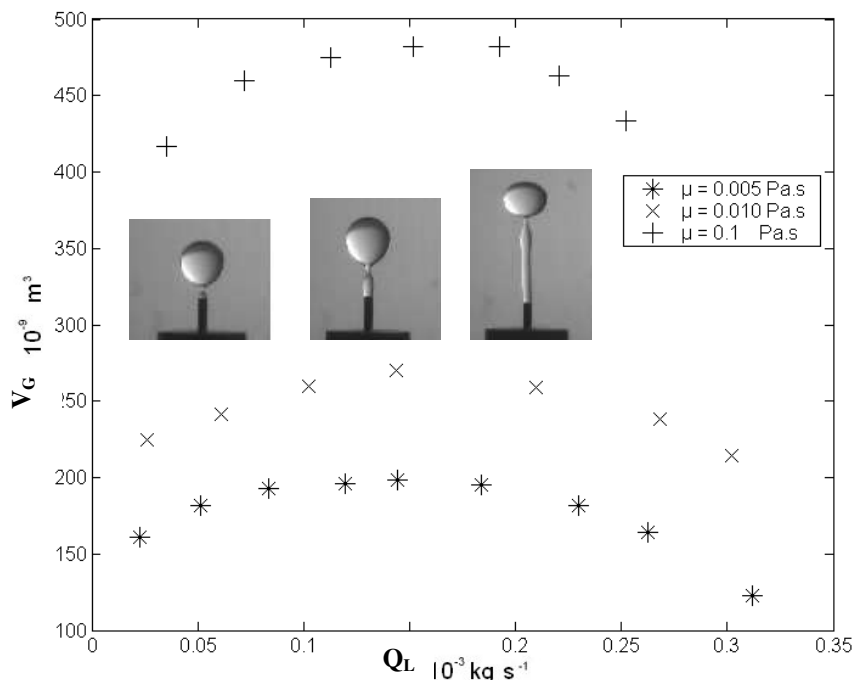


Figure III.09. Influence des propriétés physico-chimiques de la phase dispersée sur le volume des gouttes formées. Image de la formation de gouttes de HS5 dans l'eau pour trois débits différents : de gauche à droite 0,05 ; 0,15 et 0,3 g/s

Le volume des gouttes augmente, toutes choses égales par ailleurs, avec la viscosité de la phase dispersée. Comme précédemment, on observe un débit critique pour lequel on obtient un maximum pour le volume des gouttes. Ce maximum qui a déjà été observé par Narasinga *et al.* (1966) résulte du fait que la goutte a un temps de formation plus faible à débit élevé qu'à débit faible. De plus, une étude par PIV permet également de visualiser l'effet de succion résultant du sillage de la goutte précédente qui va augmenter l'élongation de la goutte qui la suit et conduire à sa rupture prématurément (fig. III.10). Encore une fois, ce phénomène n'est pas présent pour la formation de bulles, car celles-ci ont une vitesse d'ascension plus grande et génèrent un sillage au niveau de l'orifice qui se dissipe rapidement, et ne perturbe pas la bulle suivante.

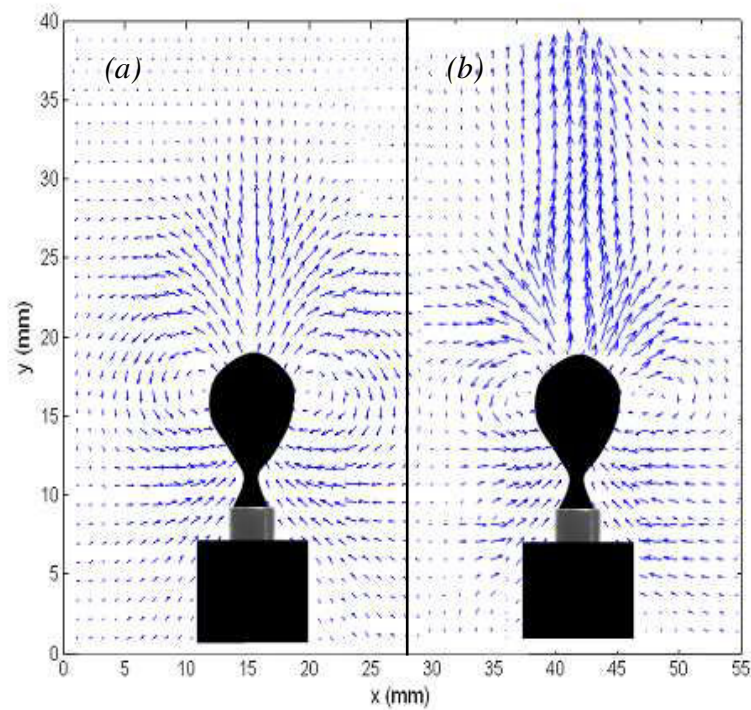


Figure III.10. Influence du sillage de la goutte précédente sur le champ de vitesse locale d'une goutte de HS100 en formation. (a) Faible débit $Q_l = 0,05$ g/s (b) Fort débit $Q_l = 0,2$ g/s.

Ainsi, la formation de gouttes dans l'eau est un phénomène complexe faisant intervenir un grand nombre de paramètres (viscosité des deux phases, tension superficielle, diamètre de l'orifice, débit de la phase dispersée). Tout comme pour la formation des bulles, un grand nombre de corrélations existent déjà, nous allons entreprendre d'en tester plusieurs pour nos résultats.

III.1.2.6. Comparaison globale des résultats expérimentaux aux différentes corrélations en l'absence d'écoulement extérieur.

- Le modèle de Scheele et Meister.

La figure III.11 compare les prédictions de la corrélation III.03 aux résultats expérimentaux obtenus avec les différentes huiles de silicone et pour $d_0 = 1$ mm. De ce fait, le nombre d'Eötvos reste presque constant $Eö_0 \in [0,0219; 0,0354]$. L'évaluation de la corrélation est arrêtée pour la première vitesse critique de jet u_{j1} . On constate que les valeurs prédites par ce modèle sont largement inférieures aux valeurs expérimentales. De plus la tendance générale expérimentale correspond plutôt à une croissance de la taille des gouttes avec la viscosité alors que le modèle reste assez neutre vis-à-vis de ce paramètre, et la décroissance de la taille des gouttes liée aux effets d'inertie et de rupture de col est annoncée prématurément.

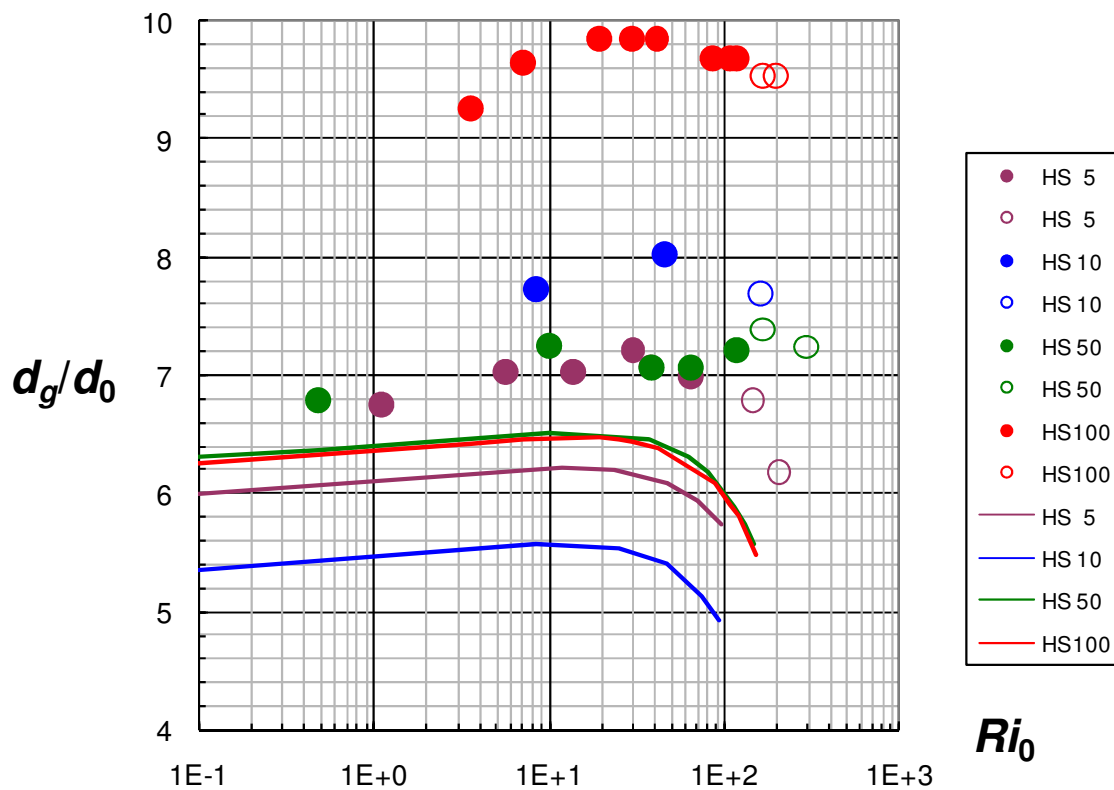


Figure III.11. Taille adimensionnelle des gouttes obtenues avec les différentes huiles de silicone et $d_0 = 1$ mm. Valeur corrélées en trait plein, symbole creux : régime de jet, et symbole plein : régime normal de formation.

Ce que l'on constate surtout, c'est le comportement très particulier des gouttes d'huile la plus visqueuse dont le comportement se démarque totalement de la corrélation. On s'explique mal par les modèles classiques ce type de comportement puisque la phase continue reste une phase peu visqueuse qui limite les frottements externes. On pourrait y voir un accroissement de la cohésion de la goutte et une modification de l'écoulement interne. En particulier il serait peut-être possible d'y voir une intervention de la viscosité élongationnelle lors de la rupture du col. La figure III.12 permet de comparer les résultats obtenus pour l'huile HS 50 en fonction de la taille de l'orifice. On constate un accord raisonnable pour les grands diamètres de buse qui se dégrade lorsque ce diamètre décroît. En fait ces résultats sont essentiellement conditionnés par le terme capillaire et le terme correcteur de la rupture de col, lequel varie selon $Ri_0^{1/9}$, c'est-à-dire faiblement.

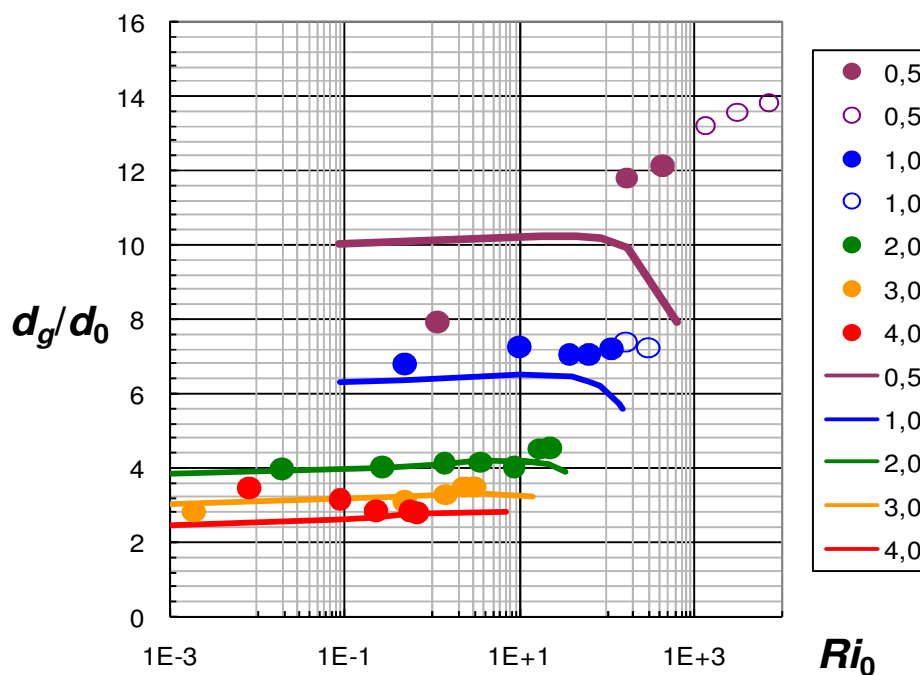


Figure III.12. Taille adimensionnelle des gouttes obtenues avec l'huile de silicone HS 50 pour des valeurs de d_0 variables. Sur la figure III.13 sont portés les résultats relatifs à l'huile de silicone HS100 pour des orifices de 1 et 2 mm. Valeur corrélées en trait plein, symbole creux : régime de jet, et symbole plein : régime normal de formation.

On constate que les résultats relatifs à l'orifice de 2 mm de diamètre sont bien représentés par la corrélation de Scheele et Meister. On pourrait donc s'interroger sur la validité des résultats relatifs à l'orifice d'1 mm de diamètre.

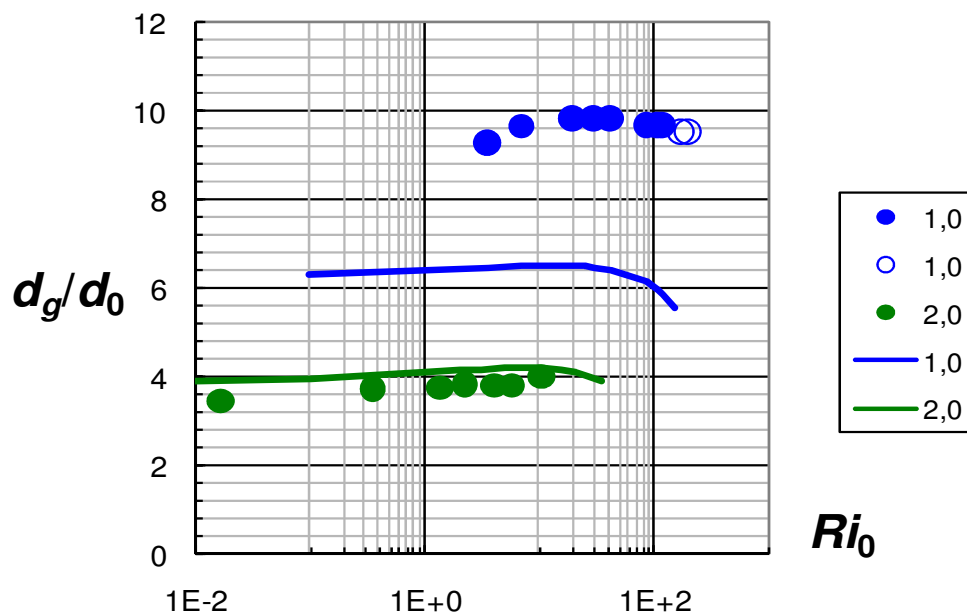


Figure III.13. Taille adimensionnelle des gouttes obtenues avec l'huile de silicone HS 100 pour des orifices de 1 et 2 mm. Valeur corrélées en trait plein, symbole creux : régime de jet, et symbole plein : régime normal de formation.

Cette étude a permis d'étudier l'influence du diamètre de l'orifice à l'aide d'un couple de fluides aux propriétés bien définies. On constate sur la figure III.14 une bonne représentativité de la corrélation de Scheele et Meister avec toutefois une sous-estimation d'autant plus prononcée que le diamètre de la buse est plus faible. Un phénomène similaire a plus ou moins été observé avec les huiles de tournesol.

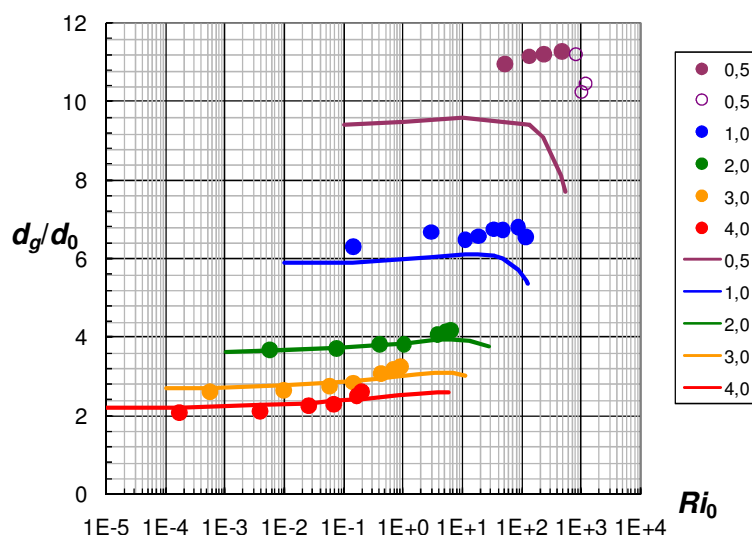


Figure III.14. Taille adimensionnelle des gouttes obtenues avec l'huile de tournesol pour des valeurs de d_0 variables. Valeur corrélées en trait plein, symbole creux : régime de jet, et symbole plein : régime normal de formation.

- **Le modèle de De Chazal et Ryan (1971).**

La figure III.15 montre la comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux estimés à partir de la corrélation (III.05). On retrouve des écarts importants sur les mêmes séries que dans le cas de la corrélation de Scheele et Meister. Les écarts sont notables pour les buses de 0,5 et 1 mm de diamètre

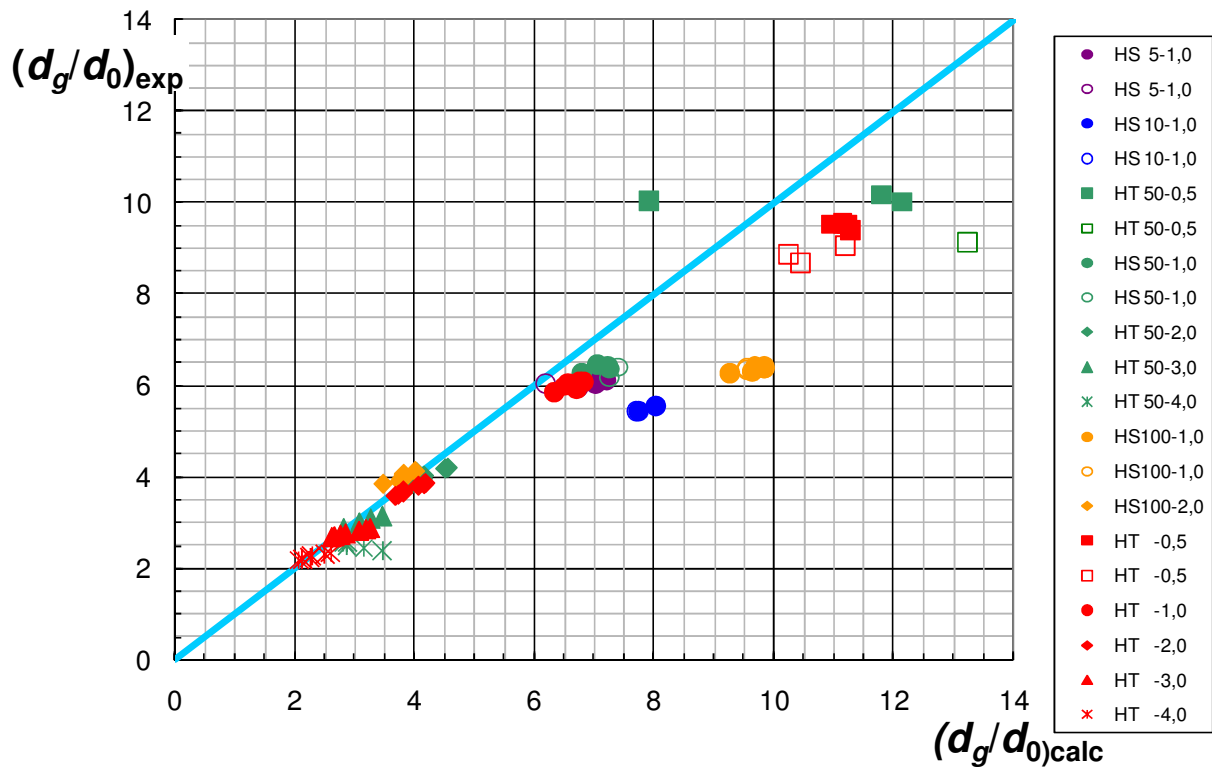


Figure III.15. Comparaison des tailles de gouttes expérimentales et évaluées par la relation (III.05). Valeur corrélées en trait plein, symbole creux : régime de jet, et symbole plein : régime normal de formation.

On constate que, comme pour la corrélation de Scheele et Meister, la corrélation sous-estime en moyenne les diamètres et volumes de gouttes. Les écarts moyens sont un peu supérieurs à ceux de la corrélation de Scheele et Meister et les écarts globaux sont nettement plus importants. Nous relèverons toutefois l'absence de la viscosité de la phase continue dans la corrélation de De Chazal et Ryan, ce qui pourrait poser problème pour les valeurs importantes de μ_c .

- **Le modèle de Kagan et al. (1973)**

Les huiles de silicone.

La figure III.16 permet de comparer les prédictions de la corrélation (III.07) avec les résultats expérimentaux obtenus avec les différentes huiles de silicone et pour $d_0 = 1$ mm.

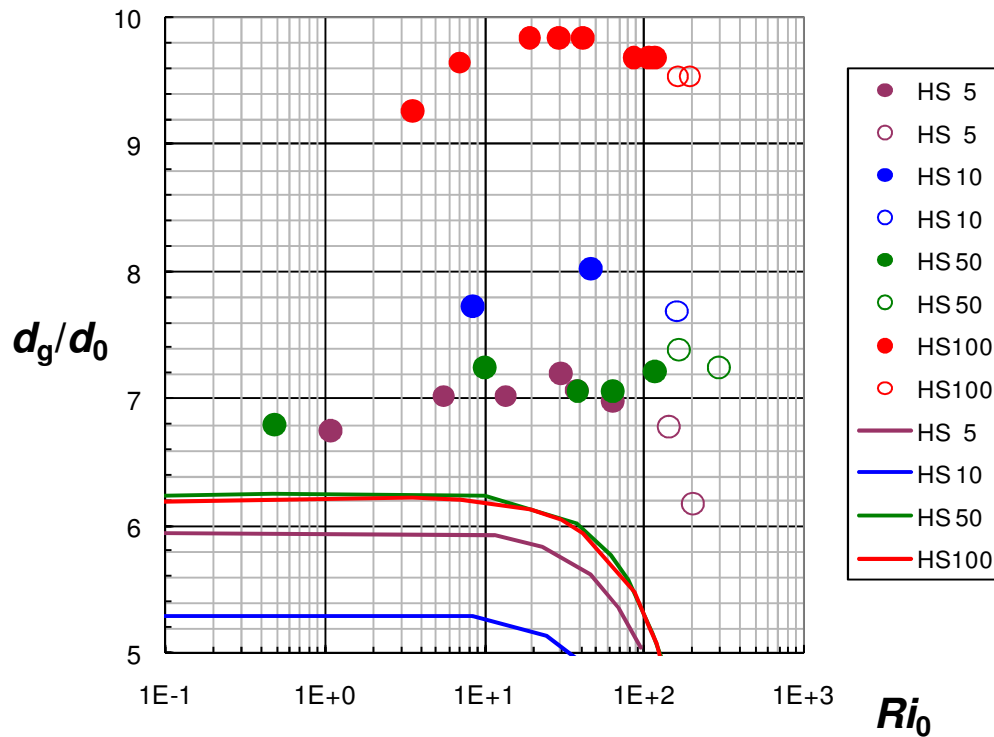


Figure III.16. Taille adimensionnelle des gouttes obtenues avec les huiles de silicone et $d_0 = 1$ mm. Valeurs corrélées en trait plein, symbole creux : régime de jet, et symbole plein : régime normal de formation.

On constate que les prédictions du modèle sont assez comparables aux prévisions de la corrélation de Scheele et Meister :

→ la décroissance de la taille des gouttes liée aux effets d'inertie et de rupture de col est annoncée prématurément,

→ la chute du diamètre de goutte au voisinage du régime de jet est plus rapide que celles prévues par la corrélation de Scheele et Meister et par l'expérience.

La figure III.17 représente l'influence du diamètre des buses sur la qualité des résultats.

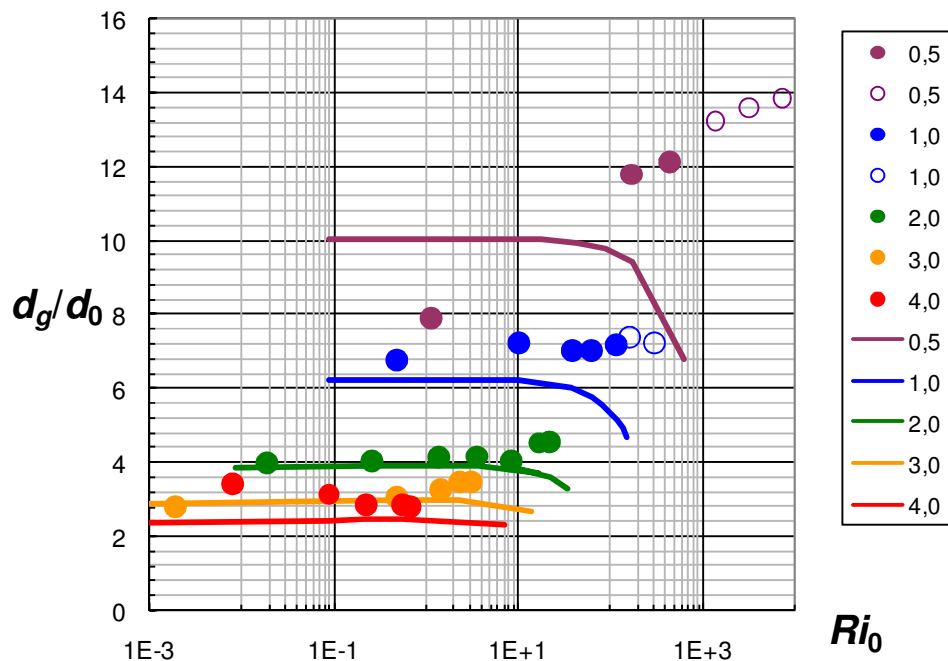


Figure III.17. Taille adimensionnelle des gouttes obtenues avec l'huile de silicone HS 50 pour des valeurs de d_0 variables. Valeurs corrélées en trait plein, symbole creux : régime de jet, et symbole plein : régime normal de formation.

Sur la figure III.18 sont portés les résultats relatifs à l'huile de silicone HS100 pour des orifices de 1 et 2 mm. On constate l'excellente corrélation obtenue pour l'orifice de 2 mm et toujours l'important décalage pour l'orifice de 1 mm constaté aussi précédemment.

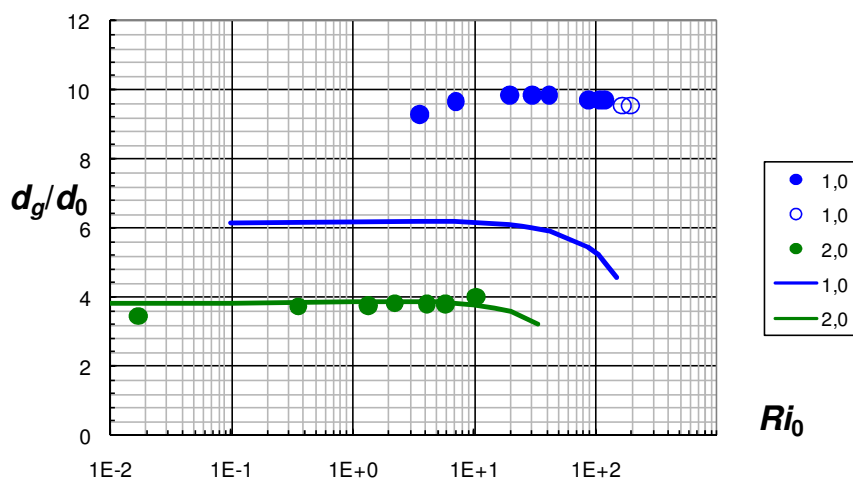


Figure III.18. Taille adimensionnelle des gouttes obtenues avec l'huile de silicone HS 100 pour des orifices de 1 et 2 mm.

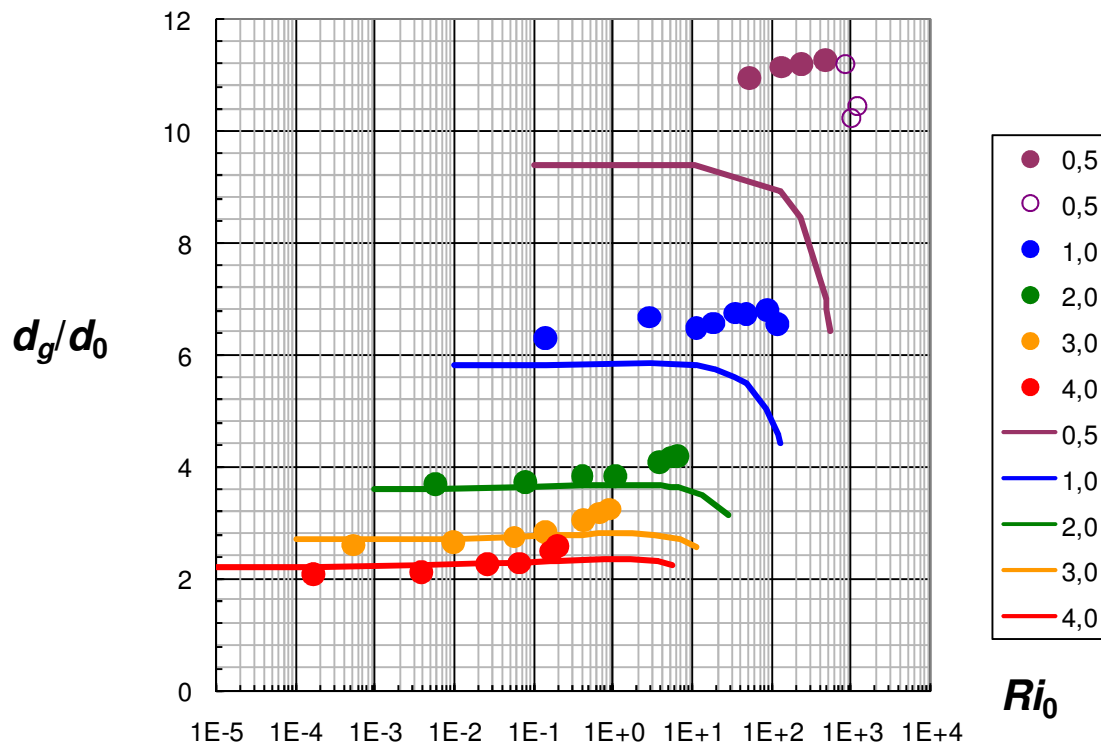


Figure III.19. Taille adimensionnelle des gouttes obtenues avec l'huile de tournesol pour des valeurs de d_0 variables.

On retrouve sur la figure III.19 une bonne représentativité de la corrélation pour des diamètres de buse suffisamment importants.

- **Prise en compte du mouillage de l'orifice.**

Les trois corrélations examinées précédemment présentent en moyenne des précisions similaires bien que, statistiquement, c'est encore la corrélation de Scheele et Meister qui fournit la meilleure approximation. Globalement, les corrélations ne sont pas très bonnes, notamment pour les diamètres de buse 0,5 et 1 mm.

Les corrélations de Scheele et Meister (1968) et de Kagan *et al.* (1973) sont en fait très voisines dès lors que l'on néglige la traînée de frottement ce qui est semble-t-il admissible lorsque la phase continue présente une viscosité faible. De Chazal et Ryan (1971) adoptent une démarche originale pour traiter le problème du col en faisant intervenir la vitesse ascensionnelle de dégagement des gouttes formées. Dans une certaine mesure, ce paramètre peut prendre en compte les forces de frottement liées aux interactions en ligne.

Les résultats rapportés ici correspondent à μ_c faible. Il n'est donc pas permis de juger de la pertinence du terme lié à μ_c . Dans les grandes lignes, on constate un écart important entre les prévisions des corrélations et les résultats expérimentaux pour les buses de petit diamètre (0,5 et 1 mm) et l'huile de silicone HS100. Ces derniers résultats paraissent hors de proportion comparés aux autres et il est difficile d'y apporter une explication. En ce qui concerne l'influence du diamètre, il est courant de faire reposer cet écart sur une mauvaise estimation du diamètre de base de la goutte, communément pris égal au diamètre de l'orifice. Les phénomènes de mouillage peuvent expliquer la nécessité d'utiliser un diamètre de base supérieur à d_0 . Il convient de ne pas négliger non plus la difficulté de mesure de la tension interfaciale qui peut conduire à des valeurs erronées. Cet effet s'avère particulièrement sensible pour les petits diamètres d'orifices qui correspondent à des nombres de $Eö_0$ faibles et donc à des volumes réduits de gouttes importants.

III.1.2.7. Corrélation de l'ensemble des résultats obtenus

Etant donné l'impossibilité de représenter nos résultats correctement à l'aide des corrélations existantes dans la littérature et de la difficulté de comparer des résultats obtenus sur des buses différentes, nous tentons d'établir comme il a été fait au chapitre §II.1, une corrélation basée sur l'équation II.18 :

$$\frac{N_G}{N_{G0}} = 1 + We^a Re^b \left(\frac{\mu_c}{\mu_d} \right)^c \quad (II.19.)$$

$$\text{Avec : } N_G = \frac{d_G}{d_{int}} Bo^{1/3} \quad (III.09.)$$

On obtient alors pour l'ensemble de nos résultats de formation de gouttes dans l'eau l'équation (III.10).

$$\frac{N_{b,g}}{N_0} = 1 + \frac{We^{0,72}}{Re^{1,19}} \left(\frac{\mu_c}{\mu_d} \right)^{0,36} \quad (III.10.)$$

$$Re \in [0,004-99] \quad We \in [5,1 \times 10^{-7}-13,8] \quad \mu_c / \mu_d \in [0,01-0,5]$$

L'erreur moyenne relative sur cette corrélation est inférieure à 3%. Cette corrélation a l'avantage de nous permettre de réunir l'ensemble de nos résultats pour la formation de

gouttes et de bulles à un orifice dans des fluides newtoniens. Le diagramme de parité étant sensiblement identique à celui de la figure II.16 il n'est pas présenté ici.

La mise en commun des résultats pour la formation de bulles et de gouttes aboutit à l'équation III.11 suivante :

$$\frac{N_{b,g}}{N_0} = 1 + \frac{We^{0,63}}{Re^{0,94}} \left(\frac{\mu_c}{\mu_d} \right)^{0,62} \quad (III.11)$$

$$Re \in [0,0039-950] \quad We \in [9,2 \times 10^{-8}-13,7]$$

$$\mu_c \in [0,001-0,5] \quad \mu_d \in [1,8 \times 10^{-5}-0,1] \quad \mu_c / \mu_d \in [0,01-25000]$$

L'erreur moyenne relative sur cette corrélation est inférieure à 8% et on observe une excellente concordance entre l'expérience et la corrélation.

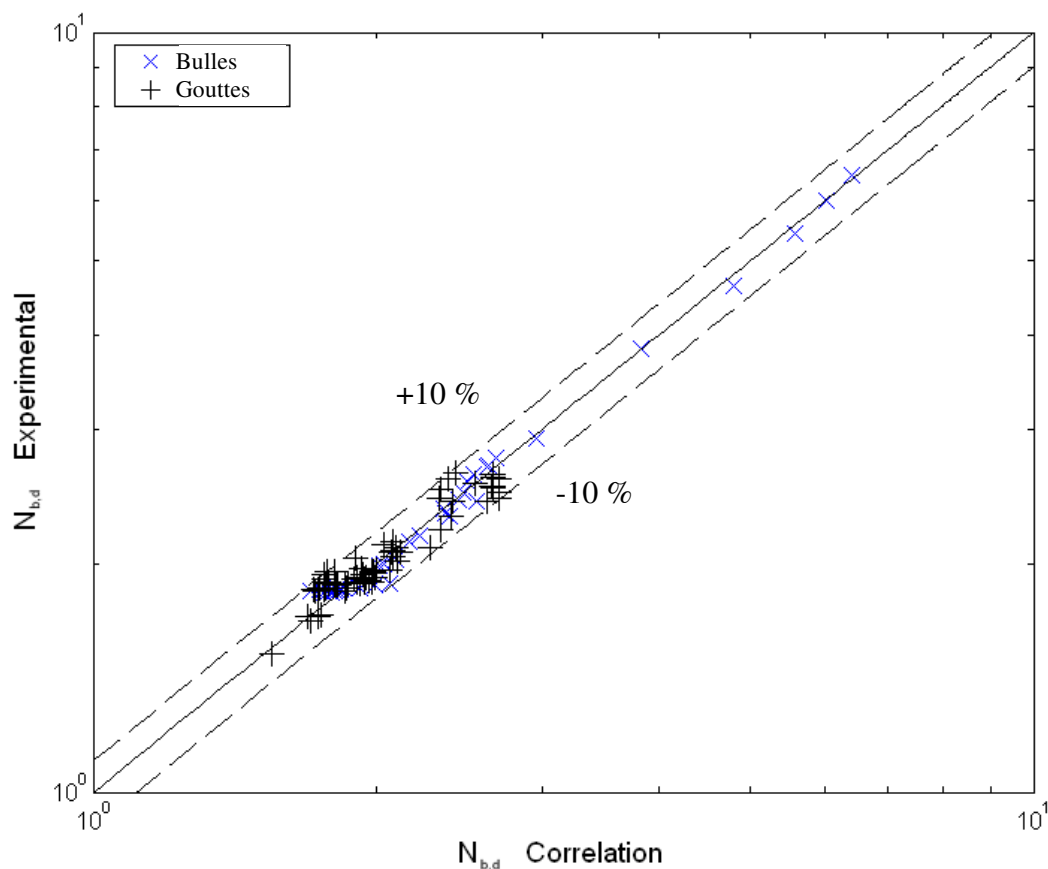


Figure III.20. Diagramme de parité entre le Nombre $N_{b,g}$ expérimental et corrélé par l'équation III.11.

III.1.3. Formation de gouttes sous un écoulement orthogonal

Dans cette partie nous nous intéressons à la formation de gouttes d'huile (HS10, HS50 et HS100) uniquement dans de l'eau sous l'action d'un écoulement local. Cet écoulement est engendré par un disque en rotation commandé par un moteur dans la cellule de cisaillement (c.f. chapitre §II.2). Le volume des gouttes, ainsi que leur angle de déflexion à l'arrachement sont mesurés dans différentes conditions de débit de phase dispersée et de vitesses de rotation.

III.1.3.1. Mesure de la vitesse d'écoulement orthogonal par PIV

Afin de caractériser l'écoulement dans la cellule de cisaillement et de pouvoir évaluer la vitesse de cisaillement, on entreprend une étude par PIV comme au chapitre §II.2. Le champ de vecteurs vitesses est mesuré au voisinage de l'orifice pour différentes vitesses de rotation du disque.

III.1.3.2. Visualisation par caméra rapide

L'évolution de la goutte à son détachement est suivie à l'aide de la caméra rapide en fonction de la vitesse de rotation du disque. La figure III.21 représente cette évolution. D'autres visualisations de déformation de gouttes sont consignées en annexe A2.

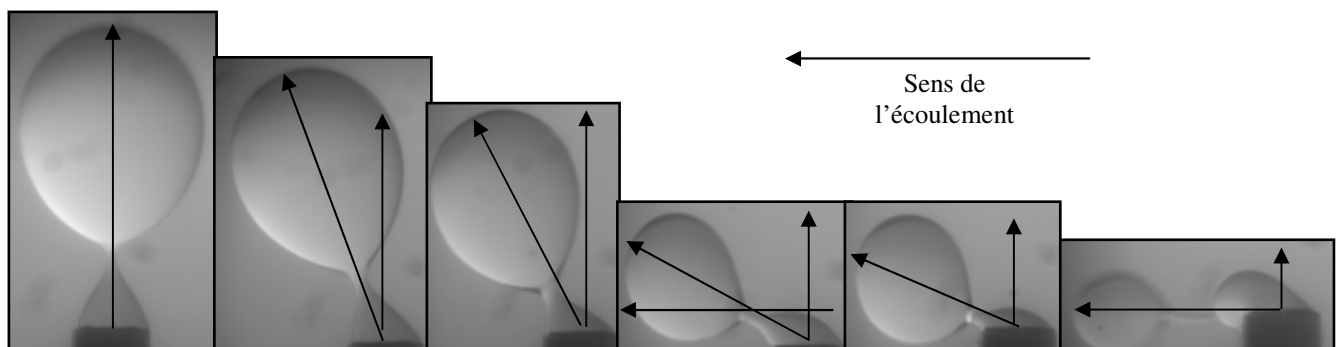


Figure III.21. Images par caméra rapide d'une goutte de HS50 sous un champs de cisaillement. De gauche à droite : Vitesse du moteur : $N=0$; $N=50$; $N=75$; $N=100$; $N=135$; $N=200$ tours min^{-1} .

On observe que la goutte est entraînée par le mouvement de l'écoulement et qu'elle a tendance à s'incliner dans la direction du cisaillement. La goutte forme un angle d'inclinaison par rapport à l'axe du capillaire, d'autant plus important que la vitesse de cisaillement

augmente. Les angles sont mesurés pour chaque condition opératoire (diamètre de l'orifice, vitesse de l'écoulement orthogonal et vitesse de la phase dispersée) et serviront de base pour l'établissement d'une corrélation.

III.1.3.3. Evolution du volume de la goutte en fonction de l'écoulement latéral

Deux séries de résultats ont été obtenues. La première série correspond à une étude effectuée avec 3 diamètres de buse différents (0,5; 2 et 4 mm) et un débit massique d'alimentation constant $\dot{M}_D = 10^{-4} \text{ kg s}^{-1}$ pour les huiles HS10, HS50 et HS100 dispersées dans l'eau. La seconde série est obtenue avec les mêmes huiles sur une buse de 1 mm de diamètre à débit variable. Ces deux séries présentent des comportements totalement différents comme le montre la figure III.22 se rapportant au couple HS10-eau.

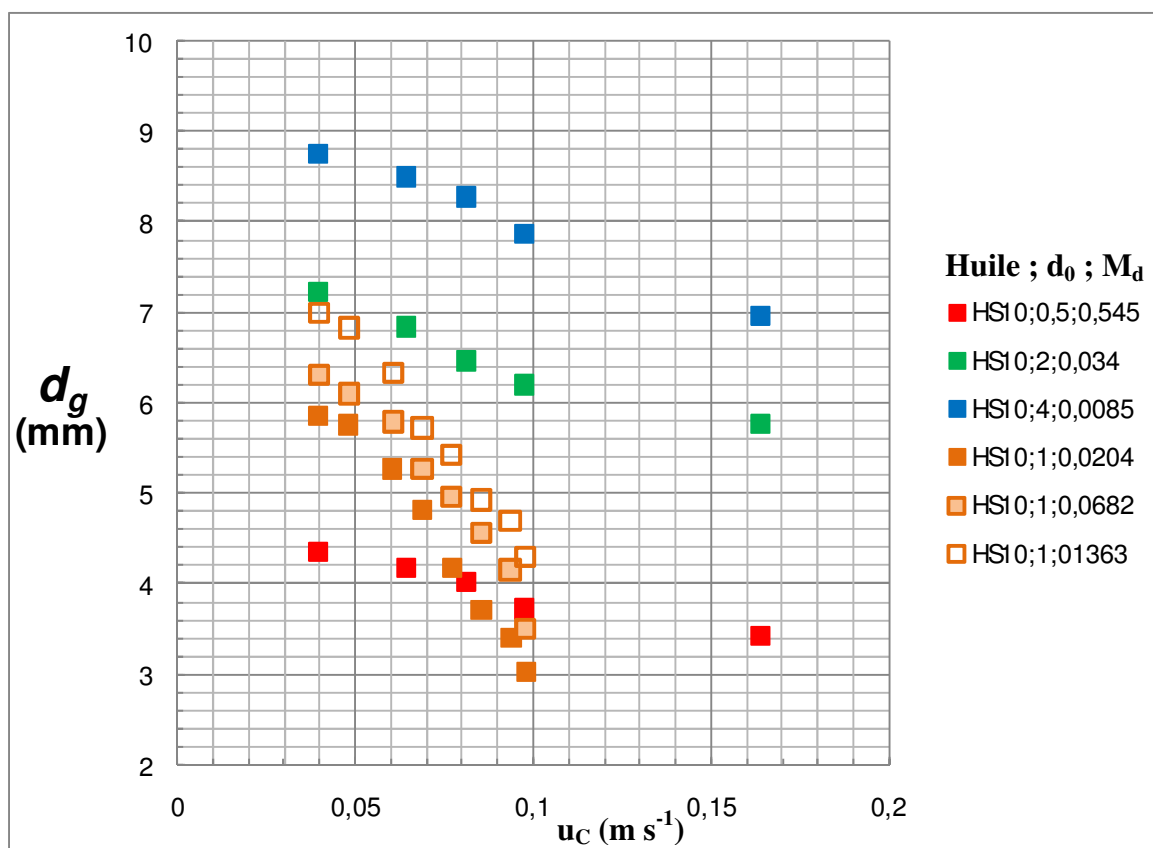


Figure III.22. Evolution du diamètre de goutte en fonction de la vitesse de la phase continue pour le couple HS10-eau.

Il n'a pas été possible d'apporter d'explication à cette différence de comportement injustifiée et les deux séries de résultats seront traitées indépendamment l'une de l'autre. Ainsi, si l'on considère chaque série de résultats, on constate que d_g dépend de la taille de la buse et décroît avec la vitesse de la phase continue. On montrerait également une influence de la nature de l'huile, comme constaté en l'absence de vitesse extérieure.

III.1.3.4. Evolution de l'angle de déflexion

L'évolution de l'angle de déflexion θ_d avec la vitesse de rotation a été mesurée pour les huiles HS10, HS50 et HS100 pour trois diamètres de buse différents. L'ensemble des résultats est représenté en fonction du nombre capillaire sur la figure III.23.

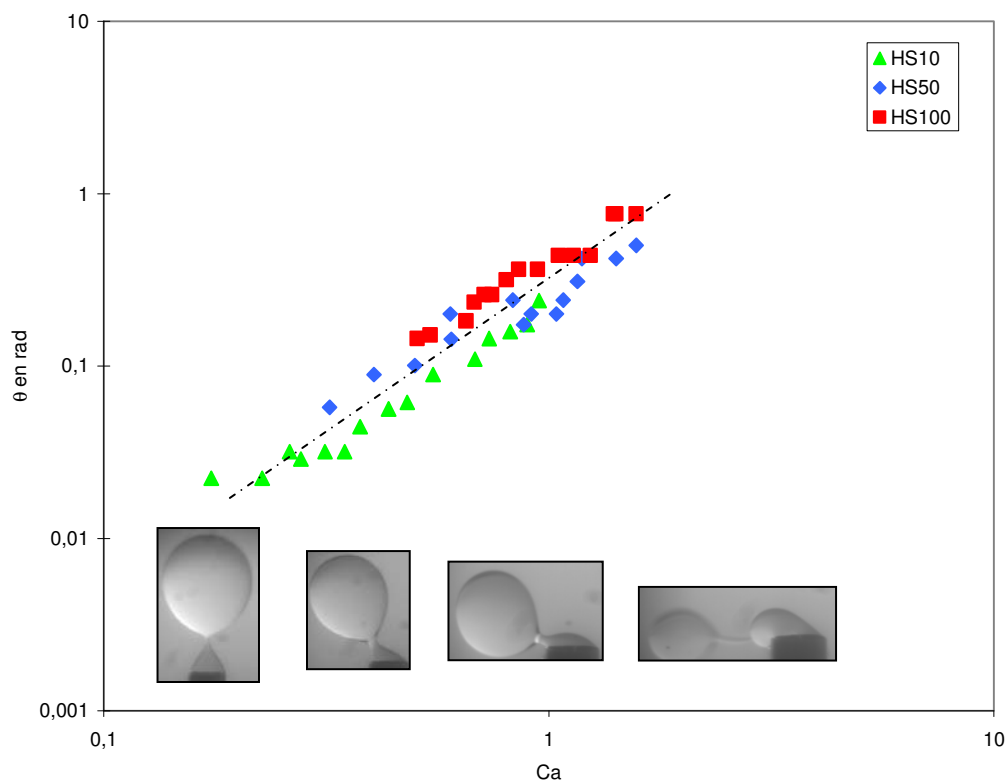


Figure III.23. Représentation de l'angle de déflexion en fonction du nombre de capillarité .

On observe une évolution de l'angle de déflexion comme une fonction de loi de puissance :

$$\theta_d = 0,31Ca^{1,7} \quad (III.12)$$

$$Ca \in [0,17-1,57]$$

Ce bon accord (erreur relative moyenne de 9,9 %) n'est qu'apparent et reflète en fait uniquement l'évolution de θ avec la vitesse de sollicitation u_c . Il n'a pas été possible, comme

dans le cas des bulles, d'identifier correctement le rôle de $\tan\theta_d$ et de k_σ car les résultats dépendent de nombreux paramètres qui ne sont pas tous bien contrôlés expérimentalement. Les mesures sont moins précises que dans le cas des bulles, mais nous pouvons toutefois nous inspirer de ces résultats mesurés avec plus de précision pour analyser plus empiriquement le comportement des gouttes.

III.1.3.5. Influence de la vitesse de la phase continue sur la taille des gouttes

L'analyse des forces peut être effectuée comme dans le cas des bulles. La prise en compte de la vitesse à l'orifice u_0 et du diamètre d'orifice sera effectuée en normant le diamètre de gouttes par d_{g0} (diamètre de goutte obtenu à $u_C=0$), toutes choses égales par ailleurs à $u_C = 0$. A priori, nous pouvons poser formellement :

$$d_g = f(\rho_C, \Delta\rho, \mu_D, \mu_C, u_0, d_0, \sigma_{CD}, u_C) \quad (III.13.)$$

Interviennent également des considérations géométriques sur la conformation de la buse ainsi qu'éventuellement des considérations de mouillage que nous laisserons de côté puisque les géométries et le matériau de buse sont fixés. Pour un couple eau-huile donné, il est intéressant de comparer les diamètres de gouttes obtenus en fonction de d_0 et u_C . Pour la première série de données, on dispose des diamètres de buse 0,5 ; 2 et 4 mm. Nous pouvons ainsi définir les fonctions de u_C :

$$\delta_i^j(u_C) = \frac{f(\rho_C, \Delta\rho, \mu_D, \mu_C, u_0, d_{0j}, \sigma_{CD}, u_C)}{f(\rho_C, \Delta\rho, \mu_D, \mu_C, u_0, d_{0i}, \sigma_{CD}, u_C)} \quad (III.14.)$$

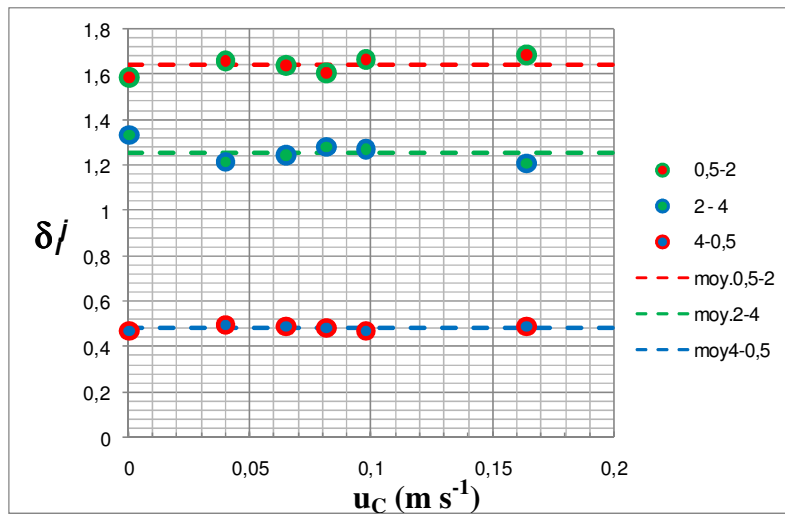


Figure III.24. Rapport des diamètres de gouttes à vitesse de phase continue donnée et diamètres de buse différents pour le système HS10-eau.

Nous avons porté à titre d'exemple les résultats relatifs au système HS10-eau. Des résultats similaires ont été obtenus pour les deux autres systèmes. Les diamètres de gouttes correspondant à $u_C = 0$ ont été extrapolés et sont en accord avec ceux mesurés dans le paragraphe III.1.2. On constate au vu de ces résultats que les fonctions $\delta_i^j(u_C)$ ne dépendent pas de u_C et vraisemblablement ne dépendent pas non plus de u_0 qui varie selon la taille des gouttes puisque les expériences ont été réalisées à débit massique constant. En particulier, le rapport constant obtenu est celui des diamètres de gouttes obtenus à vitesse de phase continue nulle que nous appelons d_{g0} . Ainsi, si l'on norme les diamètres de gouttes par d_{g0} , le diamètre réduit ainsi obtenu ne dépendra ni de u_C , ni de u_0 , ni de d_0 , ces paramètres étant pris en compte par d_{g0} . La relation III.13 devient ainsi :

$$\frac{d_g}{d_{g0}} = g(\rho_C, \Delta\rho, \mu_D, \mu_C, \sigma_{CD}, u_C)$$

Si l'on revient à l'analyse des forces effectuées sur les bulles, nous pouvons faire intervenir globalement le produit $Ri_{C0} E\ddot{o}_0^{1/2}$ qui ne fait pas intervenir le diamètre, mais introduit bien la force de poussée de l'écoulement externe sur la goutte, la force de poussée et la force superficielle avec :

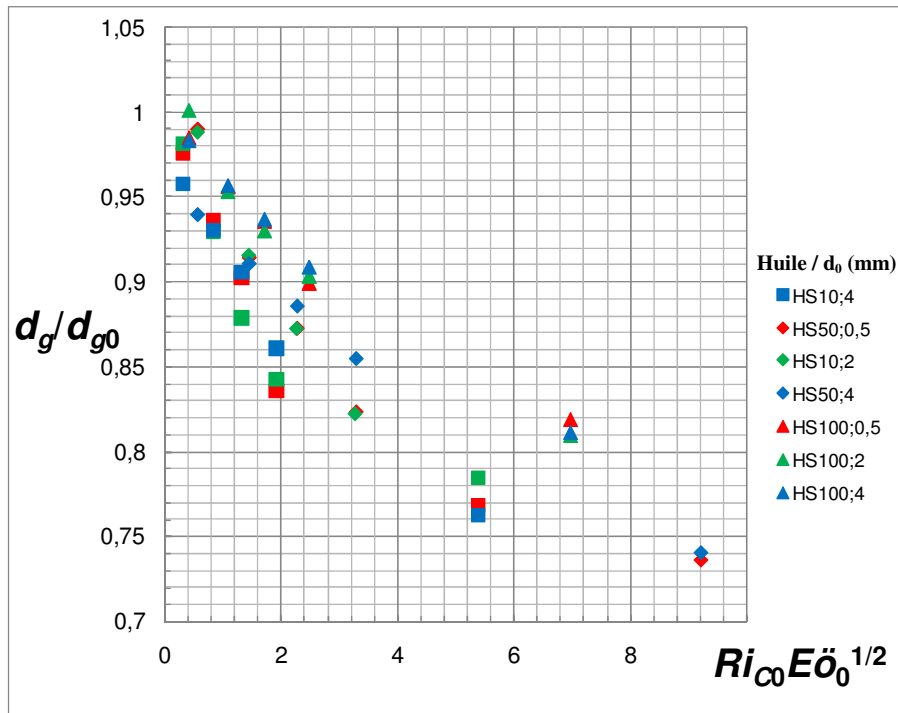


Figure III.25. Evolution des diamètres réduits en fonction du groupe X pour les trois systèmes étudiés.

Avec :

$$Ri_{C0} = \frac{\rho_C u_C^2}{g \Delta \rho d_0} \quad E\ddot{o}_0 = \frac{g \Delta \rho d_0^2}{\sigma_{CD}}$$

Nous aboutissons ainsi à une représentation satisfaisante des résultats. Nous proposons ainsi à titre provisoire la relation empirique suivante :

$$\frac{d_g}{d_{g0}} = 1 + \frac{1}{1 + 0,0135\kappa} \frac{Ri_{C0}\sqrt{E\ddot{o}_0}}{16,6} \left(2 - \frac{Ri_{C0}\sqrt{E\ddot{o}_0}}{16,6} \right) \quad (III.15)$$

$$Ri_{C0}\sqrt{E\ddot{o}_0} \leq 16,6$$

Le diagramme de parité de cette représentation est porté sur la figure III.26. L'écart pour une confiance de 95 % est de 6,6 % pour les 45 points expérimentaux. Si l'on ne prend pas en compte les trois points particuliers obtenus à u_C maximal pour HS10 cet écart tombe à 3,6%. Il convient de noter que la buse de 0,5 mm fonctionne seulement en régime de jet.

On constate sur la figure III.26 que la relation III.15 permet de regrouper correctement les points relatifs à un système eau-huile donné. Il existe cependant un décalage en fonction de la nature de l'huile, avec un amortissement de l'influence de l'écoulement externe lorsque la viscosité de l'huile croît. Cette observation peut être mise sur le compte de la cinétique de déformation de la goutte liée à sa viscosité. Nous proposons ainsi de corriger cet effet par l'intermédiaire du rapport des viscosités $\kappa = \mu_D/\mu_C$ avec ici $\mu_C = 10^{-3}$ Pa s.

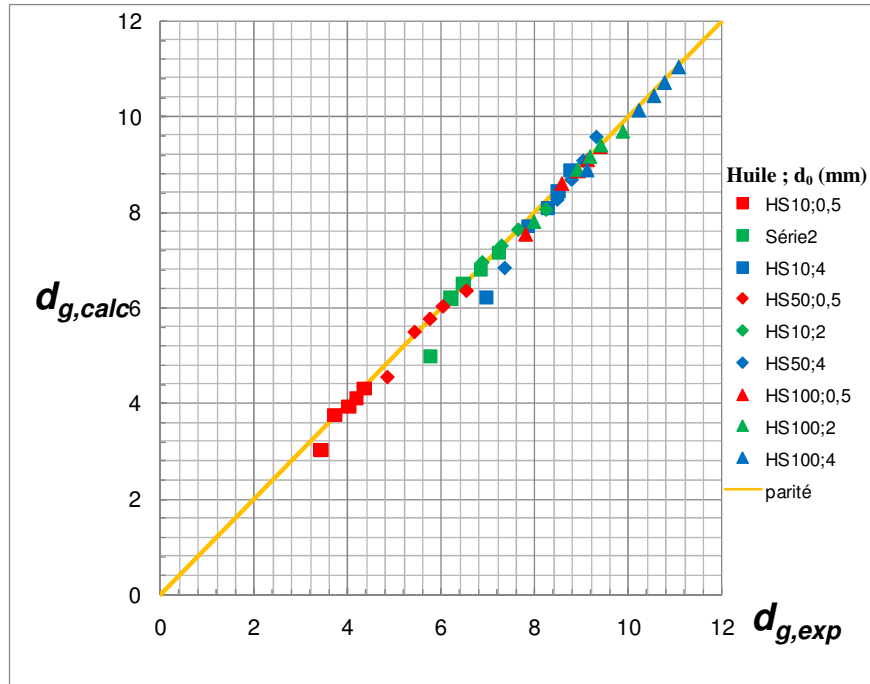


Figure III.26. Diagramme de parité de la représentation (III.15) des diamètres de gouttes soumises à un écoulement externe orthogonal.

III.1.4. Déformation de gouttes sous un champ de cisaillement pur

La présente partie est consacrée à l'étude de la déformation de gouttes sous un champ de cisaillement pur au sein d'une cellule d'écoulement de Couette (cf. figure I.06). Cette cellule nous permet d'isoler le cisaillement et de s'affranchir des phénomènes d'élongation intervenant lors de la formation des gouttes. La goutte à cisiller est placée au moyen d'une seringue au milieu des deux plaques parallèles qui sont immergées dans une phase organique. Le champ de cisaillement est imposé par la rotation du disque supérieur. Les phases aqueuses étudiées pour constituer les gouttes sont :

- fluides newtoniens dispersés (eau pure ; Emkarox HV45 25% ; 50% et 65%).
- fluides non-newtoniens dispersés (PAAm 0,25% ; 0,75% et 1,25%).

La cellule est préalablement remplie d'une phase organique constituant la phase continue. Les phases organiques utilisées sont l'huile de tournesol (HT), l'huile de silicone 47V100 (HS100) et l'huile de silicone 47V50 (HS50). Les deux huiles de silicone étudiées ayant des indices de réfractions proches des phases aqueuses utilisées (HV45), les phases aqueuses ont donc été colorées ou utilisant des colorants alimentaires ou des particules argentées pour pouvoir les observer dans la cellule de cisaillement de Couette.

III.1.4.1. Mesure de la vitesse de cisaillement

Afin de caractériser au mieux l'écoulement de cisaillement, une étude PIV a été entreprise pour déterminer les vitesses réelles de cisaillement au sein de la cellule. Les résultats de ces mesures de vitesses dans chaque phase continue organique sont reportés dans l'annexe A3. On observe très logiquement que, plus la phase est visqueuse, plus la vitesse de l'écoulement orthogonal est faible, à vitesse de rotation donnée. Par convention, et dans toute la suite de cette partie, nous nous placerons en coordonnées cylindriques. Ainsi, les déformations qui suivront l'axe u_r seront nommées radiales et les déformations qui suivront l'axe u_θ seront nommées azimutales. Il est à noter que ces mesures ont été effectuées en écoulement monophasique (il n'a pas été possible de les réaliser en présence de gouttes).

III.1.4.2. Déformation de la goutte en fonction de la vitesse de cisaillement

L'évolution de la forme de la goutte suivie à l'aide de la caméra rapide pour différents systèmes et à différentes vitesses de cisaillement, nous a permis d'obtenir les déformations subies par la goutte.

III.1.4.2.a. Fluides newtoniens

- Goutte d'eau dans l'huile

De nombreux systèmes ont été étudiés utilisant l'eau comme phase dispersée dans différentes huiles. La figure III.27 montre l'exemple de la déformation d'une goutte d'eau dans de l'huile HS50.

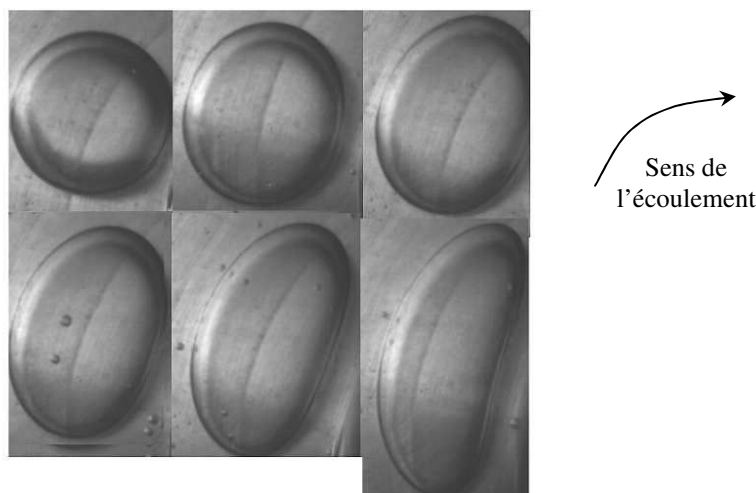


Figure III.27. Déformation d'une goutte d'eau dans de l'huile de silicone 50. Vitesse de rotation du moteur : En haut, de gauche à droite : $N=0$; $N=50$; $N=100$. En bas, de gauche à droite : $N=150$; $N=200$; $N=400$ tours min^{-1} .

On remarque ainsi que la goutte initialement sphérique prend une forme ellipsoïdale, s'allonge et s'amincit lorsque la vitesse de rotation augmente. On constate aussi que la déformation de la goutte est asymétrique, la goutte adopte une forme de feuille, qui s'allonge dans la direction de l'écoulement de cisaillement et qui s'amincit dans la direction radiale.

L'évolution de la longueur d'une goutte d'eau est suivie dans trois phases organiques différentes (huile de tournesol, huile de silicone 50, huile de silicone 100) et pour trois tailles initiales différentes de la goutte. L'ensemble des résultats relatifs à la déformation de gouttes d'eau dans ces différentes phases est reporté sur la figure III.28.

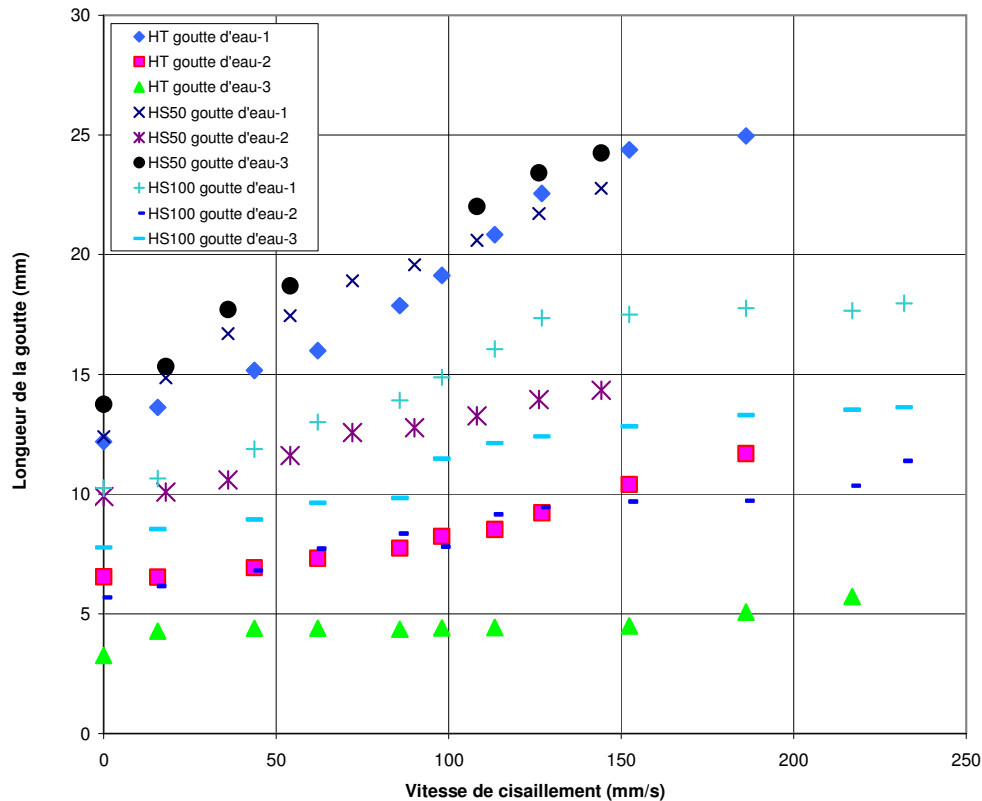


Figure III.28. Evolution de la longueur d'une goutte d'eau en fonction de la vitesse de cisaillement dans trois phases continues différentes et trois taille de gouttes par phase..

Il apparaît ainsi que la goutte s'allonge suivant la direction azimutale au fur et à mesure que la vitesse de cisaillement augmente. On remarque aussi que plus la goutte est grande, plus la déformation est importante. Ces comportements sont identiques pour les trois phases organiques.

▪ Goutte d'Emkarox dans l'huile

Nous présentons ici les résultats obtenus pour les gouttes constituées de solutions aqueuses d'Emkarox dans l'huile de silicone HS 50. Un colorant a été ajouté aux solutions d'Emkarox du fait des densités optiques très proche de ces phases dispersée et continue, les gouttes étant invisibles.

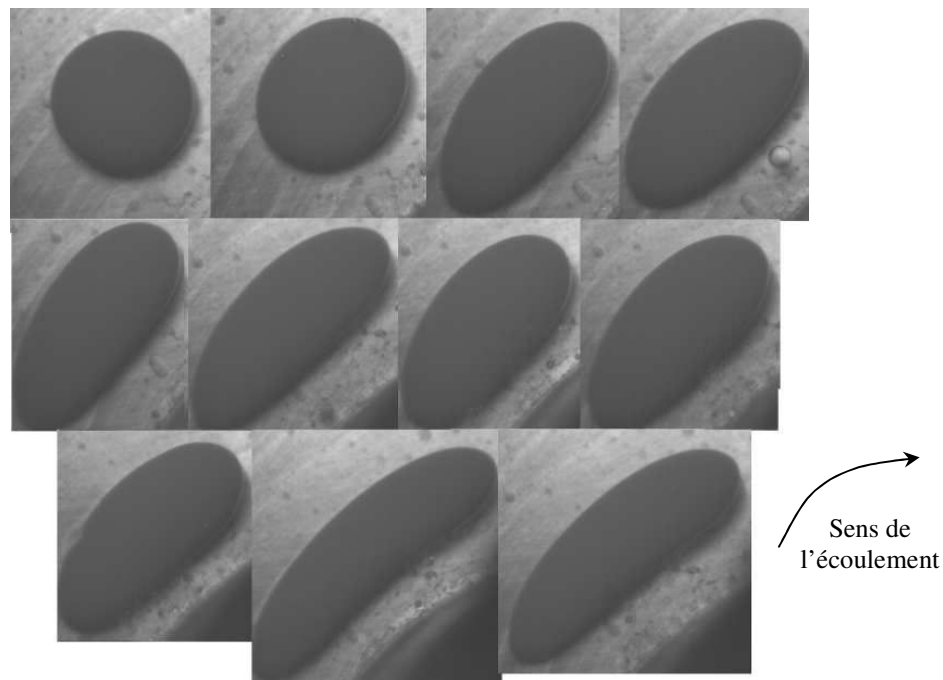


Figure III.29. Déformation d'une goutte d'Emkarox 50% dans l'huile de silicone HS 50

Pour le cisaillement d'une goutte d'Emkarox dans de l'huile de silicone 50, on retrouve une déformation identique au cas précédent : il y a étirement dans la direction du cisaillement et rétrécissement dans la direction radiale. Ce résultat est confirmé par la figure III.30 qui traduit l'évolution de la longueur de la goutte en fonction de la vitesse de cisaillement.

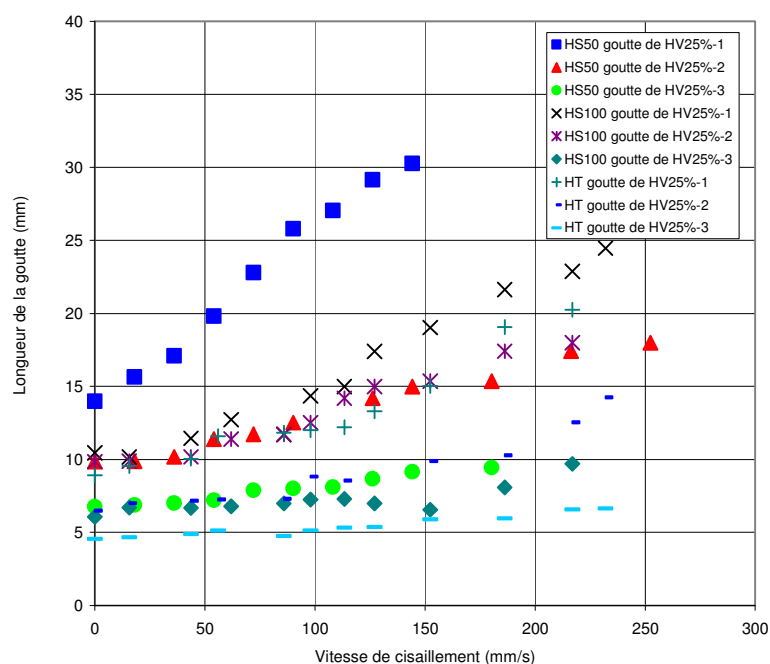


Figure III.30.. Evolution de la longueur d'une goutte de HV45 25 % en fonction de la vitesse de cisaillement pour les différents systèmes étudiés.

Pour les autres concentrations en HV45 (50 et 65% massiques), les résultats sont consignés en annexe A3. On observe que la déformation est dans tous les cas linéaire, et dépendant de la taille initiale de la goutte ainsi que des propriétés visqueuses des deux phases. Les résultats reportés sur les figures III.28, III.30 et dans les annexes A3.2 et A3.3 sont corrélés en introduisant un nombre de Reynolds pour la goutte :

$$Re = \frac{\rho_D u_C L}{\mu_D}$$

Et en utilisant aussi le rapport de viscosités entre les deux phases. Etant donné que sur notre domaine d'étude, la tension interfaciale (tableau I.04) varie très faiblement, nous n'en avons pas tenu compte pour la généralisation de nos résultats. La relation III.16 n'est qu'une représentation parmi d'autres possibles mais elle permet de regrouper les résultats avec une bonne précision (erreur relative moyenne de 8% pour 285 points expérimentaux).

$$\frac{L}{L(u_C=0)} = \frac{2}{3} Re^{\frac{1}{4}} \left(\frac{\mu_D}{\mu_C} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (III.16)$$

$$Re \in [0,24 - 3495]$$

$$\mu_d / \mu_c \in [0,02 - 12]$$

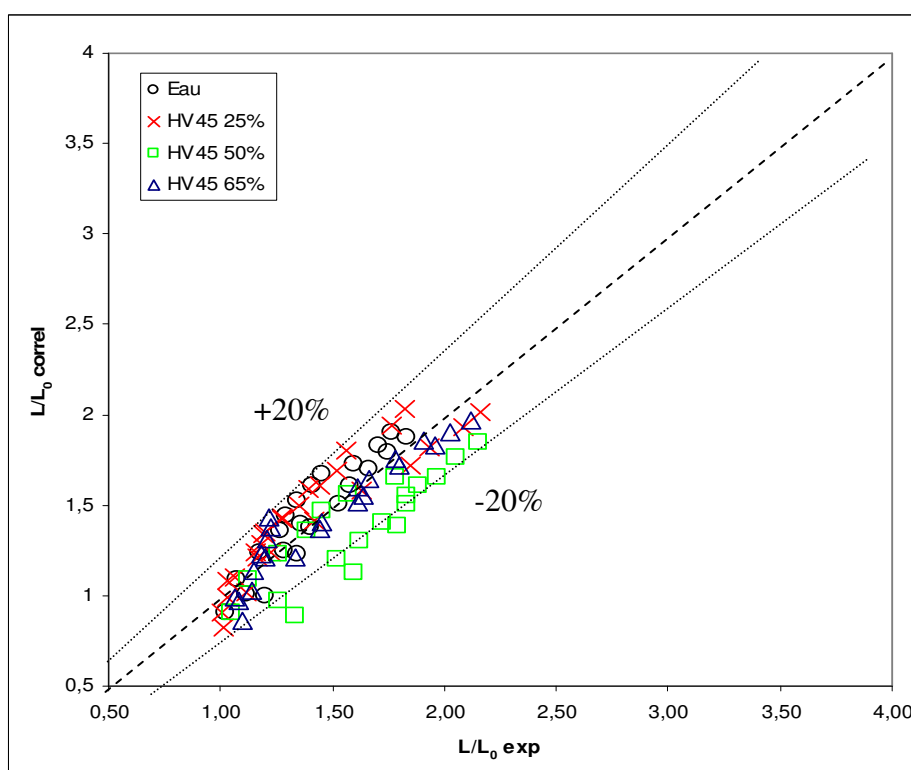


Figure III.31. Diagramme de parité entre les valeurs de L/L_0 obtenues par l'expérience et par la corrélation proposée (III.16.)

III.1.4.2.b. Fluides non-newtoniens

Trois concentrations massiques différentes de PAAm ont été étudiées (0,25 ; 0,75 et 1,25%) pour la déformation des gouttes dans des phases organiques. La figure III.32 illustre la déformation d'une goutte de PAAm 0,75% dans de l'huile de silicone HS 50. On observe, contrairement aux résultats obtenus avec les gouttes de fluides newtoniens, que la forme de la goutte n'est plus ellipsoïdale. En effet, lorsque le cisaillement augmente, on observe dans un premier temps, une déformation de type radiale donnant une goutte de forme « carrée » puis une déformation azimuthale se traduisant par un étirement de la goutte.

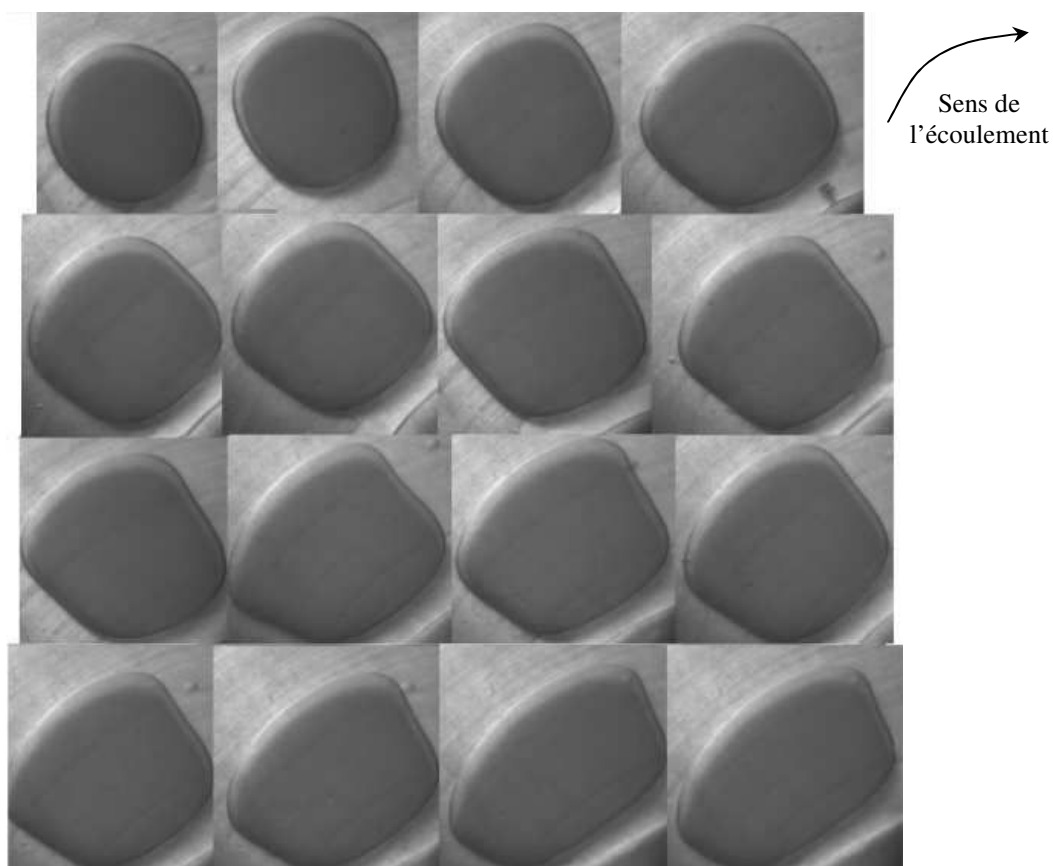


Figure III.32. Déformation d'une goutte de PAAm 0,75% dans l'huile de silicone HS 50. De gauche à droite, de haut en bas, $N=0$; $N=50$; $N=75$; $N=100$; $N=150$; $N=200$; $N=250$; $N=300$; $N=350$; $N=400$; $N=450$; $N=500$; $N=600$; $N=700$; $N=800$; $N=900$ tours min^{-1} .

Ces résultats sont nettement différents de ceux obtenus avec des phases dispersées constituées des fluides newtoniens ; on peut donc penser que la différence de déformation est liée aux propriétés des fluides non-newtoniens telles que la viscoélasticité par exemple.

Ce phénomène est d'autant plus marqué que la goutte est grosse mais aussi que le fluide est viscoélastique, *i.e.* que la concentration en PAAm est importante. En effet, aux faibles concentrations en PAAm (0,1% ; 0,25 et 0,5 %) , la déformation est azimutale, la goutte s'allongeant dans le sens du cisaillement, comme le montrent les figures III.33 et III.34. Mais pour des concentrations importantes (1 % et 1,25 %), la déformation est d'abord radiale aux faibles vitesses de cisaillement puis devient progressivement azimutale lorsque les vitesses de cisaillement augmentent.

Comme dans le cas des fluides newtoniens, une étude de l'évolution de la longueur de gouttes en fonction du cisaillement a été entreprise (c.f. A3). On y observe bien, comme le résume la figure III.33, que pour les faibles viscoélasticités la longueur augmente linéairement, mais que pour les fortes viscoélasticités, celle ci diminue, en accord avec les observations expérimentales reportées sur la figure III.34.

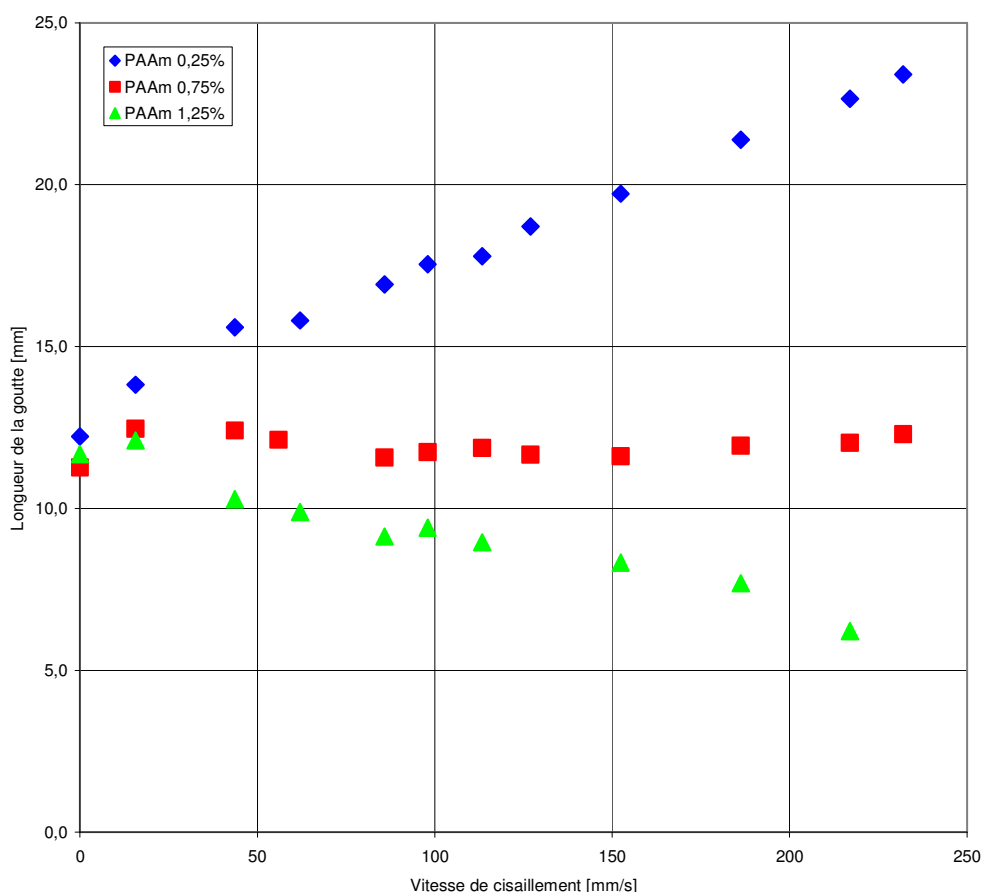


Figure III.33. Evolution de la longueur d'une goutte de PAAm de 12 mm en fonction de la vitesse de cisaillement pour les trois phases dispersées différentes dans l'huile de silicone 50.

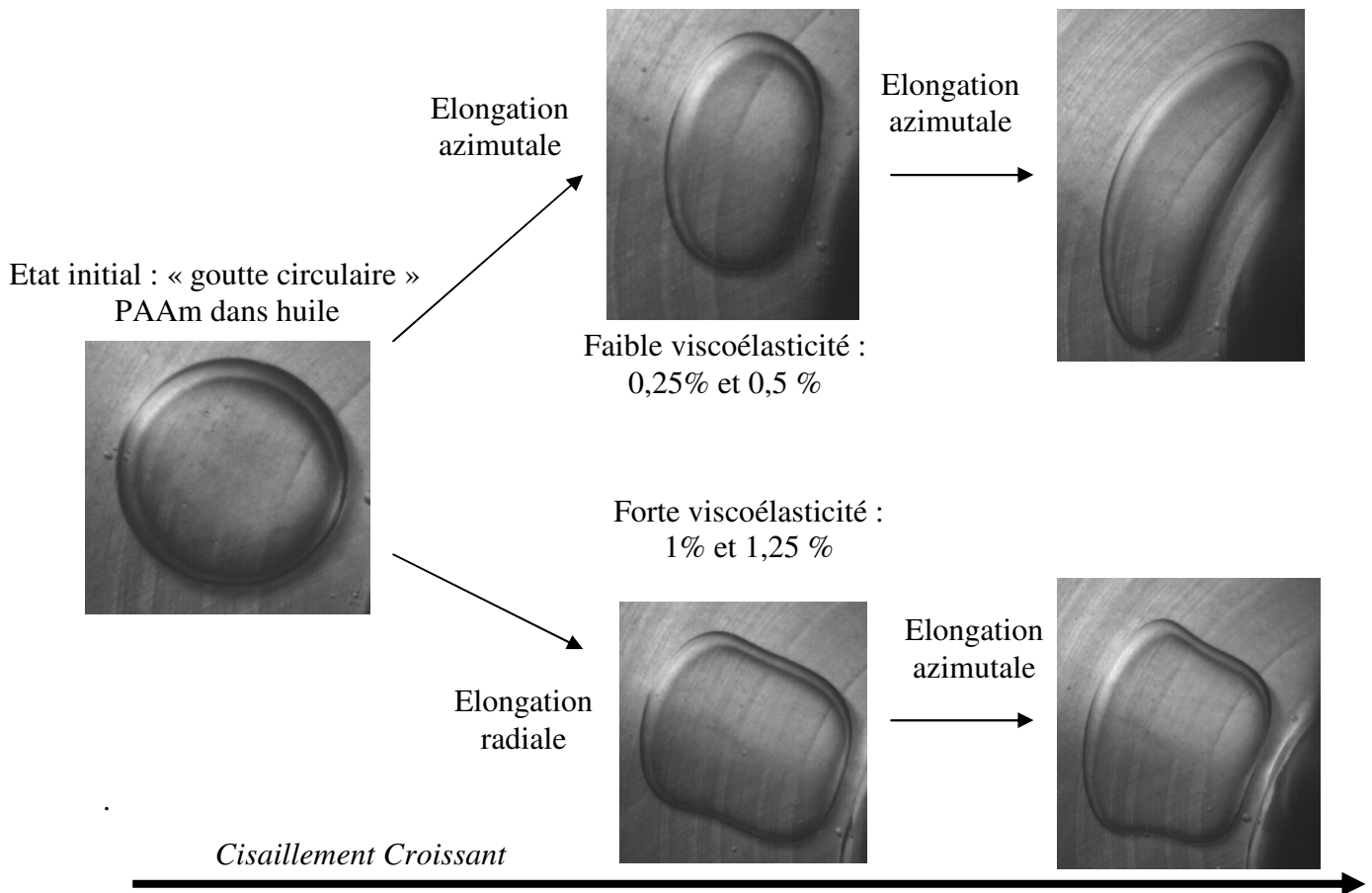


Figure III.34. Différents scénari de déformation selon la viscoélasticité du PAAm

III.1.4.3 Différents scénari de rupture de gouttes

Lors des expériences de déformation de gouttes, nous avons pu observer des ruptures de gouttes. Ces ruptures ont principalement été visualisées en présence de systèmes aux faibles tensions interfaciales et aux grandes vitesses de cisaillement.

Nous présenterons dans ce qui suit deux exemples pour le HV45 50% et le PAAm 1,25% dans de l'huile de silicone HS50. Ces deux exemples permettent de bien représenter les deux types de déformation (azimutale et radiale) rencontrés.

Il est à noter que la rupture n'a jamais été observée en présence d'eau comme phase dispersée en raison de sa grande tension interfaciale avec les milieux continus.

Exemple 1 : Déformation d'une goutte de HV45 50% dans de l'huile de silicone HS50

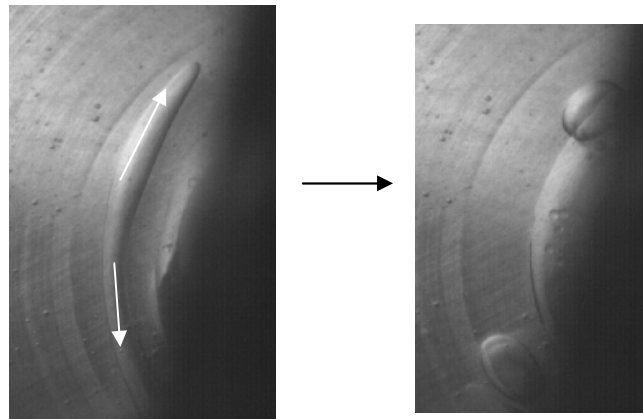


Figure III.35. Déformation d'une goutte de HV45 50% dans de l'huile de silicone HS50.

Dans ce cas, la déformation due au cisaillement est de type azimutale. On observe un étirement de la goutte jusqu'à l'obtention d'un film mince qui au delà d'une certaine valeur de la vitesse de rotation finit par se briser. Ce faisant, ce phénomène étant très rapide (quelques millisecondes), il est difficile de le visualiser systématiquement. Cependant, nous avons pu visualiser la rupture d'une goutte de HV45 50% comme le montre la figure III.36.

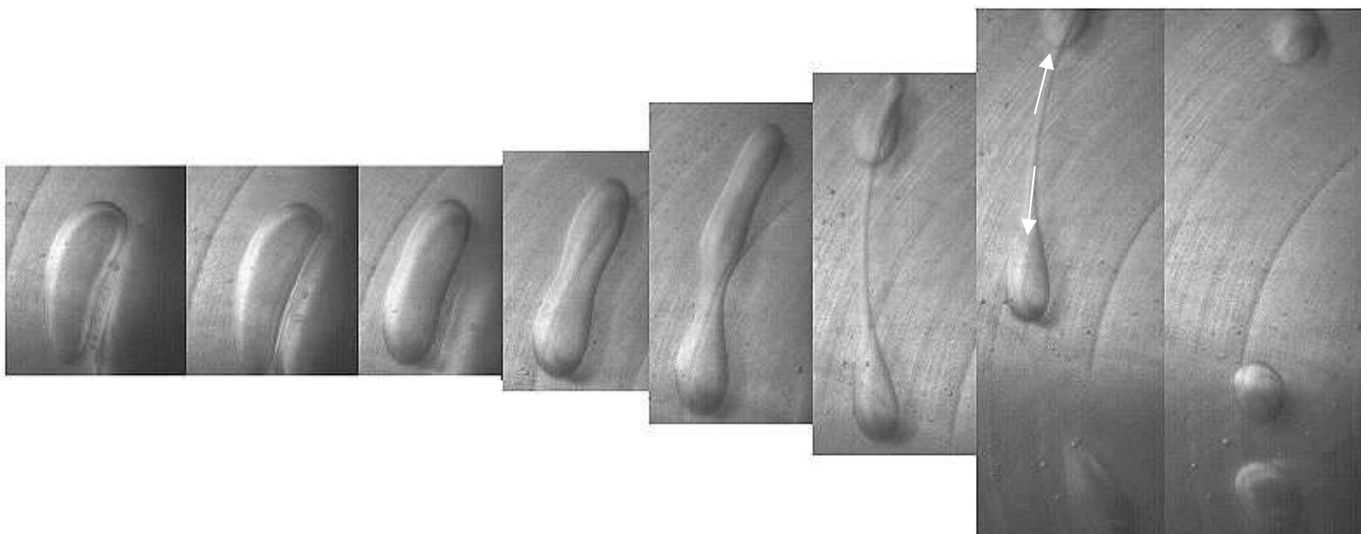


Figure III.36. Déformation d'une goutte de HV45 50% dans de l'huile de silicone HS50 conduisant à la rupture.

La goutte se déforme, s'étire avec l'augmentation du cisaillement et présente un étranglement au centre de sa géométrie. Cet étranglement s'accroît à mesure que le cisaillement augmente jusqu'à la rupture de la goutte en trois gouttelettes filles.

Exemple 2 : Déformation d'une goutte de PAAm 1,25 % dans de l'huile de silicone HS50



Figure III.37 : Déformation d'une goutte de PAAm 1,25 % dans de l'huile de silicone HS50

Contrairement à l'exemple précédent, l'allongement de la goutte est purement radial (dans le sens orthogonal au cisaillement). Cependant, on observe toujours l'étranglement de la goutte dû à son élongation, jusqu'à sa rupture (figure III.37).

Ces résultats peuvent s'expliquer par les contraintes normales non nulles de ces solutions polymériques (Tableau I.09 et figure I.06). L'apparition d'anisotropie des contraintes normales est liée au fait que l'écoulement de cisaillement modifie la microstructure du fluide et la rend anisotrope. Dans l'exemple de notre solution de polymères, la macromolécule en solution a l'aspect d'une pelote de fil contenue dans une enveloppe sphérique. Lorsqu'elle est soumise à un cisaillement suffisamment fort, cette pelote se déforme en un ellipsoïde dont le grand axe a tendance à tourner vers la direction de l'écoulement. L'élasticité du polymère, d'origine essentiellement entropique, a tendance à ramener cet ellipsoïde vers une forme sphérique. La force de rappel est maximale dans la direction de l'écoulement ; elle est responsable de l'apparition d'une compression le long de l'écoulement. L'anisotropie des contraintes normales a deux manifestations spectaculaires : l'ascension du fluide le long d'un barreau tournant (effet Weissenberg que nous développerons dans la partie III.3) et l'expansion du jet sortant d'un orifice. Dans l'écoulement engendré par un axe tournant, la vitesse est essentiellement azimutale, avec un gradient radial. L'anisotropie des contraintes normales a une tension le long des lignes de courants circulaires qui tend à pousser le fluide vers le centre de rotation et donc à le faire monter le long du cylindre tournant. Dans le cas d'une cellule de cisaillement de Couette, le cisaillement est constant engendrant une tension normale au sens du cisaillement ce qui développe une élongation radiale dans un premier temps puis azimutale lorsque le cisaillement devient trop important.

De plus il semblerait que la transition entre les deux modes d'élongations soit située pour des concentrations en PAAM de l'ordre de 0,75%, ce qui correspond à un nombre de Deborah supérieur à 100. Il est intéressant de noter que cette valeur est identique aux valeurs observées du nombre de Deborah caractéristique de l'apparition du sillage négatif lors de l'ascension d'une bulle dans un fluide non-newtonien. Les valeurs de τ et de N_1 ont été comparées pour ce cas de transition, mais aucune conclusion quant à l'équilibre entre ces deux contraintes n'a pu être établie. Il sera intéressant de compléter expérimentalement cette étude et également d'affiner la valeur critique de ce nombre par la simulation LB développée par notre équipe.

III.1.5. Conclusion

Dans cette étude nous avons examiné expérimentalement le phénomène de la formation et de la déformation de gouttes pour différents couples d'interface liquide-liquide afin d'approfondir la compréhension de ce phénomène. Plusieurs caractéristiques ont été mises en évidence, en particulier:

- Formation de gouttes dans un liquide au repos

L'étude par caméra rapide et par PIV a permis d'identifier le mécanisme de formation des gouttes dans un fluide au repos. Plusieurs paramètres (propriétés physico-chimiques des deux phases, débit de la phase dispersée, diamètre de l'orifice) ont pu être testés sur des orifices de type capillaire (d_0 diamètre interne et paroi de 0.2mm). Cependant, malgré les nombreuses études reportées dans la littérature sur le sujet, aucune corrélation existante ne permet de représenter correctement nos résultats. Ceci peut être dû au mouillage et à la forme des buses qui ne semble pas être prise en compte correctement dans la littérature. Aussi, nous avons proposé un modèle simple (relation III.11) basé sur l'approche de quasi-équilibre avec un terme correctif qui permet, tant pour les gouttes que pour les bulles, d'estimer avec précision le diamètre des inclusions obtenues avec des buses de type capillaire.

- Formation de gouttes sous l'action d'un champ de cisaillement

La présence d'un cisaillement latéral à la formation de goutte tend à former des gouttes de plus petite taille qu'en l'absence d'écoulement orthogonal. La taille des gouttes est d'autant plus petite que la vitesse de cisaillement est importante. La forme, la taille et l'angle de déflexion des gouttes ont pu être mesurés à l'aide de la caméra rapide. L'utilisation de la PIV ne permet pas de visualiser l'hydrodynamique de la formation des gouttes en raison de l'importance du champ de cisaillement latéral. Néanmoins la technique PIV nous aura permis de mesurer localement et avec précision la valeur de cet écoulement. Nous avons donc pu suivre l'évolution de la taille des gouttes en fonction du cisaillement et aboutir à la corrélation *III.17*. La forme proposée n'est qu'une représentation parmi d'autres mais présente le mérite de mettre en évidence les influences que nous avons pu observer dans le domaine expérimental exploré. Elle est cependant loin de couvrir la totalité des possibilités en particulier en ce qui concerne l'inversion de la valeur du rapport des viscosités avec une phase dispersée moins visqueuse que la phase continue. En particulier, les observations ne recoupent pas vraiment celles effectuées avec les bulles d'air dans l'eau bien que l'on conserve le même mode de représentation du diamètre réduit en fonction du groupe $Ri\sqrt{Eo}$.

Cette étude pourra être complétée par des expériences de formation de gouttes dans d'autres phases continues, ce qui permettra d'une part de tester la corrélation proposée et de comparer la formation de gouttes sous un écoulement latéral à l'échelle mésoscopique avec les travaux en cours de réalisation dans notre équipe sur la formation de gouttes dans des micro-mélangeurs (thèse Debas, 2008) comme l'illustre la figure *III.38*. Tout comme dans le cas des bulles, il est possible de supposer que les expériences à l'échelle microscopique constituent un régime asymptotique et particulier des expériences effectuées à l'échelle mésoscopique.

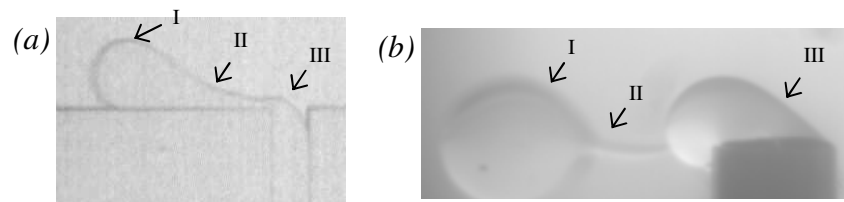


Figure III.38. Formation de goutte d'huile en phase aqueuse (a) à l'échelle microscopique dans un canal de 100 μm (source Van der Graaf et al., 2005). (b) à l'échelle mesoscopique sur un orifice de 4 mm. On retrouve les trois zones I, II et III sur les deux images.

- Déformation de gouttes.

Ce travail visait à isoler le phénomène de cisaillement de celui d'élongation dans le but d'améliorer la compréhension de la rupture de gouttes. L'étude a porté sur deux types de fluides pour la phase dispersée :

- fluides newtoniens : Eau et Emkarox (25, 50, 65%) ;
- fluides non-newtoniens : PAAm (0,25% ; 0,50% ; 0,75%).

Concernant les fluides newtoniens, on retient que le cisaillement induit une élongation azimutale de la goutte, engendrant un amincissement de celle-ci dans le sens du cisaillement. Cette déformation est plus marquée pour les gouttes de grande taille. De plus, l'évolution de la longueur des gouttes en fonction de la vitesse de cisaillement est linéaire avec une pente différente selon la taille de la goutte. Pour corrélérer la longueur des gouttes, des rapports adimensionnels tenant compte du diamètre initial de la goutte, de la vitesse de cisaillement et des propriétés physico-chimiques des fluides en présence ont été utilisés. La corrélation obtenue (Eq. III.17) permet de représenter avec une bonne précision l'élongation de la goutte. Il reste cependant à explorer l'influence de la tension superficielle sur cette élongation, le faible domaine dans lequel nous avons travaillé $\sigma_{12} \in [15-20 \text{ mN/m}]$ ne permettant pas de quantifier cet effet.

Pour les fluides non-newtoniens, nous avons observé des phénomènes totalement différents. Aux faibles viscoélasticités, la déformation est azimutale, alors que pour les viscoélasticité les plus fortes, la déformation est d'abord radiale puis azimutale, les contraintes normales peuvent être à l'origine de cet effet. Malheureusement les mesures PIV n'ont pas permis de mesurer le cisaillement en écoulement diphasique ce qui aurait permis de comparer les valeurs de τ et N_1 , à l'origine des deux régimes observés. Il faudra confirmer ces observations par la suite par de la simulation numérique.

L'ensemble de ces résultats nous aura donc permis de comprendre un peu mieux le phénomène de cisaillement et de l'isoler pour visualiser et analyser les déformations de gouttes jusqu'à leur rupture.

Chapitre III

III.2. Traversée d'Interfaces liquide-liquide par des inclusions

Dans cette partie, nous étudions expérimentalement la traversée d'une interface liquide–liquide (phases aqueuse et huileuse) par une bulle ou une sphère. Dans une première partie, nous présentons une revue bibliographique des différents travaux se rapportant à la traversée d'une bulle ou d'une sphère à travers une interface liquide–liquide ainsi que quelques notions sur les instabilités hydrodynamiques. La deuxième partie comporte une étude expérimentale de la traversée d'une interface liquide–liquide par une bulle. La troisième partie sera consacrée à la traversée d'une interface par une sphère rigide. Et enfin, la dernière partie proposera une généralisation des résultats obtenus pour les deux types de traversées d'interfaces. Cette étude constitue un complément des travaux de thèse de Kemiha (2006).

III.2.1. Synthèse bibliographique

Afin de situer le contexte de notre étude dans cette partie, cette section sera consacrée à la discussion des travaux réalisés jusqu'à présent sur les traversées d'interfaces. Nous présenterons dans un premier temps les caractéristiques d'écoulement d'une bulle et d'une sphère dans des fluides newtoniens puis nous exposerons les travaux présents dans la littérature traitant des traversées d'interface.

III.2.1.1. Ascension de bulle en milieu newtonien

Les études réalisées traitant de l'ascension de bulles en milieu newtonien ont déjà été présentées au chapitre II-Partie III (§C2.3.1) lors de l'étude des trains de bulles en milieu newtonien.

III.2.1.2. Sédimentation d'une sphère rigide en milieu newtonien

Durant le dernier demi-siècle, de nombreux progrès ont été réalisés dans le domaine de la sédimentation de sphères rigides. Ces travaux concernent le transfert de matière, l'écoulement, notamment la vitesse terminale de chute d'une ou de plusieurs sphères, le calcul du coefficient de traînée et l'échange entre l'inclusion et le milieu continu. Pour plus de détails, on pourra se reporter aux ouvrages de Chhabra (1993), DeKee and Chhabra (2002), Gheissay and Van den Brule (1996), Arigo and Mckeinly (1998) et Harlen (2002).

Une sphère rigide de diamètre d et de masse volumique ρ_s sédimentant à une vitesse U_s dans un milieu newtonien de viscosité dynamique η , est soumise à une force motrice qui représente la résultante de la force de gravité moins la force de poussée d'Archimède :

$$F_m = \frac{\pi d^3}{6} g (\rho_s - \rho_L) \quad (III.17)$$

et à une force de résistance qui est la force de traînée due au mouvement relatif du fluide et de la sphère et qui a pour origine la composante hydrostatique du champ de pression et les forces de frottement tangentiels issues des effets de viscosité du liquide. Cette force s'exprime de la façon suivante :

$$F_T = \frac{1}{2} \rho U_s^2 \frac{\pi d^2}{4} C_d \quad (III.18)$$

Avec C_d le coefficient de traînée. En régime permanent, le bilan de ces forces donne l'expression du coefficient de traînée en fonction des caractéristiques du liquide (phase continue) et de la sphère (phase dispersée) comme suit :

$$C_d = \frac{4}{3} g \frac{|\rho_s - \rho_L|}{\rho_L} \frac{d}{U_s^2} \quad (III.19)$$

Cette force de traînée peut être déterminée analytiquement, pour de faibles nombres de Reynolds ($Re < 0,2$; régime de Stokes) à partir de champs de vitesse (Bird *et al.* 1987), le résultat est donné par l'expression dite loi de Stokes :

$$F_T = 3\pi\eta d U_s \quad (III.20)$$

Ainsi le coefficient de traînée peut être exprimé de façon simplifiée comme suit:

$$C_d = \frac{24}{Re_p} \quad (III.21)$$

Et la vitesse terminale de chute associée est :

$$U_s^\infty = \frac{1}{18} g \frac{(\rho_s - \rho_L)}{\eta} d^2 \quad (III.22)$$

Dans la pratique, on utilise des corrélations pour déterminer le coefficient de traînée en fonction de nombres de Reynolds. Pour $Re < 10^3$, on a la corrélation de Schiller et Nauman (1933), reportée sur le tableau III.01 qui présente le coefficient de traînée pour des nombres de Reynolds compris entre 10^{-4} à 5.10^5 couvrant ainsi les régimes de Stokes, de Van Allen (intermédiaire) et de Newton.

Régime	Intervalle	Corrélation	Approximation
Stokes (écoulement potentiel)	$10^{-4} < Re_p < 1$	$C_d = \frac{24}{Re_p} (1 + 0,15 Re_p^{0,687})$	$24 \cdot Re_p^{-1}$
Van Allen	$1 < Re_p < 10^3$		$18,5 \cdot Re_p^{-0,6}$
Newton	$10^3 < Re_p < 5.10^5$	0,44	

Tableau III.01. Corrélations du coefficient de traînée en fonction du nombre de Reynolds

De nombreuses études PIV ont été effectuées concernant la sédimentation de sphère dans un fluide au repos, notamment Arigo et Mac Kinley (1998), Harrison *et al.* (2001) et Tatum *et al.* (2005). Ces travaux, comme le montre la figure III.36, ont contribué à la caractérisation de l'écoulement de la sphère en sédimentation dans ces milieux et à visualiser l'ensemble des phénomènes liés.

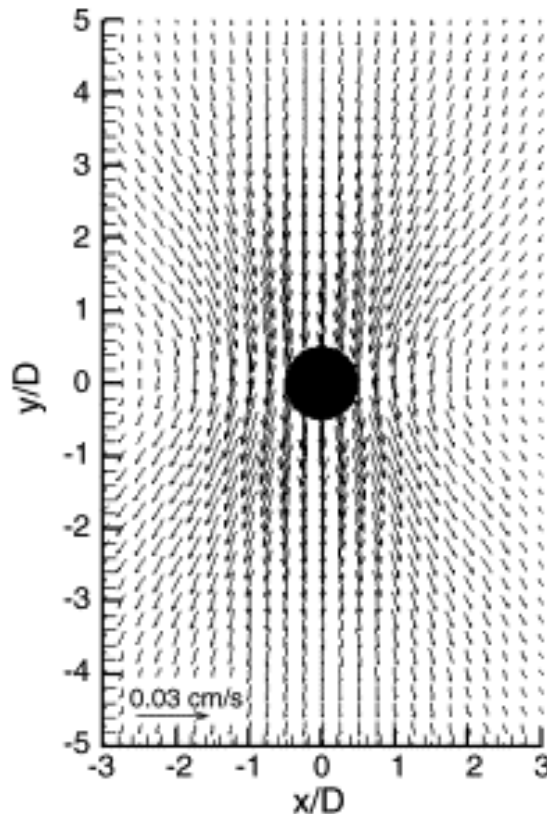


Figure III.36. Champs de vitesse obtenu lors de la sédimentation d'une sphère de 4 mm dans un fluide visqueux par Tatum *et al.* (2005).

III.2.1.3. Notions sur les instabilités de surface Rayleigh–Taylor et Kelvin–Helmholtz

Lors de la traversée d'interface par des sphères ou des bulles, des instabilités de surfaces peuvent apparaître ; voici quelques notions sur ces différents phénomènes.

III.2.1.3.a. Instabilités de surface Rayleigh–Taylor

Deux couches parallèles et planes de fluides immiscibles sont stables, mais la plus légère perturbation mène à la libération de l'énergie potentielle, car le fluide le plus lourd a tendance à descendre sous le champ de la gravité, et le fluide le plus léger est déplacé vers le haut.

Pendant que l'instabilité se développe, des fossettes sont rapidement générées et on observe la formation de « doigts ». C'est le cas avec des nuages et de l'air ou quand un fluide d'une certaine densité flotte au-dessus d'un fluide de densité plus faible. Cette instabilité, appelé instabilité de Rayleigh-Taylor (IRT), mais également instabilité de Richtmyer-Meshkov, apparaît sous l'accélération directe ou par effet de gravité à l'interface de deux fluides de densités différentes.

Lorsqu'on génère à l'interface une perturbation, sinusoïdale par exemple (Smith, 2004), on observe la formation de « doigts », le liquide lourd s'introduisant dans le liquide léger en plusieurs endroits (figure III.37.).

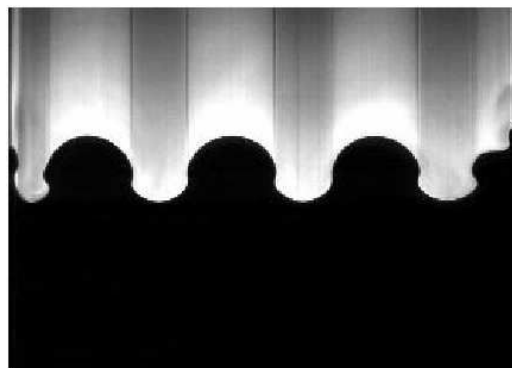


Figure III.37. Comportement d'une interface liquide-liquide soumise à une perturbation sinusoïdale. Formation de « doigts » due à l'instabilité de Rayleigh-Taylor (Smith 2004).

Li *et al.* (2006) ont simulé numériquement des instabilités de RT pour des fluides de densités différentes (ratio de densité de 3). On peut ainsi visualiser la formation de doigts entre les phases (figure III.38)

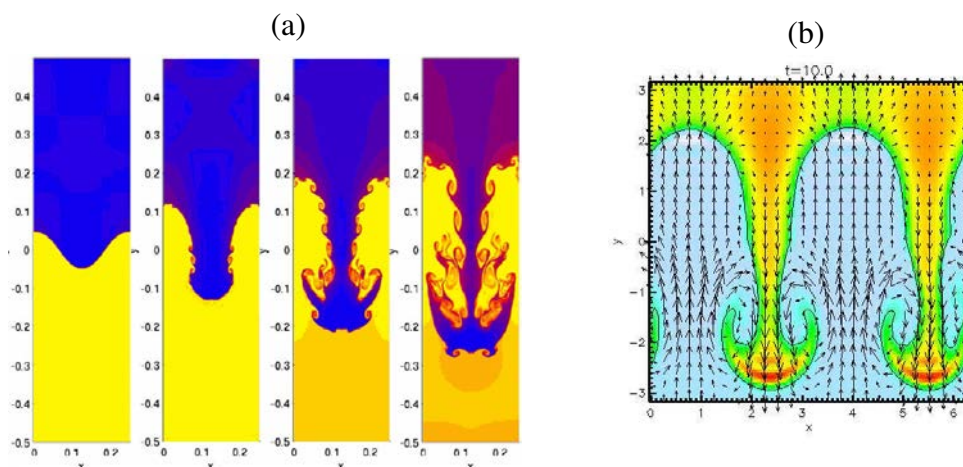


Figure III.38. Instabilités de Rayleigh-Taylor simulées par (a) Li *et al.* (2006), (b) Stanford university (2004).

Des instabilités du type Rayleigh ont été observées par Manga et Stone (1995) sur la colonne de liquide lourd entraîné après le passage d'une bulle à une interface liquide-liquide. Ces instabilités provoquent la fragmentation de la colonne de liquide lourd dans la phase légère en plusieurs gouttelettes.

Völtz *et al.* (2001) ont mis en évidence l'instabilité de Rayleigh–Taylor lors de la sédimentation d'une suspension de sable dans une solution de glycérine très visqueuse. Ainsi, la forme de l'interface suspension/glycérine est comparable à celle observée dans le cas d'une interface liquide–liquide reportée sur la figure III.37.

Smolianski (2001) a mis en évidence une instabilité secondaire lorsqu'une perturbation de courte longueur d'onde et parallèle à l'écoulement est appliquée sur le doigt formé. Cependant, cette instabilité n'apparaît que pour des tensions interfaciales inférieures à :

$$\sigma_{\text{critique}} = \frac{\lambda_p^2 (\rho_2 - \rho_1) g}{4\pi^2} \quad (\text{III.23})$$

où σ_{critique} est la tension interfaciale critique, λ_p la longueur d'onde de perturbation, ρ_2 et ρ_1 sont respectivement les masses volumiques des fluides lourd et léger et g l'accélération de la pesanteur. Il a alors montré que le taux de croissance de l'instabilité de Rayleigh–Taylor diminue lorsque la tension interfaciale augmente, ce qui a pour conséquence de retarder cette instabilité. Cette instabilité secondaire est appelée instabilité de Kelvin Helmholtz (IKH).

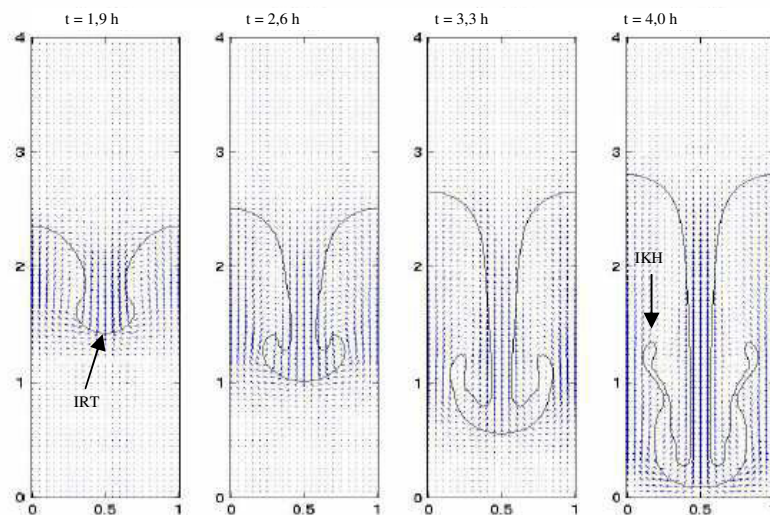


Figure III.39. Instabilité de Rayleigh–Taylor (IRT) couplée à l'instabilité de Kelvin–Helmholtz par Smolianski (2001).

III.2.1.4.b. Instabilités de Kelvin-Helmholtz

Deux écoulements de fluides parallèles à des vitesses différentes engendrent une zone de cisaillement. Une accélération locale de l'écoulement rapide au voisinage de la frontière des deux zones engendre un pincement des lignes de courant, et selon la relation de Bernoulli, une baisse de pression. Il s'en suit une force nette de pression transversale qui tend à accroître la poussée ascensionnelle et donc le déséquilibre. Il y a croissance de la perturbation qui tend à s'enrouler. On peut visualiser ce phénomène sur la photo suivante, avec des nuages composés de vapeur d'eau qui s'enroulent. Cette instabilité est appelée Kelvin Helmholtz.



Figure III.40. Exemples d'Instabilité de Kelvin-Helmholtz (IKH)

L'instabilité de Kelvin-Helmholtz (IKH) correspond à l'instabilité d'une couche de mélange entre deux courants de fluides de vitesses différentes. Elle est constituée d'une succession d'instabilités: apparition de tourbillons périodiques dans la couche de mélange (périodicité spatiale et temporelle), interactions entre tourbillons provoquant une modification locale de la périodicité, apparition de structures tridimensionnelles.

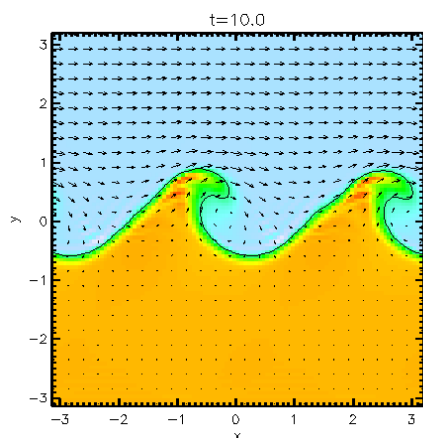


Figure III.41. Instabilités de Kelvin-Helmholtz simulées par Stanford university (2004).

Elle se retrouve également dans l'instabilité des sillages et dans l'instabilité des jets. Elle est à l'origine de la turbulence dans les écoulements où règne un cisaillement élevé. Le moteur de l'instabilité de Kelvin–Helmholtz est la différence de l'inertie entre fluides. En revanche, la viscosité a tendance à stabiliser l'écoulement. Ces instabilités peuvent donc être corrélées au nombre de Reynolds.

III.2.1.3.c. Instabilités de Rayleigh

Il est à noter que l'instabilité de RT ne doit pas être confondue avec l'instabilité de Rayleigh d'un liquide propulsé en jet. Cette dernière instabilité se produit à cause de la tension superficielle, qui tend à casser le jet cylindrique en gouttelettes ayant le même volume mais une surface plus élevée.

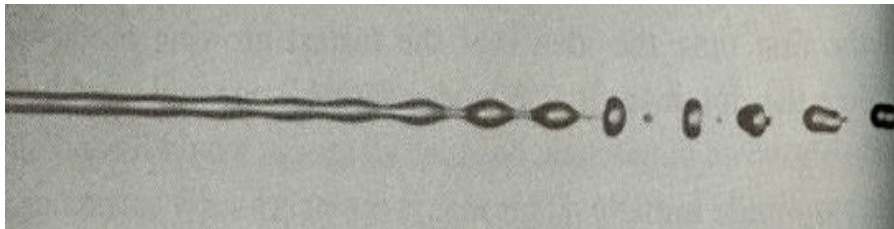


Figure III.42. *Instabilités de Rayleigh*

III.2.1.4. Traversée d'une interface liquide–liquide par une inclusion

Dans la littérature, peu d'études ont été publiées sur la traversée d'une interface liquide–liquide par une inclusion. Les études existantes concernent principalement le cas de la coalescence d'une goutte ou d'une bulle avec l'une des phases situées de part et d'autre de l'interface.

Le phénomène de la traversée d'une interface liquide–liquide par une inclusion peut être décrit par les étapes suivantes :

- ① Ascension de la particule dans le premier fluide.
- ② Arrivée de la particule à l'interface.

Lorsque la particule atteint l'interface, elle peut :

- ③ soit rester piégée dans l'interface liquide-liquide ;
- ④ soit pénétrer dans la phase légère sans entraîner de phase 1 dans son sillage ;
- ⑤ soit pénétrer dans la phase légère en entraînant de la phase 1 dans la phase 2.

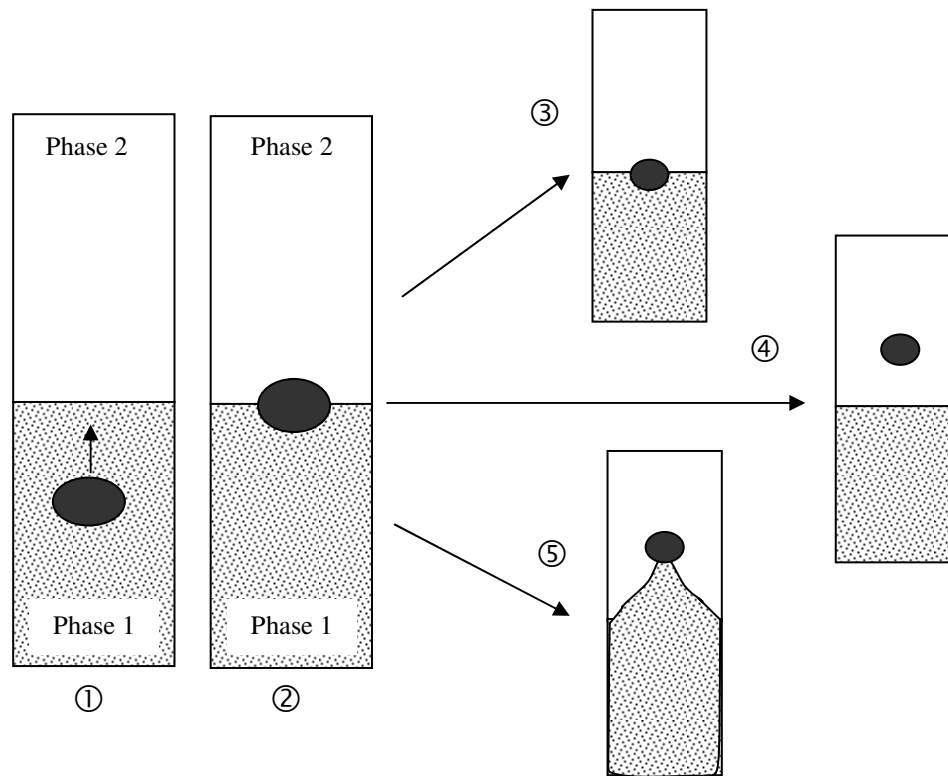


Figure III.43. Différents comportements d'une particule en ascension dans un bain composé de deux phases liquides stratifiées.

Dans le cas où la particule entraîne du liquide dans son sillage, cas ⑤, il s'ensuit :

- ⑥ Drainage progressif du film séparant la particule et l'interface,
- ⑦ Rupture progressive du film entre l'inclusion et l'interface,
- ⑧ Ascension de l'inclusion dans le liquide 2.
- ⑨ Retour du film liquide 1.

Greene *et al.* (1988) ont étudié expérimentalement ces différents comportements dans le but de proposer des critères sur le volume de la particule pour prédire le passage de celle-ci. Pour établir ce critère, ils ont supposé que la particule est soumise seulement à la force de

flottabilité qui tend à la faire monter et à la force de tension de surface qui tend à la retenir dans l'interface, les forces d'inertie et de viscosité sont ici négligées. Le critère prédit le passage de la particule sur l'interface si son volume (unités S.I.) est supérieur à :

$$V_P = \left(\frac{2\pi \left(\frac{3}{4\pi} \right)^{\frac{1}{3}} \sigma_{12}}{(\rho_2 - \rho_P)g} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (III.24.)$$

Ils ont considéré qu'il y a entraînement lorsqu'une phase lourde se détache lors du passage de la particule et ont proposé un critère pour prédire ce phénomène. Comme précédemment seules les forces de tensions de surface et de flottabilité sont considérées et l'entraînement se produit si le volume V_P (unités S.I.) de la bulle est supérieur à :

$$V_P = \left(\frac{2\pi \left(\frac{3}{4\pi} \right)^{\frac{1}{3}} \sigma_{12} S}{\left(\rho_2 - \rho_P - \frac{S^{\frac{1}{3}}}{2} (\rho_1 - \rho_2) \right) g} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (III.25.)$$

où S est une fonction qui représente le rapport entre le diamètre de la projection de la particule sur la surface au repos et celui de la sphère de volume équivalent :

- $S=1$ pour une particule sphérique
- $S>1$ pour une particule déformée en calotte sphérique

Greene *et al.* observent pour certains couples de liquides un volume critique inférieur à celui du critère mais les écarts observés restent toutefois très raisonnables.

III.2.1.4.a. Cas d'ascension d'une bulle ou une goutte

Darwin (1953) a étudié le volume de fluide transporté par un corps rigide ascendant à travers une interface liquide-liquide, en fonction de son volume. Le déplacement de fluide derrière la bulle provoque l'abaissement du niveau de l'interface. Ce phénomène est appelé "*reflux*", tandis que le fluide transporté par le corps, est désigné par le terme "*drift*". Le volume de reflux est donc égal à la somme des volumes du fluide déplacé et du corps. La hauteur de déplacement de l'interface peut alors être estimée, connaissant la section de la colonne à bulle. En se basant sur les résultats de Darwin, Lighthill (1956) a pu calculer ce « drift » et aussi tabuler les champs de vorticités dans le sillage de la sphère.

Cependant, la description de Darwin n'est pas facilement applicable, comme l'ont mentionné Weber et Bhaga (1982), Bataille *et al.* (1991), car il est très difficile de tenir compte de la variation de la hauteur de l'interface. Lin et Slattery (1982) ont étudié la déformation de l'interface lors de l'approche d'une bulle ou d'une goutte. Ces auteurs ont proposé, pour le drainage du film, un modèle hydrodynamique simple qui ne tient pas compte des effets des forces de London-van der Waals et des forces électrostatiques. Plus tard, Chen *et al.* (1984) ont amélioré ce modèle en prenant en compte l'effet de ces forces.

Bush et Eames (1998) ont étudié expérimentalement la traversée d'une interface liquide-liquide par une bulle pour des nombres de Reynolds élevés. Ces auteurs ont ainsi pu décrire la distorsion de l'interface au passage de la bulle et estimer le volume du drift correspondant au liquide lourd entraîné par la bulle dans le liquide léger. Ils ont souligné la coalescence rapide des gouttelettes formées due à la grande pression à l'intérieur des gouttelettes résultant des effets de gravité et des tensions interfaciales. Manga et Stone (1995) ont étudié expérimentalement le passage d'une inclusion à travers une interface liquide-liquide à faibles nombres de Reynolds. Ces auteurs remarquent que la colonne de liquide entraîné par la bulle se brise en plusieurs gouttelettes et attribuent ce phénomène aux instabilités de surface de cette colonne de liquide. Greene *et al.* (1991) ont étudié expérimentalement la quantité de fluide lourd entraînée derrière la bulle en fonction des paramètres physiques comme les masses volumiques et les viscosités. Reiter et Schwerdtfeger (1992a et 1992b) ont observé le phénomène physique de la traversée d'interface par des bulles des différentes tailles sur différents systèmes liquide-liquide (eau-cyclohexane, mercure-eau et mercure-huile de silicone) comme le montre la figure III.44. A partir des différentes visualisations effectuées,

ils ont mesuré la hauteur de liquide entraîné, le temps de passage de la bulle à l'interface, le nombre et la taille des gouttelettes formées ainsi que leur vitesse de retombée. Plusieurs corrélations dérivées de ces résultats ont été établies mais leur domaine de validité étant faible, il est difficile de comparer ces résultats avec les autres résultats disponibles issus de la littérature.

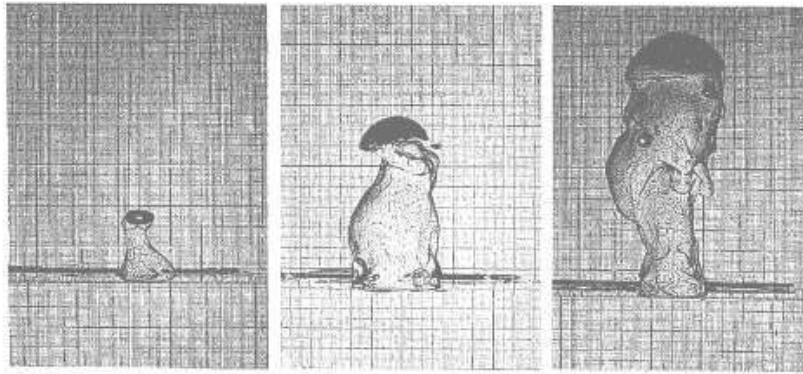


Figure III.44. Influence de la taille de la bulle lors de la traversée d'une interface composée d'eau et de cyclohexane (Reiter et Schwerdtfeger, 1992a).

Kemiha (2007) a étudié la traversée d'interfaces par des bulles pour des interfaces composées d'eau, d'Emakarox et de PAAM comme phase lourde et d'huile de silicone pour la phase légère comme le montre la figure III.45. La position de la bulle en fonction du temps a été suivie et différentes propriétés en ont été déduites. Le temps de passage de la bulle à l'interface augmente logiquement avec la diminution de la taille de la bulle.

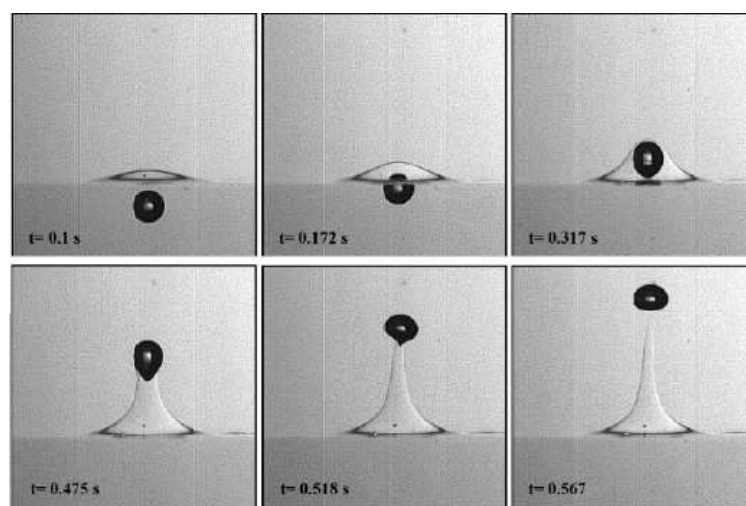


Figure III.45. Passage d'une bulle de 5mm sur une interface composé de HV45 65% et d'huile de silicone 100 par Kemiha et al. (2007).

Une étude par PIV a été entreprise pour visualiser le passage d'une bulle dans une interface composée de PAAm et d'huile de silicone, mais les résultats obtenus sont souvent inexploitable du fait de la difficulté du traçage des deux liquides, en particulier la sédimentation rapide du traceur dans la phase huileuse. Néanmoins, il a été possible de visualiser le fait que l'interface freine la progression du sillage négatif de la bulle qui ne progresse pas dans la partie du fluide entraînée par la bulle.

Du côté de la simulation, Kemiha *et al.* (2007) ont simulé par l'approche VOF, la traversée de l'interface par une bulle, comme le montre la figure III.46.

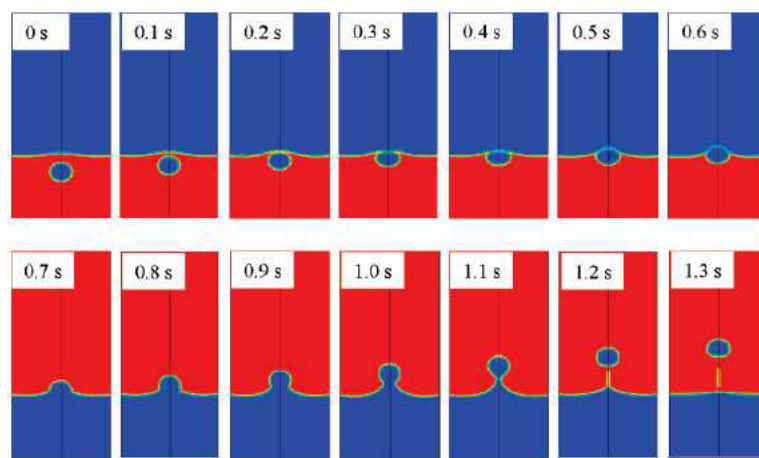


Figure III.46. Résultats typiques de la simulation par la méthode VOF d'une bulle de 4 mm de diamètre traversant le système Emkarox 65%-Huile de silicone 100 par Kemiah *et al.* (2007).

Ils ont constaté que les allures globales des courbes numérique de la position de la bulle en fonction du temps sont en accord avec l'expérience (erreur inférieure à 25%). Le temps de passage et l'étirement sont sous estimés par la simulation (erreur supérieure à 50%).

Shopov et Minev (1992) ont étudié numériquement et en milieu newtonien le passage d'une bulle à travers une interface liquide-liquide pour des nombres de Reynolds faibles et moyens. Ils se sont intéressés à l'effet de la forme initiale de la bulle sur l'évolution de la déformation de l'interface avant la traversée de la bulle, en considérant deux formes initiales de bulles : sphérique et allongée. Ils ont utilisé la méthode des éléments finis pour la résolution numérique des équations de Navier–Stokes et l'approche lagrangienne pour l'intégration temporelle. En considérant les forces inertielle, gravitationnelle, visqueuse et interfaciale, ils

ont conclu que la forme initiale de la bulle n'avait pas d'influence prononcée ou directe sur la déformation de l'interface.

Lapuerta (2006) s'est intéressé à la simulation de la traversée de bulle dans des bains stratifiés dans le but de simuler un hypothétique accident majeur dans un réacteur à eau sous pression. Car dans ce cas précis la dégradation du cœur du réacteur peut produire un bain stratifié, traversé par un flux de bulles. Afin de modéliser ce phénomène, il ont utilisé un modèle de Cahn-Hilliard/Navier-Stokes triphasique, et ont simulé les données expérimentales de Greene *et al.* dans les cas ③, ④ et ⑤ de la figure III.43. Un excellent accord a été observé comme l'illustre la figure III.47.

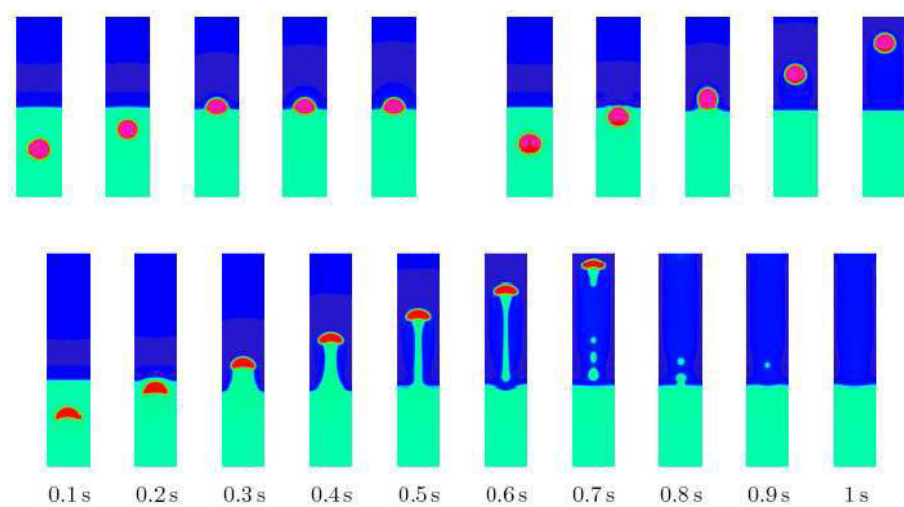


Figure III.47. Résultats de la simulation de la traversée d'une interface par le modèle de Cahn-Hilliard/Navier-Stokes triphasique par Lapuerta (2006).

Sur le plan numérique et théorique, d'autres travaux ont été effectués dans le domaine concernant la déformation de l'interface ; on citera notamment ceux de Lee et Leal (1982), Chi et Leal (1989), Eames et Duursma (1997) et Manga et Stone (1995).

Des expériences menées par Mohamed-Kassim et Longmire (2004) sur la coalescence à une interface liquide-liquide d'une goutte de liquide lourd ont montré que le drainage de liquide qui se produit avant la rupture est essentiellement dû aux forces liées à la tension de surface. Après la rupture du film entre la goutte et l'interface, la coalescence se produit très rapidement à cause de l'excès de pression à l'intérieur de la goutte, conséquence des effets gravitationnels et de tension de surface. Il apparaît que le phénomène de drainage est dans la majorité des cas dissymétrique.

III.2.1.4.b. Cas de sédimentation d'une sphère rigide

Il existe très peu d'études relatives à la traversée d'une sphère solide sur une interface, la plupart d'entre elle se focalisent sur les phénomènes de coalescence intervenant après la rupture (Jones *et al.*, 1978 et Greene *et al.*, 1991) ou encore sur le déplacement de particules au voisinage de l'interface (Danov *et al.*, 1978).

Hartland *et al.* (1970) ont étudié la traversée d'une interface par des sphères rigides de densité homogène et non homogène. Ils ont remarqué que les sphères de densité non homogène avaient tendance à prendre un mouvement de rotation à l'approche de l'interface. Ce phénomène de rotation à l'interface a pour conséquence de rendre le drainage du liquide entre la sphère sur l'interface dissymétrique. Ces auteurs ont ajouté que la présence d'agents tensioactifs réduisait la vitesse de rotation, rendant le drainage plus symétrique.

Maru *et al.* (1971) ont étudié, à l'aide d'une caméra, la sédimentation d'une sphère rigide à travers une interface liquide-liquide pour différents couples de liquides. Ils ont établis une corrélation afin de prévoir le rayon critique au-dessous duquel la sphère reste coincée et suspendue à l'interface. Leurs résultats sont en accord avec les corrélations de Greene *et al.* (Eqs. III.24 et III.25). Lorsque la sphère arrive à traverser l'interface, elle laisse derrière elle une colonne de liquide léger. Le volume de cette colonne est proportionnel au diamètre de la sphère et inversement proportionnel à la tension interfaciale et à la viscosité de la phase légère. La sphère accélère d'abord au cours de sa chute jusqu'à la rupture de cette colonne de liquide puis sa vitesse se stabilise entraînant avec elle une partie du fluide léger. La distance entre l'interface et le lieu de rupture est inversement proportionnelle à la tension interfaciale. Après rupture du film, des instabilités apparaissent dans la colonne de liquide durant sa remontée.

Pitois *et al.* (1999) ont étudié la traversée d'interfaces de différents couples de liquides, dont le rapport des viscosités est supérieur à 1000, par des sphères de diamètres compris entre 1 et 2,5 mm (Figure III.48).

Ils ont observé deux régimes différents de rupture selon les valeurs du nombre de Bond. Ils ont également montré que la durée de la traversée de l'interface par la sphère et le volume de fluide drainé varient proportionnellement à $1/\ln(Bo)$ et $\ln(Bo)$ respectivement.

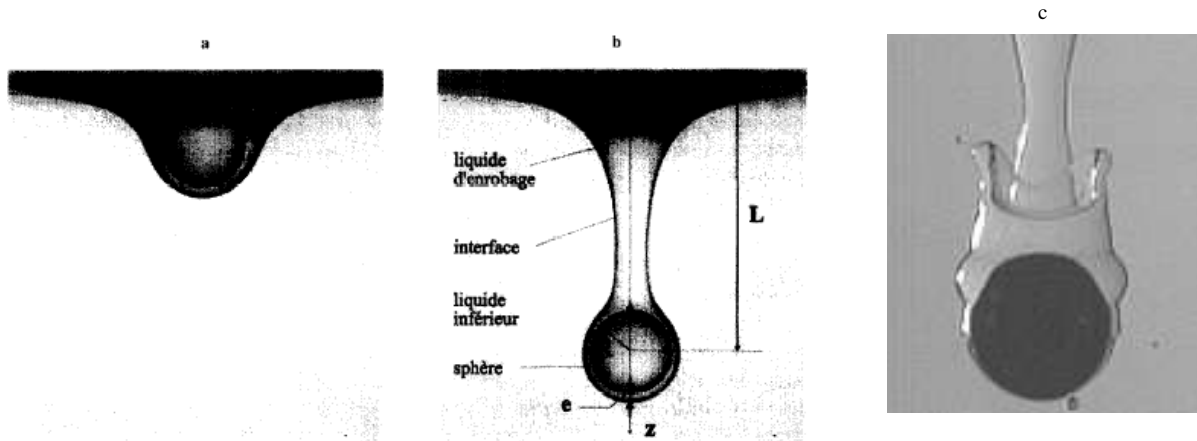


Figure III.48. (a) et (b) Passage d'une sphère de 5mm sur une interface composée d'eau et d'huile PDMS (liquide supérieur) de 1 Pa.s par Pitois et al. (1999). (c) Instabilités d'écoulements observées par Kemiha (2006).

Du côté de la simulation, Geller *et al.* (1986) ont étudié numériquement l'approche d'une sphère rigide sur une interface liquide-liquide déformable en négligeant les effets inertiels. Le déplacement d'une sphère à une vitesse constante a été analysé pour différents rapports de viscosité, masse volumique et tension interfaciale entre les deux phases. Deux modes distincts de déformation d'interface ont été développés : un mode où on observe un drainage du liquide de la phase légère dans la phase lourde et un autre où la sphère ne franchit pas l'interface comme Greene *et al.* (1991) l'ont identifié par la suite.

Kemiha (2006) a mis en évidence la présence d'instabilités de surface comparables aux instabilités de Rayleigh–Taylor et Kelvin–Helmholtz dans certains systèmes liquide–liquide. Un critère global permettant de définir les conditions d'apparition de telles instabilités a été élaboré en fonction du rapport des nombres de Morton des deux phases (ou le rapport des densités et viscosités) et le nombre de Reynolds dans la phase aqueuse. Ces instabilités apparaissent ainsi pour $Mo_1/Mo_2 > 10^7$, $Re_1 > 450$ et $\gamma/\kappa > 20$.

III.2.2. Traversée d'une interface liquide-liquide par une bulle

Dans cette partie du chapitre, nous nous intéressons à l'ascension et au comportement d'une bulle à la traversée d'une interface de deux liquides constitués d'une phase aqueuse et d'une phase huileuse. Une étude expérimentale réalisée à l'aide de la caméra rapide sera présentée dans un premier temps ; elle sera suivie d'une étude PIV.

III.2.2.1. Choix des systèmes liquide-liquide étudiés

Afin de mettre en évidence la cinétique de la traversée d'une bulle d'air à travers une interface liquide-liquide et les différents phénomènes associés, nous avons utilisé plusieurs fluides newtoniens, pour la phase huileuse (huile de silicone 10, 50 et 100) et pour la phase aqueuse (Emkarox 50 et 65% massique). Il faut donc s'assurer que pour ces fluides, les bulles ne resteront pas piégées à l'interface. Grâce à la relation (III.23) donnée par Greene *et al.* (1988), les calculs de la taille critique de la bulle permettant d'obtenir une traversée ont montré qu'il suffisait de prendre des bulles d'un diamètre supérieur à 2 mm. De plus, afin de réaliser une étude PIV, nous nous limiterons à des bulles de 15 mm de diamètre, car au-delà de cette taille, des instabilités et des dissymétries de l'écoulement apparaissent.

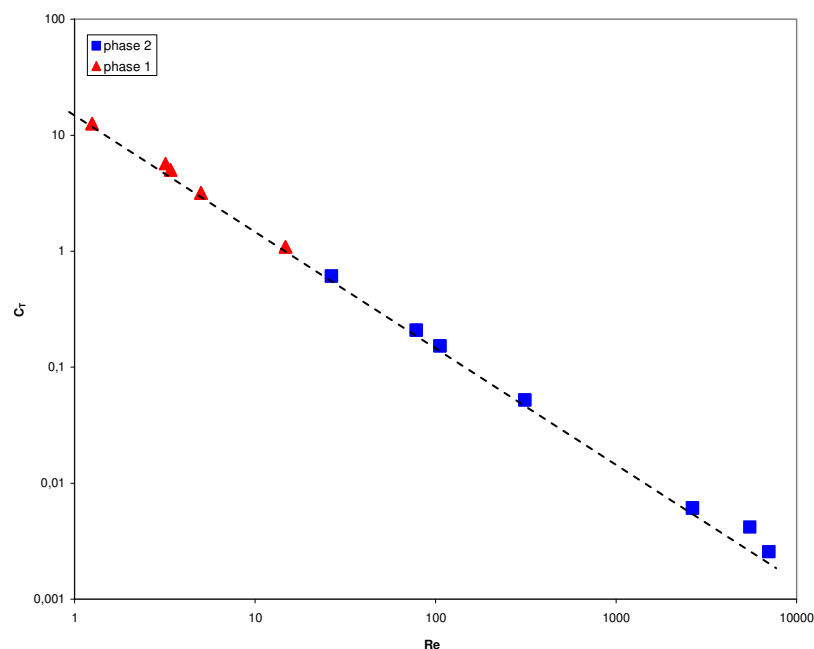


Figure III.49. Evolution du coefficient de traînée en fonction du nombre de Reynolds dans les deux phases pour des bulles ayant atteint leurs vitesses terminales. Phase 1 = phase lourde et phase 2 = phase légère.

Dans cette étude, nous choisissons par convention, la phase 1 pour la phase avant la traversée et la phase 2 la phase suivant la traversée. Pour les bulles, la phase 1 est donc la phase lourde et la phase 2 la phase légère. Les vitesses terminales ascensionnelles des bulles sont déterminées au moyen de la caméra rapide et le coefficient de traînée est reporté sur la figure III.49, montrant une excellente concordance entre l'expérience et la prédiction théorique en écoulement laminaire.

III.2.2.2. Présentation des résultats

Les images reportées sur la figure III.50 illustrent une séquence obtenue lors de l'ascension d'une bulle ayant un diamètre équivalent de 7 mm à travers l'interface formée par le couple de liquides 65% Emkarox–huile de silicone 100. On remarque que la bulle qui a une trajectoire rectiligne dans les deux fluides visqueux, entraîne, à son passage, une colonne du liquide lourd dans la phase légère. La première rupture entre la bulle et l'interface a lieu au milieu de la colonne liquide drainée avec formation de gouttelettes de solution d'Emkarox dans l'huile de silicone. La bulle poursuit ensuite librement son ascension dans l'huile de silicone en entraînant un petit volume d'Emkarox dans son sillage. La rupture finale se produit suite au drainage progressif de ce volume d'Emkarox entraîné par la bulle dans l'huile de silicone.

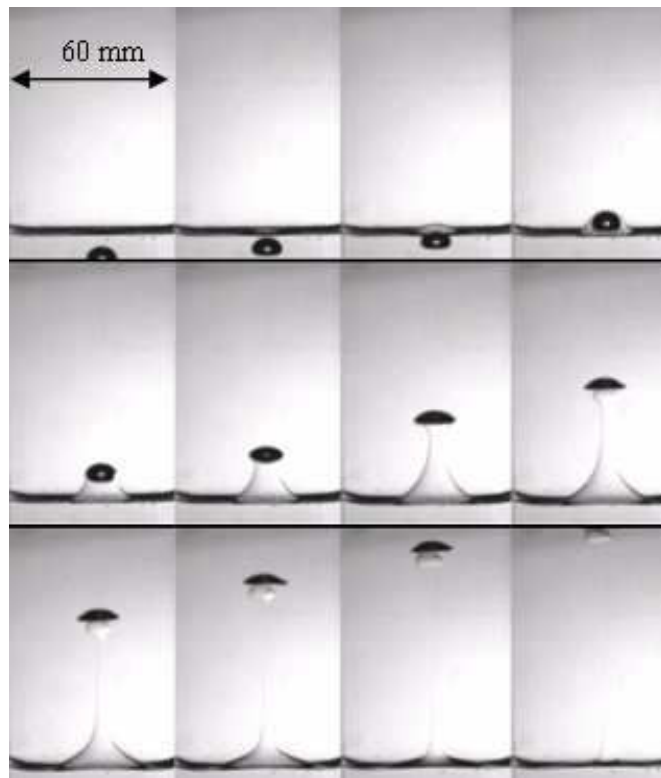


Figure III.50. Traversée à l'interface 65% Emkarox–huile de silicone 100

On notera que la traversée est parfaitement axisymétrique durant toutes ces étapes, même après la première rupture. On notera par ailleurs que la bulle, qui était initialement de forme calotte sphérique dans la solution d'Emkarox, prend finalement, lors de son ascension dans la phase huileuse et après la rupture du film, une forme ellipsoïdale. Ce même scénario de traversée est observé dans le cas de l'interface formée par le couple Emkarox 50% massique - huile de silicone présentée en annexe A3 et également pour les interfaces composées de Emkarox 65%/huile de silicone. Les différentes caractéristiques du phénomène, en particulier le temps de passage et la longueur d'étirement de l'interface seront abordées de manière détaillée plus loin dans ce chapitre afin de comparer les différents systèmes étudiés.

III.2.2.3. Paramètres influençant la traversée de l'interface liquide-liquide

Pour mettre en évidence la cinétique de la traversée, notamment le changement du régime d'écoulement de la bulle durant le passage entre les deux phases, nous avons suivi l'évolution de la position de la bulle obtenue durant la traversée de l'interface.

III.2.2.3.a. Effet du diamètre de la bulle

L'évolution de la position de la bulle en fonction du temps reportée sur la figure III.51 pour deux tailles de bulles différentes, montre un ralentissement à l'interface plus important et prévisible dans le cas des petites bulles.

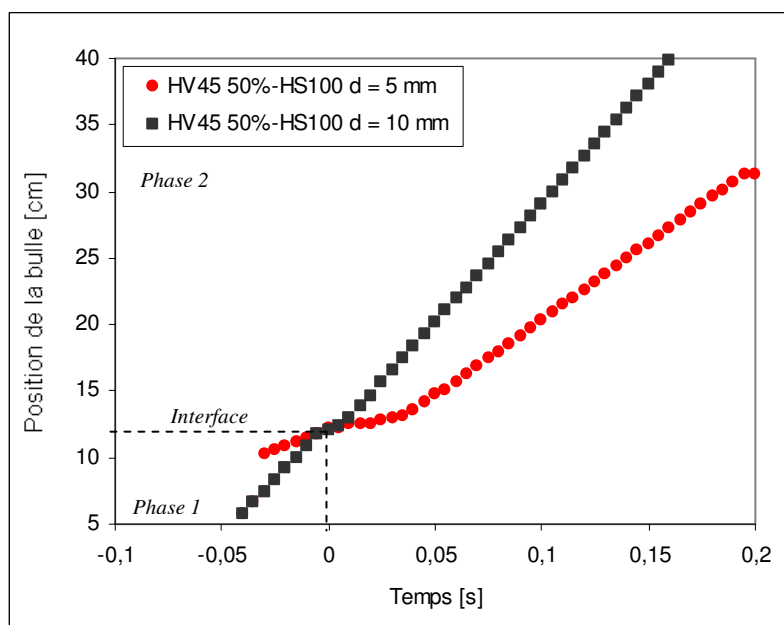


Figure III.51. Evolution de la position de bulles de 5 et 10 mm lors de la traversée d'un système 50% Emkarox/silicone 100.

III.2.2.3.b. Effet du système liquide-liquide

Afin d'étudier l'influence de la nature de l'interface, nous avons suivi la traversée de bulles en utilisant différentes viscosités des phases légère et lourdes. Les figures III.52 et III.53 présentent l'évolution au cours du temps de la position de bulles de même diamètre équivalent lors de la traversée des interfaces obtenue avec les couples Emkarox 50%–silicone 10, Emkarox 50%–silicone 50 et Emkarox 50%–silicone 100 et la figure III.53 pour Emkarox 65%–silicone 100

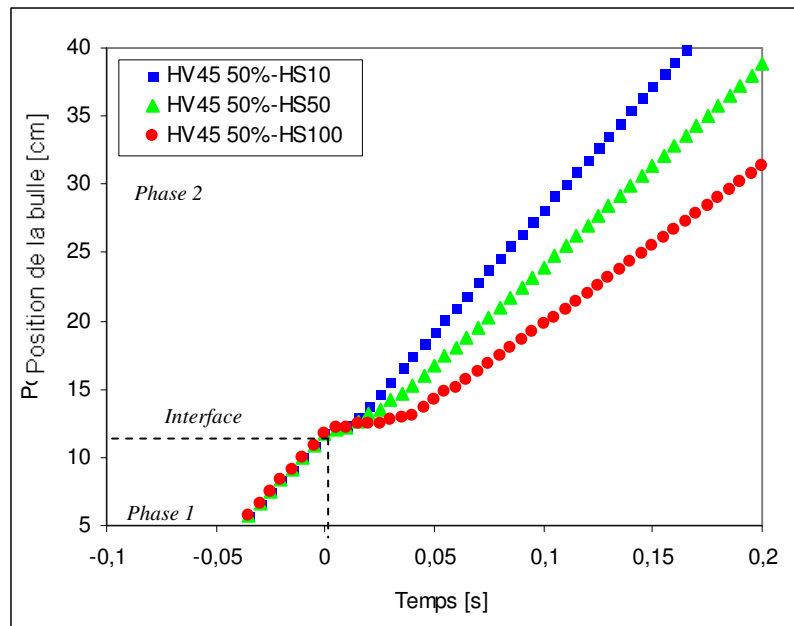


Figure III.52. Evolution de la position de bulles de 5 mm pour différentes phases légères.

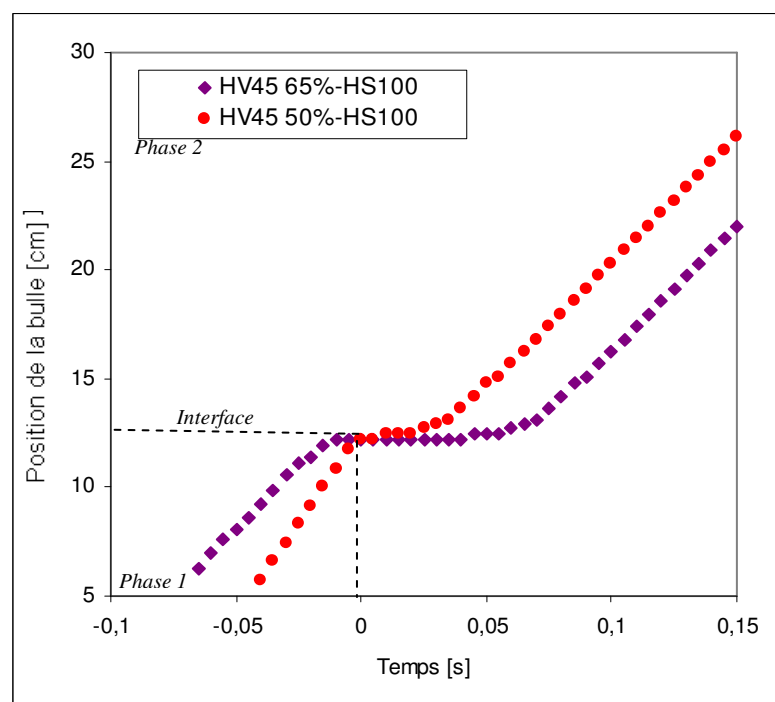


Figure III.53. Evolution de la position de bulles de 5 mm de diamètre pour différentes phases lourdes.

L'évolution de la position de la bulle en fonction du temps reportée sur les figures III.52 et III.53 pour trois phases légères et deux phases lourdes différentes, montre un ralentissement plus important lorsque la viscosité de la phase lourde ou légère est plus élevée. Cependant, l'étirement maximal $h_{\max}$ de l'interface, dont les valeurs sont reportées dans le tableau III.02 est comparable pour les différents systèmes Emkarox–silicone utilisés. Ceci montre que l'étirement dépend plus de la nature de l'interface.

En effet les propriétés physiques de l'interface jouent un rôle principal dans le processus de traversée de l'interface liquide-liquide par une bulle. Pour mettre en évidence cet effet, nous présentons dans le tableau III.02 les caractéristiques obtenues lors des traversées de différentes interfaces par des bulles de deux tailles différentes. La variation du temps de passage de la bulle à l'interface ainsi que la longueur d'étirement de l'interface obtenue dans les différents systèmes étudiés y sont également représentés en fonction de différents nombres adimensionnels décrivant le processus de traversée de l'interface.

Phase 1 : lourde	HV45 50 %						HV45 65 %					
Phase 2 : légère	HS10		HS50		HS100		HS10		HS50		HS100	
Diamètre de la bulle $\times 10^{-3}$ (m)	7,1	10,2	7,1	10,2	7,1	10,2	7,1	10,2	7,1	10,2	7,1	10,2
μ_1/μ_2	25		5		2,5		51,5		10,3		5,15	
ρ_1/ρ_2	1,089						1,105					
Tension interfaciale $\sigma_{12} \times 10^{-3}$ (N.m)	15,2		13,4		11,2		14,9		13,1		11,8	
Vitesse terminale de la bulle u_1 (m/s)	0,17	0,35	0,17	0,35	0,17	0,35	0,09	0,16	0,09	0,16	0,09	0,15
Vitesse terminale de la bulle u_2 (m/s)	3,9	7,209	0,78	1,6	0,39	0,8	3,9	7,2	0,78	1,6	0,39	0,8
Re_1	5,0	14,7	5,0	14,7	5,0	14,7	1,2	3,4	1,2	3,4	1,2	3,2
Re_2	2649	7037	106	312	26	78	2649	7028	106	312	26	78
Mo_1	0,87						15,33					
Mo_2	$1,76 \times 10^{-5}$		$8,03 \times 10^{-3}$		$9,65 \times 10^{-2}$		$1,76 \times 10^{-5}$		$8,03 \times 10^{-3}$		$9,65 \times 10^{-2}$	
Temps de passage t_p (s)	0,016	0,009	0,040	0,028	0,066	0,049	0,015	0,013	0,054	0,035	0,071	0,056
Temps caractéristique t_c (s)	0,0416	0,0292	0,0416	0,0292	0,0416	0,0292	0,0827	0,0627	0,0827	0,0627	0,0827	0,0668
Hauteur de la colonne h_{max} (m)	0,11	0,15	0,09	0,12	0,08	0,102	0,124	0,170	0,098	0,140	0,087	0,125

Tableau III.02. Différents paramètres agissant sur la traversée de l'interface.

Les nombres de Reynolds Re_1 , Re_2 correspondent respectivement à la phase aqueuse (1) et à la phase huileuse (2). σ_{12} est la tension interfaciale entre les deux liquides. Le tableau III.02 montre que l'influence du diamètre de la bulle est significative sur les temps de passage à l'interface pour les quatre systèmes liquide-liquide étudiés. On constate ainsi que ce temps

diminue avec l'augmentation de la taille de la bulle, ce qui peut être expliqué par l'augmentation des forces d'inertie et de poussée, principales forces motrices agissant sur la bulle. En ce qui concerne la longueur d'étirement de l'interface (h_{max}), les résultats montrent que l'influence de la taille de la bulle sur ce paramètre reste modérée.

III.2.2.3.c. Temps de passage à l'interface

Compte tenu du phénomène observé, nous avons tenté d'estimer le temps de traversée de l'interface par la bulle en nous basant sur les nombres adimensionnels susceptibles de faire intervenir les forces impliquées dans le processus de la traversée. Nous avons choisi les nombres de Reynolds et de Morton, bien que ces nombres concernent en fait d'avantage les écoulements diphasiques, alors que notre problème est triphasique. Les forces principales qui gouvernent le phénomène sont : les forces de viscosité, d'inertie et de tension de surface (superficielle et interfaciale).

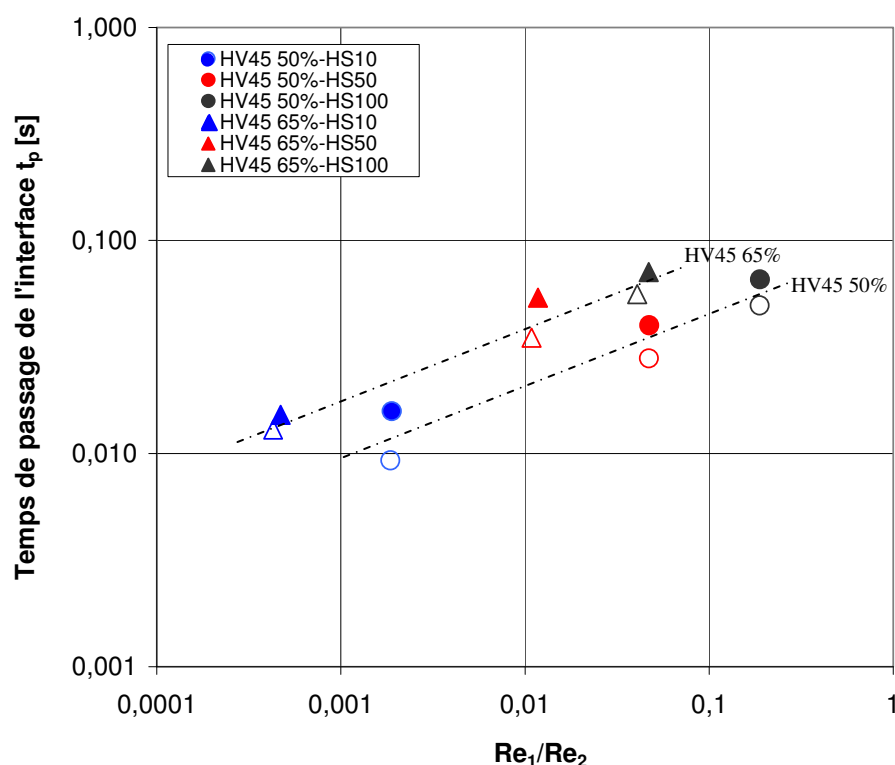


Figure III.54. Evolution du temps de passage mesuré pour les différents couples d'interface Emkarox/huile de silicone. Les points ouverts correspondent à des bulles de 10 mm de diamètre équivalent et les points fermés à des bulles de 7 mm de diamètre équivalent.

La figure III.54 illustre la variation du temps de passage des bulles dans les différents systèmes étudiés en fonction du rapport des nombres de Reynolds dans les deux phases (Re_1/Re_2). Pour les systèmes correspondant à une phase aqueuse identique, le temps de passage de la bulle augmente avec le rapport Re_1/Re_2 selon une loi de puissance. Pour un rapport donné de Re_1/Re_2 , ce temps de passage est plus grand lorsque la phase aqueuse est plus visqueuse. Ceci montre que cette dernière joue un rôle déterminant dans la rapidité du processus de traversée. Enfin, pour des systèmes liquide-liquide identiques, on retrouve le fait que le temps de passage est d'autant plus grand que la bulle est petite.

Afin de déterminer un paramètre permettant de rassembler tous les points expérimentaux, un nombre adimensionnel basé sur le temps de passage a été défini. Ce nombre correspond au rapport entre le temps de passage t_p et le temps caractéristique de l'écoulement dans la phase aqueuse t_c . Ce dernier est défini comme étant le temps nécessaire pour que la bulle parcoure une distance égale à son diamètre équivalent (Eq. III.26).

$$t_c = \frac{U_1}{d_{eq}} \quad (III.26)$$

La variation de ce nombre adimensionnel en fonction du rapport Re_1/Re_2 est présentée sur la figure III.54.

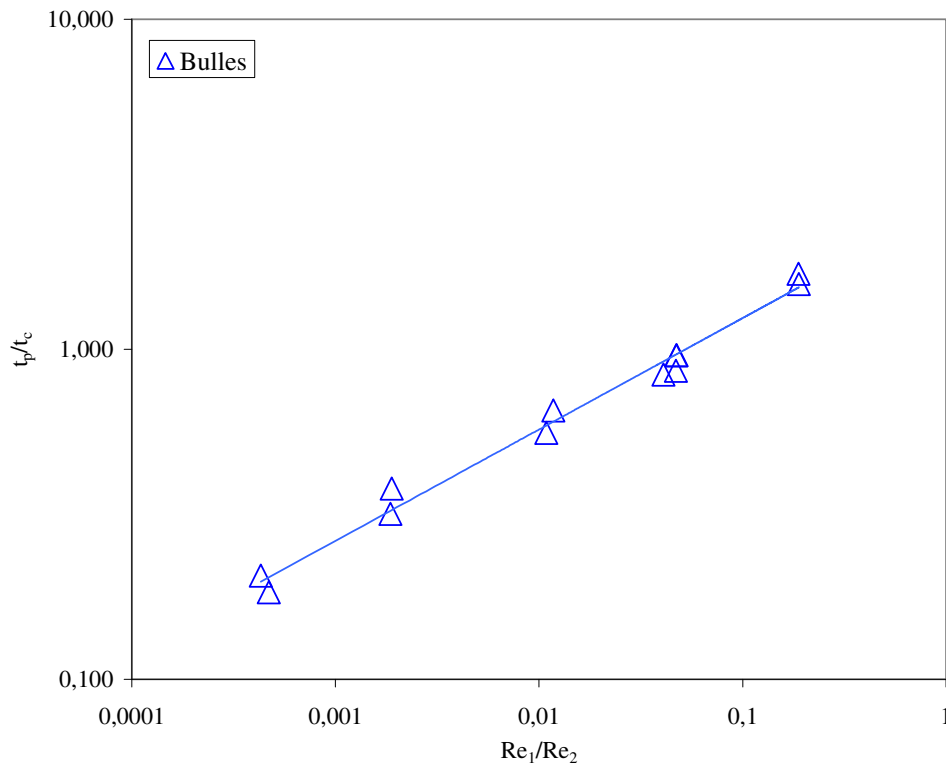


Figure III.54. Evolution du rapport t_p/t_c en fonction du rapport Re_1/Re_2 .

Nous constatons ainsi que le rapport adimensionnel t_p/t_c varie de façon similaire avec le rapport Re_1/Re_2 pour tous les systèmes étudiés. Cette figure montre une seule et unique tendance pour la variation de ce temps adimensionnel, selon la loi de puissance suivante :

$$\frac{t_p}{t_c} = 2,7 \left(\frac{Re_1}{Re_2} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (III.27)$$

$$Re_1/Re_2 \in [4,7 \times 10^{-4} - 1,9 \times 10^{-1}]$$

Bien que cette estimation reste empirique, elle donne néanmoins un ordre de grandeur relativement correct du temps de passage à l'interface, avec une erreur relative moyenne inférieure à 2%.

III.2.2.3.d. Longueur d'étirement de l'interface

Cette section est consacrée à l'influence du système liquide–liquide sur la longueur maximale d'étirement de l'interface durant la traversée d'une bulle.

La comparaison des valeurs de la longueur d'étirement de l'interface $h_{\max}$ présentées sur le tableau III.02 montre d'une part que pour des systèmes ayant la même phase aqueuse (lourde), cette longueur diminue globalement avec l'augmentation de la viscosité de la phase huileuse. D'autre part, elle augmente avec la viscosité de la phase aqueuse pour les systèmes ayant la même phase huileuse. Enfin, pour un système identique, la taille de la bulle a une influence modérée.

De même que précédemment pour le temps t_p de passage, il semble là encore intéressant d'introduire les nombres de Reynolds des deux phases pour représenter la longueur d'étirement de l'interface. Pour les systèmes correspondant à des phases aqueuses identiques (Figure III.56), la hauteur d'étirement diminue avec les rapports Re_1/Re_2 selon une loi de puissance. Pour un rapport donné de Re_1/Re_2 , la hauteur d'étirement est plus grande pour les systèmes dont la phase aqueuse est plus visqueuse. Ceci montre que la phase aqueuse joue encore une fois un rôle déterminant dans la rapidité du processus de traversée d'interface. Enfin, pour des systèmes identiques en tout point, on retrouve le fait que la taille de la bulle n'affecte pas, ou peu, la hauteur de fluide entraînée par la bulle.

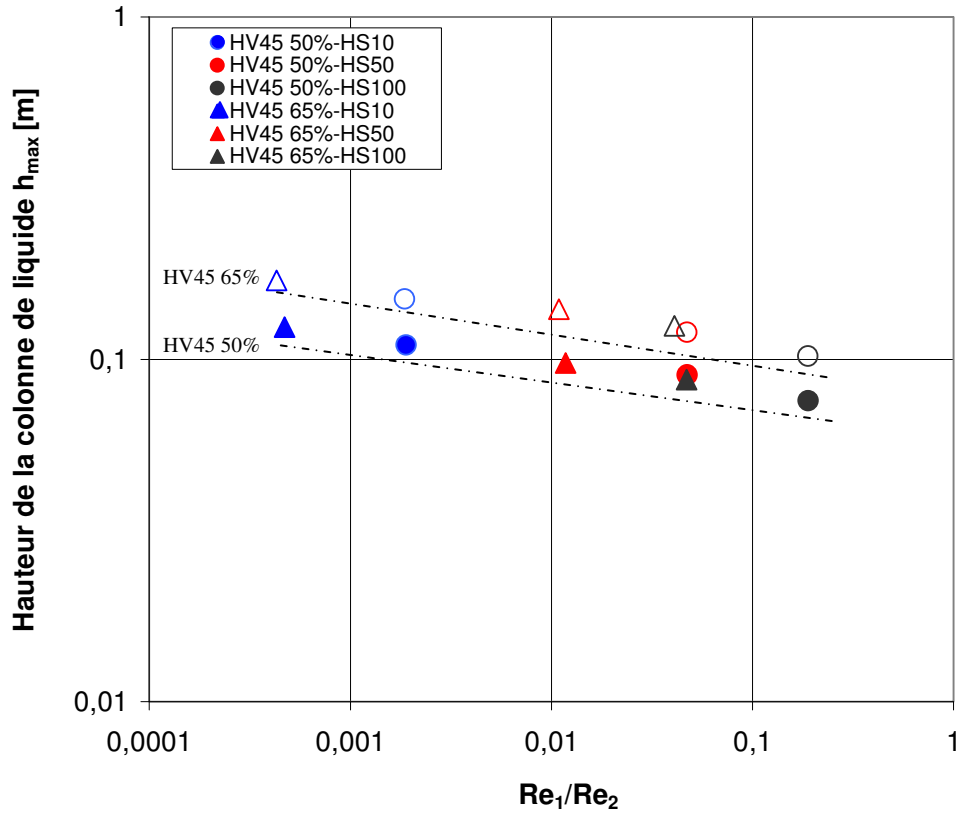


Figure III.56. Evolution de la hauteur maximale de fluide entraîné par le passage de la bulle pour différents couples d'interfaces Emkarox/huile de silicone. Les points ouverts correspondent à des bulles de 10 mm de diamètre équivalent et les points fermés à des bulles de 7 mm de diamètre équivalent.

Afin de tenter de rassembler tous les points expérimentaux, nous utilisons un nombre adimensionnel basé sur la hauteur d'étirement et le diamètre équivalent de la bulle h_{max}/d_{eq} . La variation de ce nombre adimensionnel en fonction du rapport Re_1/Re_2 est présentée sur la figure III.57 qui montre une seule et unique tendance pour la variation de ce paramètre adimensionnel, et ce, selon une loi de puissance. On obtient alors une relation de la forme :

$$\frac{h_{max}}{d_{eq}} = 9,4 \left(\frac{Re_1}{Re_2} \right)^{-0,07} \quad (III.28)$$

$$Re_1/Re_2 \in [4,7 \times 10^{-4} - 1,9 \times 10^{-1}]$$

Bien que cette estimation reste empirique, elle donne néanmoins un ordre relativement correct du temps de passage de l'interface, avec une erreur relative moyenne inférieure à 4%.

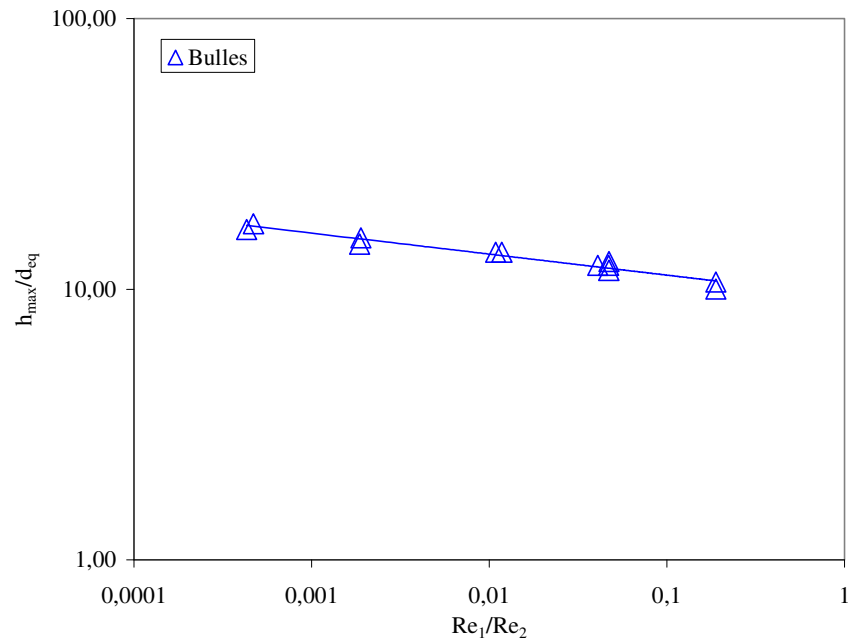


Figure III.57. Evolution du rapport h_{max}/d_{eq} en fonction du rapport Re_1/Re_2 .

III.2.2.4. Champs de vitesse autour d'une bulle à la traversée d'une interface

Nous avons réalisé des mesures de champs de vitesses autour d'une bulle à l'interface par la technique PIV, mais les résultats obtenus sont généralement inexploitable du fait de la difficulté du traçage des deux liquides. En particulier, la sédimentation rapide du traceur dans la phase huileuse sur l'interface ne facilite pas l'obtention de champs de vitesses souhaitables. De plus, la réflexion due à l'interface ainsi que son ombre et celle de la bulle sont des facteurs qui diminuent la précision de la mesure de vélocimétrie, comme l'illustre l'image III.58.

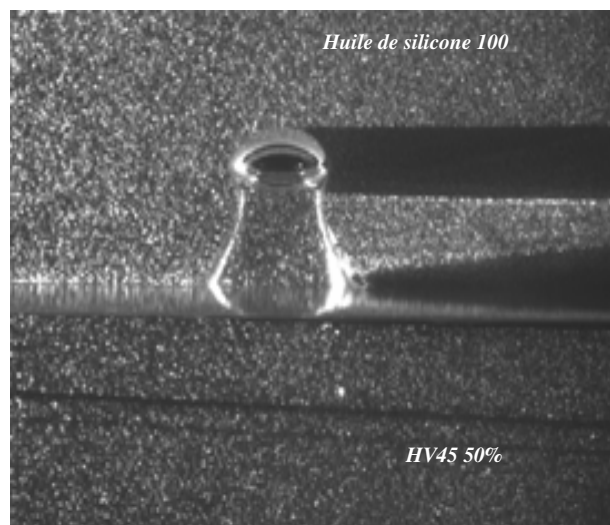


Figure III.58. Exemple d'image obtenue par la caméra de la PIV illustrant le problème de réflexion lumineuse aux interfaces et d'ombres sur la partie droite de l'image.

On pourra toutefois noter qu'en prenant une taille de bulle moyenne, les problèmes d'ombres sont modérés et en utilisant une huile visqueuse, les problèmes de sédimentation sont réglés. Il est alors possible dans ce cas d'obtenir des champs de vitesses exploitables, notamment dans le cas du système Emkarox–silicone 100 présenté ci-dessous.

La figure III.59 montre les champs de vitesses d'une bulle ($d_{eq} = 7$ mm) durant la traversée de l'interface constituée par le système Emkarox 50%–huile de silicone 100. La forme de la bulle, la position de l'interface ainsi que l'étirement, sont reportés sur les figures de champs de vitesses. L'intégralité de la traversée est consignée en annexe A4

Au cours de la montée de la bulle dans la phase lourde, loin de l'interface, aucun changement n'est observé dans la phase légère tant que la bulle reste éloignée. On observe lors de cette ascension, des champs de vitesses similaires en tout point à ceux observés lors de la formation des bulles (c'est à dire, un front, un sillage primaire et secondaire et deux boucles de circulations latérales Fan *et al.* 1990). Lorsque la bulle s'approche de l'interface liquide-liquide, celle-ci se déforme sous l'effet du front de la bulle. Lorsque la bulle traverse l'interface liquide-liquide (fig. III.59a), elle entraîne derrière elle une colonne de liquide lourd. On observe sur le champ de vitesse, une conservation du sillage et des boucles de circulation dans la phase inférieure alors que la bulle poursuit son ascension dans l'autre phase en développant un front et des boucles de circulation dans le fluide léger.

On observe par la suite un amincissement progressif du film liquide entraîné (fig III.59b,c et d), caractérisé par un écoulement dans le sillage de la bulle opposé au déplacement de la bulle. Ceci correspond au retour du liquide lourd vers l'interface lors de l'amincissement. A mesure que la bulle monte dans la phase légère, le film continue à s'amincir. Le liquide lourd revenant à l'interface engendre la création de boucle de circulation à la base de la colonne de liquide entraîné. Ce dernier champ de vitesse (fig. III.59d) est obtenu avant la rupture de ce film. Des gouttelettes de liquide lourd se forment lors de la rupture du film. Ensuite, la bulle continue son ascension dans le fluide léger en développant un champ de vitesse similaire à celui observé dans la phase lourde, et le film de liquide lourd entraîné revient progressivement vers l'interface. La colonne de liquide lourd tombe dans la phase lourde et les gouttelettes formées lors de la rupture se rassemblent et coalescent à l'interface.

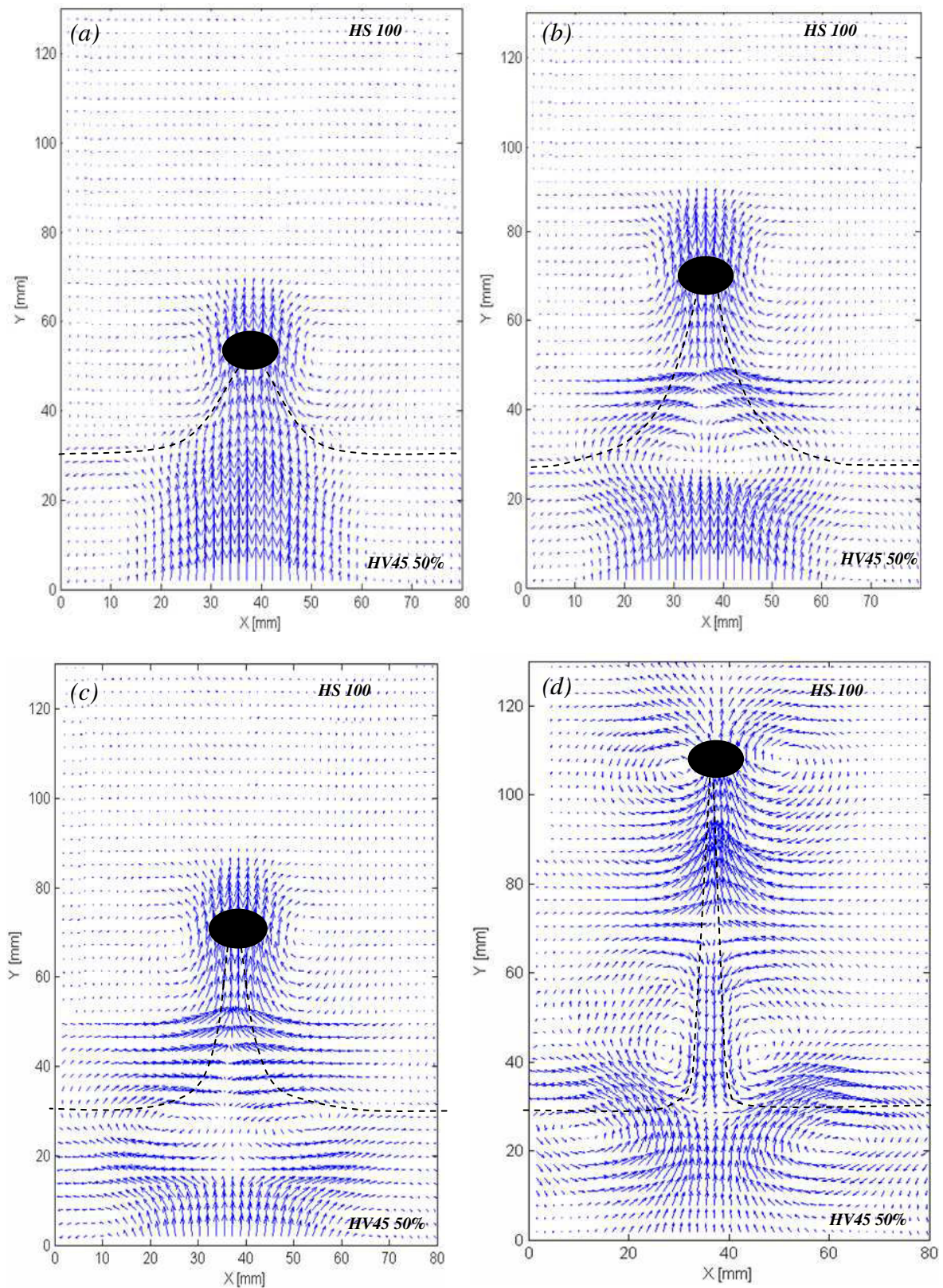


Figure III.59. Evolution des champs de vitesses autour d'une bulle de 7 mm de diamètre équivalent traversant une interface Emkarox 50%–huile de silicone 100. $d_{eq} = 7$ mm.

Afin de comprendre et de visualiser l'importance de la viscosité, les champs de vitesse sont étudiés pour deux interfaces différentes. La figure III.60 montre la différence entre les champs de vitesse obtenus en utilisant deux viscosités différentes pour la phase légère. On observe logiquement que les boucles latérales de recirculation ainsi que le déplacement du fluide occupe une place plus importante lors de la traversée de l'interface avec notamment une hauteur d'étirement plus importante lorsque la viscosité de la phase légère est plus faible.

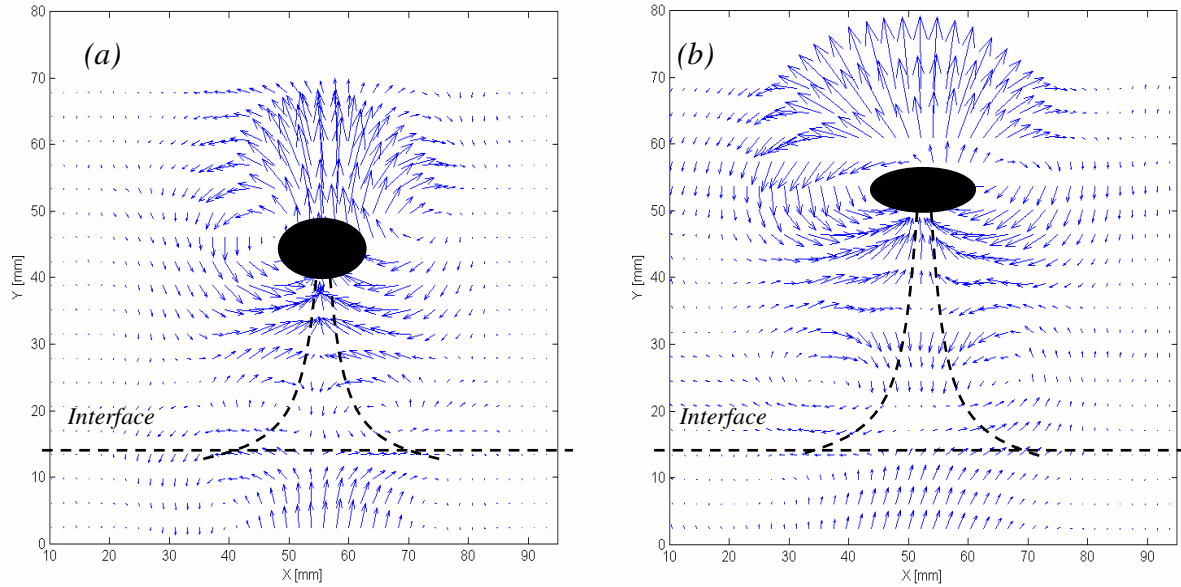


Figure III.60. Champs de vitesses autour d'une bulle de 7 mm de diamètre équivalent traversant une interface (a) HV45 50% / HS 100. (b) HV45 50% / HS10.

D'après ces champs de vitesses, on constate que l'effet de l'interface a un rôle majeur sur l'écoulement du liquide autour d'une bulle qui traverse une interface. En effet, l'interface freine la progression de la bulle, et on observe le sillage de la bulle ainsi que les boucles de circulation dans la phase inférieure lorsque la bulle traverse l'interface. De plus, les champs de vitesse permettent de visualiser le mécanisme d'amincissement du film de liquide jusqu'à sa rupture.

La traversée de l'interface a pu être étudiée avec les fluides disponibles au laboratoire, pour des rapports de Reynolds $Re_1/Re_2 \in [4,7 \times 10^{-4} - 1,9 \times 10^{-1}]$. Afin d'élargir cette gamme, la traversée de l'interface par des sphères a été envisagée en utilisant les mêmes fluides, ce qui a permis de travailler dans l'intervalle plus étendu de $Re_1/Re_2 \in [5 - 2,6 \times 10^3]$.

III.2.3. Traversée d'une interface liquide-liquide par une sphère solide

De manière générale, les expériences se déroulent en lâchant des sphères dans la colonne contenant deux liquides immiscibles. Pour cela, le tube placé en haut de la colonne permet à la fois de guider la sphère au centre de la colonne et d'éviter l'entraînement de la moindre petite bulle derrière la sphère. Le tube a une dimension légèrement supérieure à celle des sphères et plonge dans le fluide léger. Les sphères ainsi lâchées dans la phase légère avec une vitesse initiale quasi nulle, atteignent leur vitesse terminale de chute avant d'atteindre l'interface des deux liquides. Comme dans le cas de la bulle, plusieurs couples de fluides ont été considérés, constitués d'une solution d'Emkarox pour la phase lourde et d'huile de silicone pour la phase légère. Des sphères rigides en verre ou en acier ont été utilisées comme phase dispersée. L'utilisation de fluides de différentes viscosités pour les deux phases permet ainsi d'agir sur le processus de traversée de l'interface par la sphère, en particulier sur le comportement dans la phase lourde. Nous nous intéresserons en particulier ici au temps de passage de la sphère lors de la traversée de l'interface et à la mesure de la hauteur de liquide léger entraîné par la sphère ; pour ce faire, des sphères en verre de 4 et 6 mm de diamètre sont utilisées, ce qui permet de se placer dans un domaine où il est impossible de visualiser les instabilités interfaciales de Rayleigh–Taylor ou de Kelvin–Helmholtz selon le critère établi par Kemiha (2006).

III.2.3.1. Présentation des résultats

Les images obtenues en considérant la traversée d'une sphère en verre de 6 mm de diamètre dans un système 65% Emkarox–huile de silicone 100 sont présentées sur la figure III.61. (D'autres systèmes sont présentés en annexe A4).

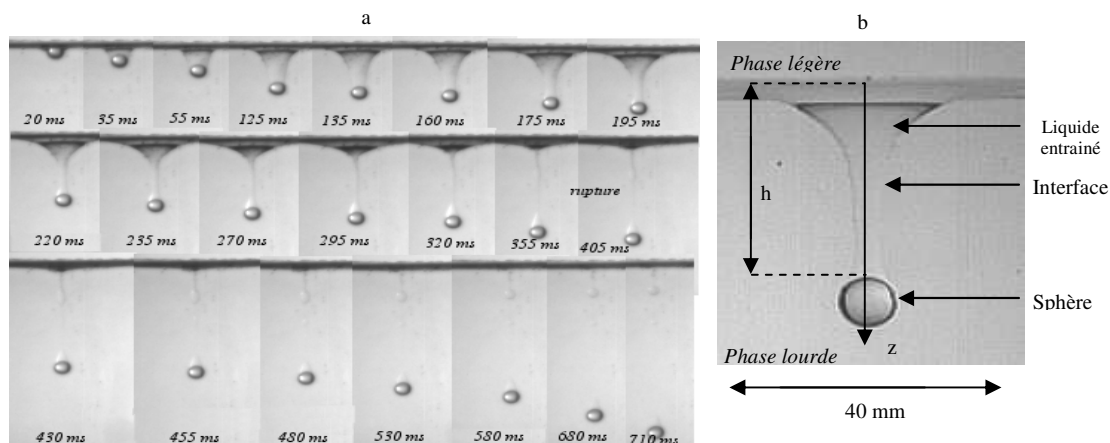


Figure III.61. Traversée de l'interface 65% Emkarox–huile de silicone 100 par une sphère de 6 mm

De même que pour les bulles, la sphère est d'abord ralentie à l'interface, puis accélère, entraînant derrière elle une colonne de liquide léger (huile de silicone dans l'exemple). On constate par ailleurs, dans la majorité des cas, que la colonne de fluide se rompt au milieu et que la sphère entraîne du liquide léger jusqu'au fond de la colonne.

On constate généralement que l'étirement de l'interface est symétrique et s'accompagne systématiquement de la formation d'une portion de liquide derrière la sphère après rupture du film. Les différentes étapes citées ci-dessus ont généralement été constatées pour les différents systèmes utilisés dans cette étude (voir en annexe A4).

III.2.3.2. Paramètres influençant la traversée de l'interface liquide–liquide

Afin de mettre en évidence les critères qui contrôlent la traversée de l'interface, nous présentons sur le tableau III.03, les caractéristiques hydrodynamiques de la traversée pour les différents systèmes présentés ci-dessus. Les vitesses terminales de chute des sphères mesurés suivent le régime de Stokes ($C_T = 24/Re$).

Phase 1 : lourde	HV45 50 %						HV45 65 %					
Phase 2 : légère	HS10		HS50		HS100		HS10		HS50		HS100	
Diamètre de la sphère en verre ×10 ⁻³ (m)	4,0	6,0	4,0	6,0	4,0	6,0	4,0	6,0	4,0	6,0	4,0	6,0
μ1/μ2	25		5		2,5		51,5		10,3		5,15	
ρ1/ρ2	1,089						1,105					
Tension interfaciale ×10 ⁻³ (N.m)	15,2		13,4		11,2		14,9		13,1		11,8	
Vitesse terminale de la sphère u ₁ (m/s)	0,254	0,570	0,254	0,570	0,254	0,570	0,100	0,224	0,100	0,224	0,100	0,224
Vitesse terminale de la sphère u ₂ (m/s)	5,48	12,32	1,10	2,46	0,55	1,23	5,48	12,32	1,10	2,46	0,55	1,23
Re ₁	4,2	14,1	4,2	14,1	4,2	14,1	0,8	2,7	0,8	2,7	0,8	2,7
Re ₂	2092	7060	84	282	21	71	2092	7060	84	282	21	71
Mo ₁	0,87						15,33					
Mo ₂	1,76×10 ⁻⁵		8,03×10 ⁻³		9,65×10 ⁻²		1,76×10 ⁻⁵		8,03×10 ⁻³		9,65×10 ⁻²	
Temps de passage t _p (s)	0,360	0,144	0,540	0,423	0,583	0,328	0,461	0,345	0,712	0,533	0,938	0,688
Temps caractéristique t _c (s)	0,0007	0,0005	0,0037	0,0024	0,0073	0,0049	0,0007	0,0005	0,0037	0,0024	0,0073	0,0049
Hauteur de la colonne de liquide h _{max} (m)	0,110	0,162	0,126	0,207	0,131	0,190	0,107	0,160	0,164	0,237	0,136	0,179

Tableau III.03. Différents paramètres agissant sur la traversée de l'interface par une sphère.

En observant les différents systèmes étudiés, plusieurs caractéristiques principales du phénomène de traversée d'une interface par une sphère rigide peuvent être constatées. On citera notamment:

- le ralentissement de la sphère à l'interface à cause des forces interfaciales qui s'ajoutent aux forces visqueuses résistant à la sédimentation de la sphère. Ce ralentissement démarre avec la déformation de l'interface, à l'approche de la sphère rigide de cette dernière ;
- l'étirement de l'interface dû à l'entraînement d'une colonne de liquide léger par la sphère en sédimentation et la formation d'une portion de liquide derrière la sphère.

Le tableau III.03 montre que l'influence du diamètre de la sphère est significative sur le temps de passage à l'interface pour les systèmes présentés. On constate ainsi que l'augmentation de la taille de la sphère réduit ce temps, ce qui peut être expliqué par l'augmentation des forces d'inertie, du poids et d'Archimède, principales forces motrices agissant sur la sphère. En ce qui concerne la longueur d'étirement de l'interface (h_{max}), nous estimons que l'influence de la taille de la sphère sur ce paramètre reste modérée.

III.2.3.2.a. Temps de passage à l'interface

La figure III.62 montre la variation du temps de passage des sphères dans les différents systèmes étudiés en fonction du rapport des nombres de Reynolds dans les deux phases (Re_1/Re_2). Comme le montre la figure III.62 pour les systèmes correspondant à des phases aqueuses identiques, le temps de passage de la sphère augmente avec le rapport Re_1/Re_2 selon une loi de puissance.

Comme dans le cas des bulles, ce temps de passage est plus grand pour les systèmes dont la phase aqueuse est plus visqueuse pour un rapport donné de Re_1/Re_2 . Ceci montre que la phase aqueuse joue un rôle déterminant dans la rapidité du processus de traversée de l'interface. Enfin, pour un système liquide-liquide donné, le temps est d'autant plus grand que la taille de la sphère est faible.

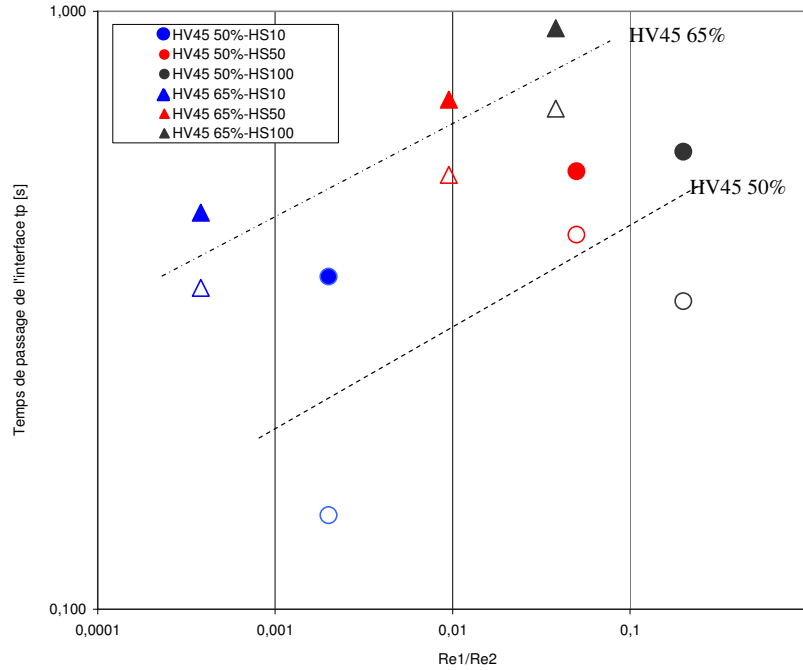


Figure III.62. Evolution du temps de passage mesuré pour les différents couples d'interface Emkarox/huile de silicone. Les points ouverts correspondent à des sphères de 6 mm de diamètre équivalent et les points fermés à des sphères de 4 mm de diamètre équivalent.

Afin de tenter de regrouper tous les points expérimentaux, nous utilisons, comme dans le cas des bulles, le rapport adimensionnel t_p/t_c avec :

$$t_c = \frac{U_2}{d_{eq}} \quad (III.26)$$

La variation de ce nombre adimensionnel en fonction du rapport Re_1/Re_2 est présentée sur la figure III.63. Nous constatons ainsi que le rapport adimensionnel des temps t_p/t_c suit une loi de puissance en fonction du rapport Re_1/Re_2 de la forme :

$$\frac{t_p}{t_c} = 54,5 \left(\frac{Re_1}{Re_2} \right)^{-\frac{1}{3}} \quad (III.29)$$

$$Re_1/Re_2 \in [3,8 \times 10^{-4} - 2 \times 10^{-1}]$$

Bien que cette estimation reste empirique, elle donne néanmoins un ordre relativement correct du temps de passage de la sphère à l'interface, avec une erreur relative moyenne inférieure à 5%.

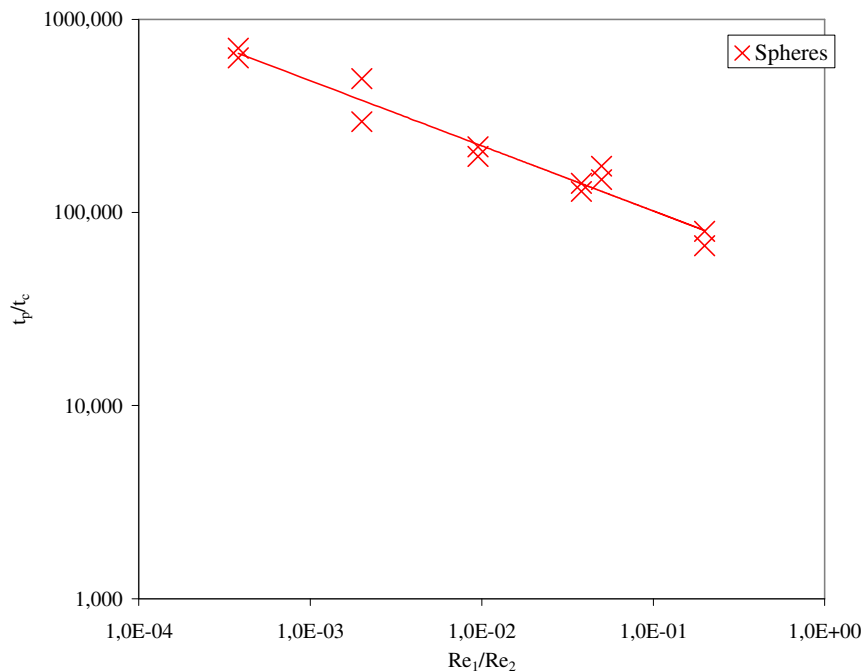


Figure III.63. Evolution du rapport t_p/t_c en fonction du rapport Re_1/Re_2 .

III.2.3.2.b. Longueur d'étirement de l'interface

Cette section est consacrée à l'influence du système liquide–liquide sur la longueur maximale d'étirement de l'interface durant la traversée d'une sphère. La comparaison des valeurs de la longueur d'étirement de l'interface $h_{\max}$ présentées sur le tableau III.02 montre d'une part, que pour des systèmes ayant la même phase aqueuse (lourde), cette longueur diminue avec l'augmentation de la viscosité de la phase huileuse (et σ_{12}). D'autre part, elle augmente avec la viscosité de la phase aqueuse pour les systèmes ayant la même phase huileuse. Enfin pour un système liquide-liquide identique, la taille de la sphère a une influence modérée. De même que dans les cas des bulles, pour les systèmes correspondant à des phases aqueuses identiques (figure III.64), la hauteur d'étirement diminue avec les rapports Re_1/Re_2 selon une loi de puissance. Pour un rapport donné Re_1/Re_2 , ce temps de passage est plus grand pour les systèmes dont la phase aqueuse est plus visqueuse. Ceci montre que la phase aqueuse joue encore une fois un rôle déterminant dans la rapidité du processus de traversée. Enfin, pour un système liquide-liquide identique, la taille de la sphère n'affecte pas, ou peu, la hauteur de fluide entraînée par la sphère.

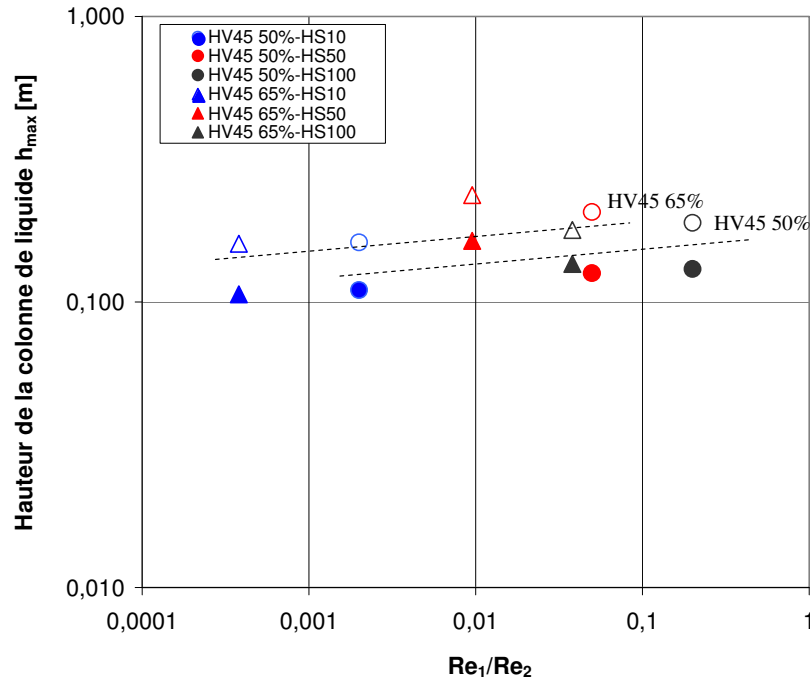


Figure III.64. Evolution de la hauteur maximale de fluide entraîné lors du passage de la sphère pour différents couples d'interface Emkarox/huile de silicone. Les points ouverts correspondent à des sphères de 6 mm de diamètre équivalent et les points fermés à des sphères de 4 mm de diamètre équivalent.

Pour mettre en évidence la variation de l'étirement de l'interface, nous avons représenté, sur la figure III.65, le rapport $(h_{\max}/d_{\text{eq}})$ en fonction du paramètre Re_2/Re_1 . Nous constatons que nous obtenons une loi de puissance indiquant ainsi qu'il est possible d'estimer la hauteur de liquide entraînée en fonction de ces paramètres. Bien que cette estimation reste qualitative, elle donne néanmoins un ordre de grandeur relativement correct de cet étirement de l'interface. La relation obtenue est de la forme :

$$\frac{h_{\max}}{d_{\text{eq}}} = 37 \left(\frac{Re_1}{Re_2} \right)^{0,07} \quad (III.30)$$

$$Re_1/Re_2 \in [3,8 \times 10^{-4} - 2 \times 10^{-1}]$$

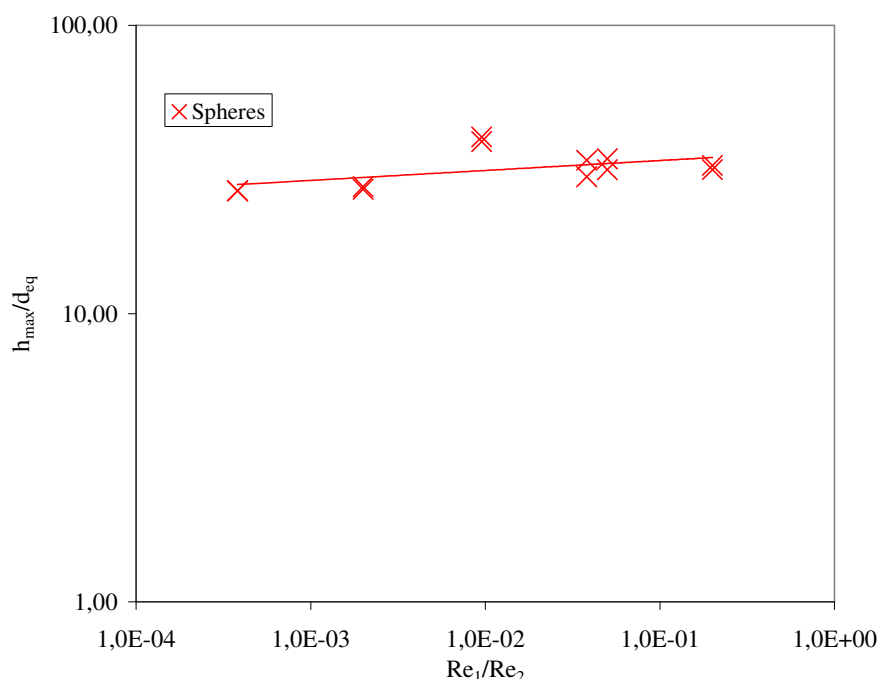


Figure III.65. Evolution du rapport $h_{\max}/d_{eq}$ en fonction du rapport Re_1/Re_2

Cette corrélation empirique permet d'estimer la hauteur d'étirement avec une erreur relative moyenne inférieure à 6%.

III.2.3.3. Champs de vitesse autour d'une sphère lors de la traversée d'une interface

Comme pour la traversée de l'interface par une bulle, nous avons suivi la traversée de l'interface par deux sphères de 4 et 6 mm. Les séquences des champs de vitesses sont portées sur les figures III.66 et III.67 respectivement. On observe, comme pour les bulles, un amincissement progressif du film liquide entraîné (fig. III.66b,c et d), caractérisé par un écoulement dans le sillage de la sphère opposé au déplacement de celle-ci. Ceci correspond au retour du liquide léger vers l'interface lors de l'amincissement. A mesure que la sphère descend dans la phase lourde le film continue à s'amincir. Le liquide léger revenant à l'interface engendre la création de boucles secondaires de circulation à la base de la colonne. Les derniers champs de vitesse (fig. III.66 et III.67d) sont obtenus juste avant la rupture de ce film. Ensuite, la sphère continue sa chute dans le fluide lourd en développant un champ de vitesse similaire à celui observé dans la phase légère dans le cas des bulles, et le film de liquide léger entraîné par la sphère continue son ascension vers l'interface. La colonne de liquide remonte dans la phase légère et les gouttelettes formées lors de la rupture se rassemblent et coalescent à l'interface.

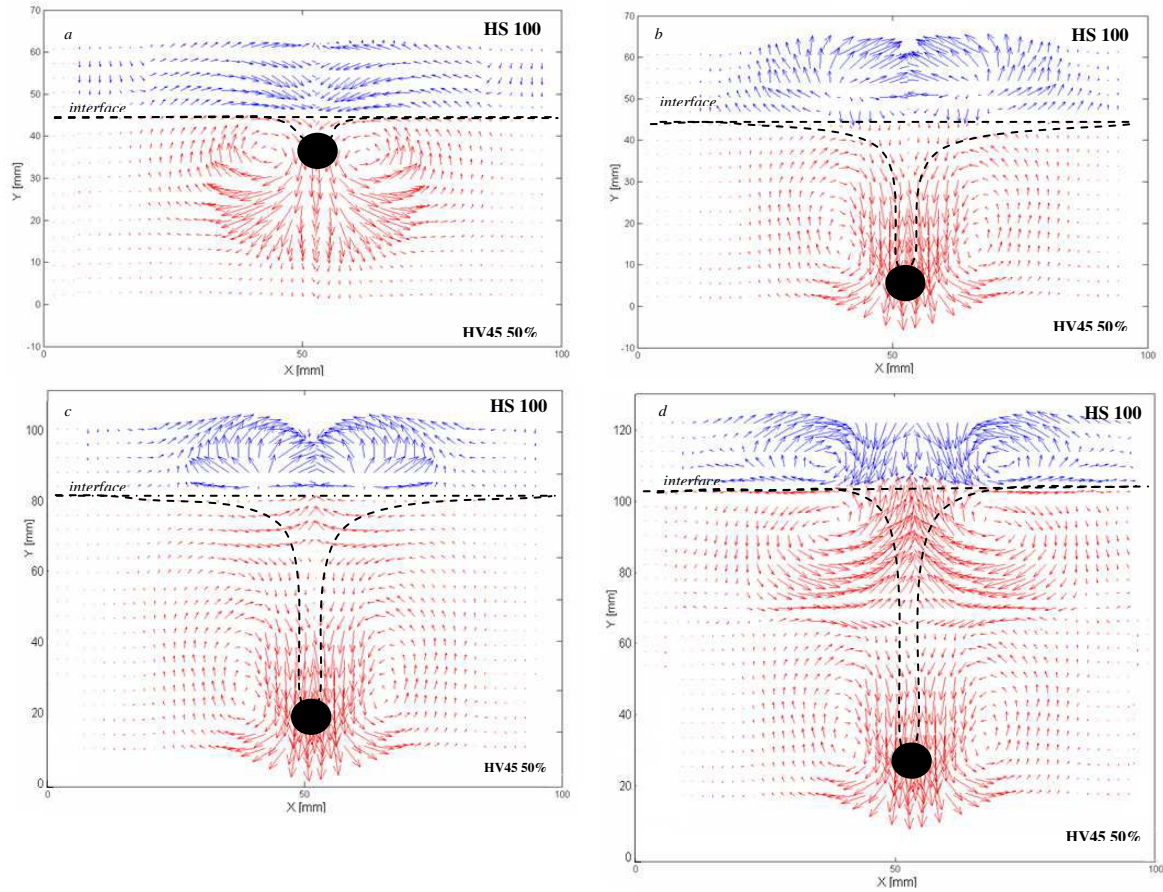


Figure III.66. Evolution des champs de vitesses autour d'une sphère de 6 mm de diamètre équivalent traversant une interface Emkarox 50%–huile de silicone 100.

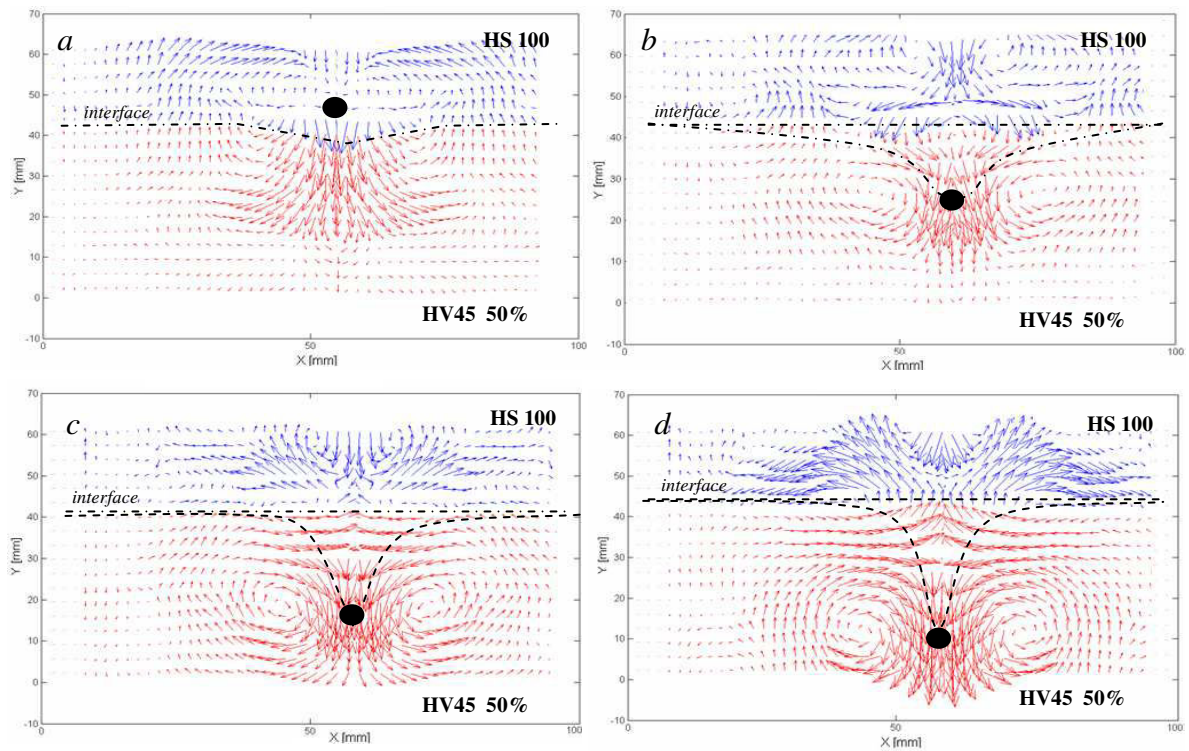


Figure III.67. Evolution des champs de vitesses autour d'une sphère de 4 mm de diamètre équivalent traversant une interface Emkarox 50%–huile de silicone 100.

III.2.4. Généralisation des résultats pour la traversée d'interfaces

L'étude de la traversée de l'interface par une sphère ou par une bulle présente de nombreuses similitudes tant qualitatives que quantitatives. Les champs de vitesses obtenus lors de la traversée de l'interface, la forme et la déformation de l'interface ou encore les corrélations obtenues (Eqs. III.26 et III.29) présentent de grandes ressemblances :

$$\text{Pour les sphères : } \frac{t_p}{t_c} = 54,5 \left(\frac{Re_1}{Re_2} \right)^{-\frac{1}{3}} \quad (III.29)$$

$$\text{Pour les bulles : } \frac{t_p}{t_c} = 2,72 \left(\frac{Re_1}{Re_2} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (III.26)$$

$$Re_1/Re_2 \in [3,8 \times 10^{-4} - 26 \times 10^3]$$

Afin de tenter de rassembler les résultats obtenus avec les bulles et les sphères, il est nécessaire de modifier la notation des phases. Ainsi, la phase 1 sera la phase occupée par l'inclusion (bulle ou sphère) avant la traversée et la phase 2 sera celle occupée par l'inclusion après la traversée. Ceci permet de comparer les deux modes de traversée (bulle ou sphère) comme l'illustre la figure III.68 suivante.

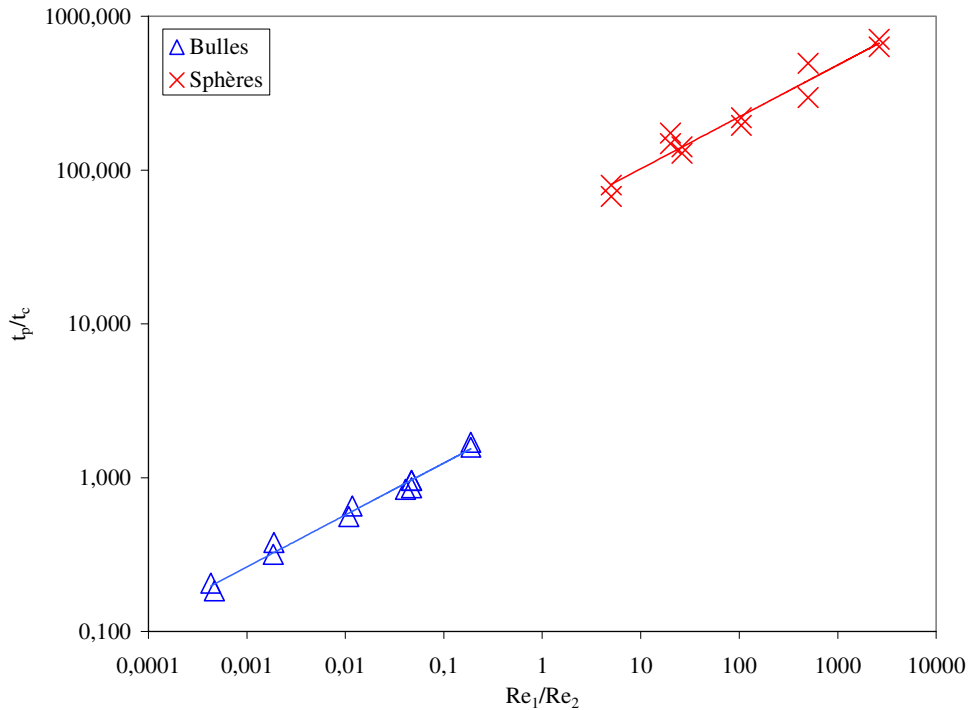


Figure III.68. Evolution du rapport t_p/t_c en fonction du rapport Re_1/Re_2 pour la traversée d'interface par des bulles et des sphères sur les systèmes Emkaro/Silicone étudiés.

On observe sur la figure III.68, comme observé précédemment, une allure similaire pour les deux courbes relatives aux bulles et aux sphères mais avec une forte discontinuité entre elles. Cette discontinuité peut provenir du fait que les corrélations proposées ne tiennent pas compte des tensions interfaciales ni de la forme des bulles. Dans le but de palier ce manque, un nombre adimensionnel basé sur le nombre de Morton des deux phases Mo_1/Mo_2 est ajouté dans les équations précédentes. La corrélation basée sur l'ensemble des résultats de traversée d'interface est alors :

$$\frac{t_p}{t_c} = 9,63 \left(\frac{Re_1}{Re_2} \right)^{2,76} \left(\frac{Mo_1}{Mo_2} \right)^{1,27} \quad (III.31)$$

$$Mo_1/Mo_2 \in [10^{-6} - 10^5] \text{ et } Re_1/Re_2 \in [3,8 \times 10^{-4} - 26 \times 10^3].$$

L'erreur relative moyenne est de l'ordre de 17% avec un écart maximal de 35%. La figure III.69 montre le bon accord obtenu entre les valeurs de t_p/t_c expérimentales et estimées à partir de l'équation III.31.

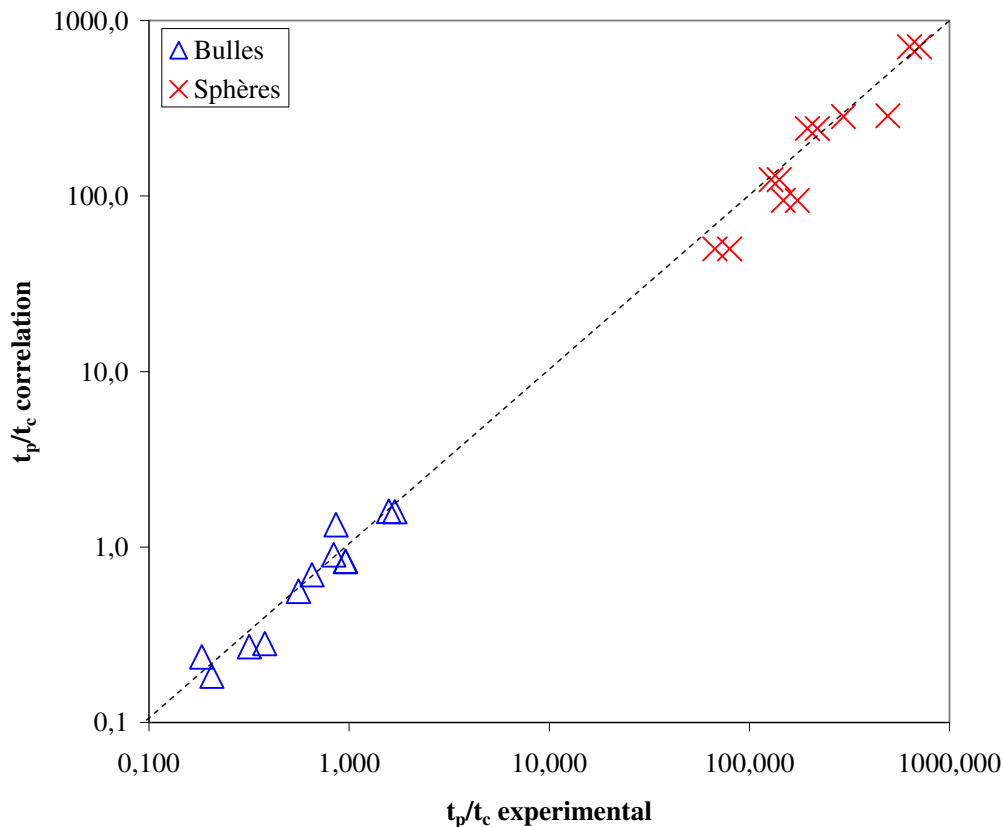


Figure III.69. Diagramme de parité entre les valeurs de t_p/t_c expérimentales et corrélées à l'aide de l'équation III.31 pour l'ensemble des données concernant la traversée d'interfaces par une bulle ou une sphère.

De la même façon, la figure III.70 illustre l'évolution du rapport $h_{\max}/d_{eq}$ en fonction du rapport Re_1/Re_2 pour la traversée de bulles et de sphères.

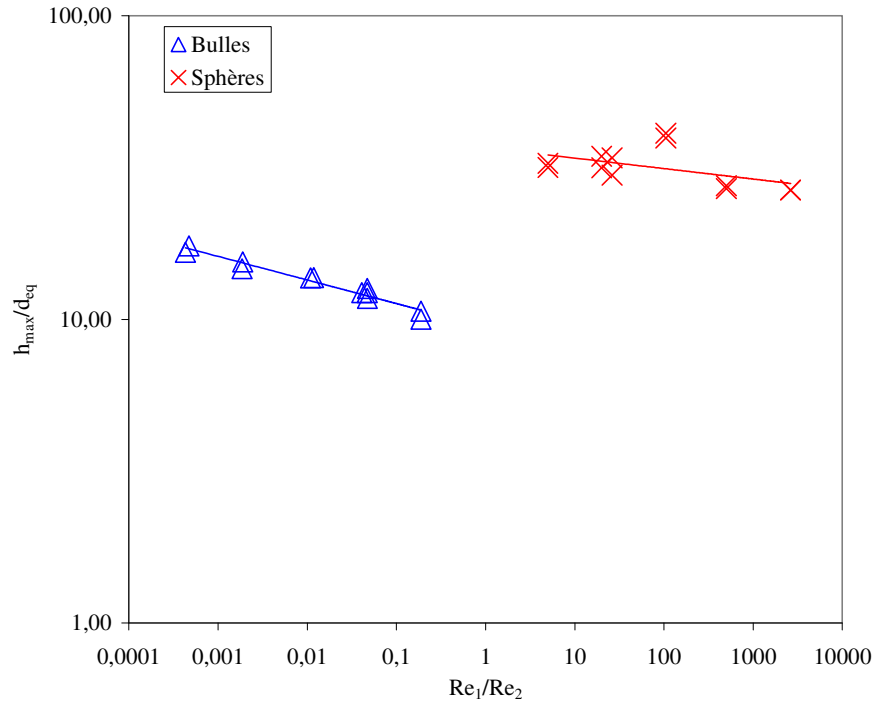


Figure III.70. Evolution du rapport $h_{\max}/d_{eq}$ en fonction du rapport Re_1/Re_2 pour la traversée de bulles et de sphères sur les systèmes Emkarox/Silicone étudiés.

Comme pour le rapport t_p/t_c (fig. III.68), on constate une allure similaire entre les deux courbes représentées sur la figure III.70 avec là encore, une forte discontinuité entre elles. Cette discontinuité peut provenir également du fait que les corrélations proposées ne tiennent pas compte des tensions interfaciales ou de l'élongation. Comme précédemment, un nombre adimensionnel basé sur le nombre de Morton des deux phases Mo_1/Mo_2 est de nouveau pris en compte les équations précédentes. La corrélation basée sur l'ensemble des résultats de traversée d'interface par les bulles et les sphères est ainsi obtenue :

$$\frac{h_{\max}}{d_{eq}} = 19,8 \left(\frac{Re_1}{Re_2} \right)^{1,17} \left(\frac{Mo_1}{Mo_2} \right)^{0,65} \quad (III.32)$$

$$Mo_1/Mo_2 \in [10^{-6} - 10^5] \quad \text{et} \quad Re_1/Re_2 \in [3,8 \times 10^{-4} - 26 \times 10^3].$$

L'erreur relative moyenne est de l'ordre de 9%. La figure III.71 montre le bon accord entre les valeurs de $h_{\max}/d_{eq}$ expérimentales et estimées en utilisant l'équation III.32.

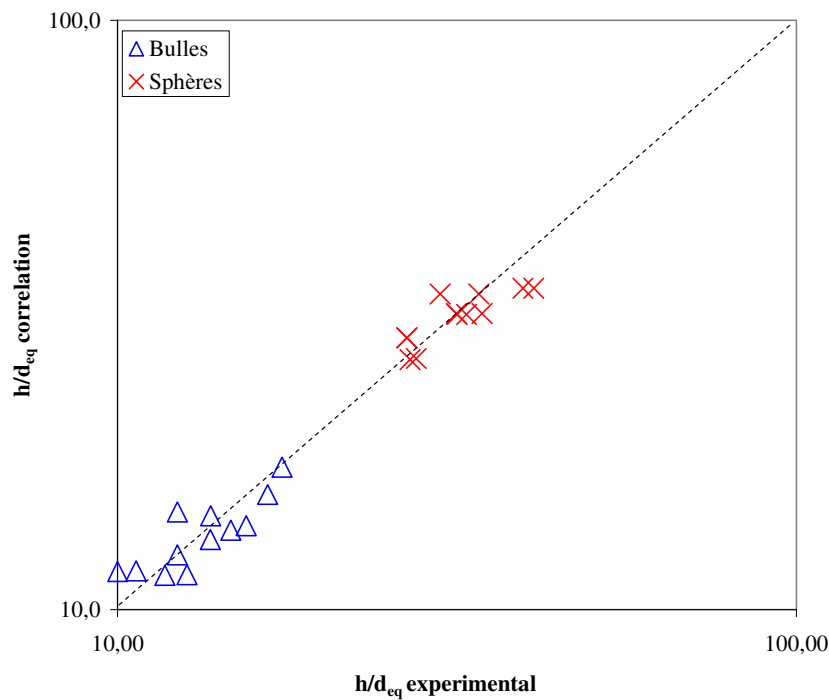


Figure III.71. Diagramme de parité entre les valeurs de $h_{\max}/d_{eq}$ expérimentales et corrélées à l'aide de l'équation III.33 pour l'ensemble des données concernant la traversée d'interfaces par une bulle ou une sphère.

III.2.5. Conclusions

Dans cette étude nous avons examiné expérimentalement le phénomène de traversée d'une interface par une bulle ou une sphère rigide, pour différents couples de liquides, afin de caractériser et d'approfondir la compréhension de ce phénomène.

Plusieurs caractéristiques ont été mises en évidence, en particulier:

- la symétrie du phénomène ;
- le temps de passage à l'interface qui dépend des propriétés physiques du couple de liquides et de la taille de l'inclusion ;
- la longueur d'étirement de l'interface.

Nous avons observé 4 étapes lors de la traversée d'une interface, que ce soit par une bulle ou une sphère :

- ascension ou sédimentation de la bulle ou de la sphère dans le fluide ;
- arrivée de l'inclusion à l'interface entraînant sa déformation ;
- étirement de l'interface dans l'autre liquide. L'inclusion entraîne donc une colonne de fluide que l'on appelle « film ». L'ascension ou la sédimentation de la particule est accompagnée de l'étirement et du drainage du film de liquide ;
- rupture du film liquide.

La variation du temps de passage ainsi que la longueur d'étirement ont été exprimées selon une loi de puissance en fonction de nombres adimensionnels définis en fonction du diamètre équivalent de l'inclusion, des viscosités et des tensions superficielles et interfaciales des phases (relation III.31 et III.32).

Les mesures de champs de vitesses déterminées par la technique PIV ont montré l'écoulement autour de la bulle et de la sphère avant, pendant et après la traversée de l'interface. Ces champs de vitesses ont permis de mettre en évidence le rôle de frontière joué par l'interface, ainsi que le mécanisme d'amincissement du film de liquide entraîné par l'inclusion

Maintenant, il serait intéressant d'étudier l'évolution de la vitesse de la bulle ou de la sphère au passage de l'interface. Une autre perspective de travail serait de recommencer toute l'étude détaillée ici mais en utilisant des fluides non-newtoniens. En effet, leur comportement est totalement différent des fluides newtoniens et ce type de fluides est aussi très utilisé dans l'industrie.

Enfin, avec l'avènement des techniques microscopiques, il serait intéressant d'étudier la traversée de sphères ou de tiges à l'échelle microscopique.

Chapitre III

III.3. Déformation d'interfaces - Etude de l'effet Weissenberg

Les écoulements rotationnels constituent un domaine d'étude important en mécanique des fluides classique et peuvent produire des structures instables intéressantes, tels que des vortex. A cause de la rotation de la Terre, de tels écoulements présentent également un intérêt en géophysique (dans les océans ou dans l'atmosphère). En ingénierie, ces courants sont souvent présents dans des machines hydrauliques ou des cuves agitées. Par ailleurs, des récipients en rotation peuvent être utilisés pour l'étude expérimentale des vortex et pour obtenir des informations sur des phénomènes naturels tels que des tornades. De plus, la déformation des interfaces liquide/liquide demeure la difficulté majeure dans la modélisation des phénomènes polyphasiques intervenant dans de nombreux procédés industriels. Dans ce but, nous nous intéresserons dans cette étude à la déformation d'une interface liquide-liquide par un écoulement circulaire imposé par une tige tournante dans les deux liquides et ce, tant pour des fluides newtoniens que non newtoniens et aux échelles mésoscopique et microscopique. Après une première partie dans laquelle nous fournirons quelques éléments bibliographiques, nous aborderons les résultats obtenus à l'échelle macroscopique puis à l'échelle microscopique par caméra rapide et par système PIV ou μ -PIV.

III.3.1. Synthèse bibliographique

Dans cette partie, nous rappellerons essentiellement les différentes caractéristiques concernant la déformation d'interfaces et particulièrement du célèbre « effet Weissenberg ».

III.3.1.1. Déformation et déplacement d'interfaces

Les phénomènes de déformation d'interfaces ont été la source de nombreuses études dans le passé. Déjà au XVII^{ème} siècle, Isaac Newton s'y intéressait. L'expérience dite « du seau » est décrite dans les « *Principia* » (*Principes Mathématiques de Philosophie Naturelle*). Newton suspendait à une longue corde un seau rempli d'eau, tordait la corde et abandonnait l'ensemble à lui-même, provoquant ainsi la mise en rotation du seau. Newton observe ainsi

que la surface de l'eau se creuse et prend la forme d'un paraboloïde de révolution. Si on verse de l'huile sur l'eau, la surface de séparation entre les deux liquides aura la même forme.

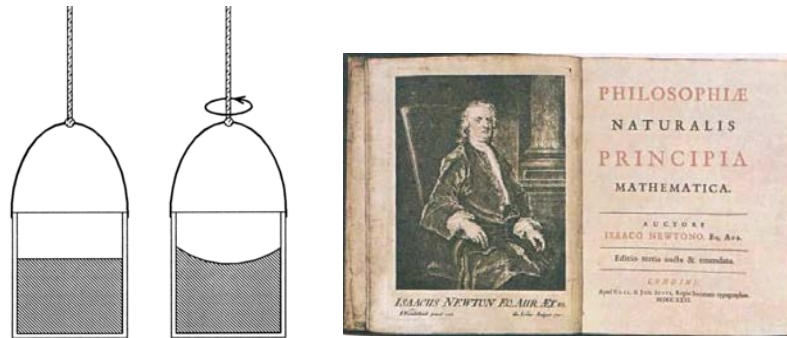


Figure III.72. Expérience du seau de Newton issu de « Principia » (*Principes Mathématiques de Philosophie Naturelle*, 1687).

Il existe d'autres phénomènes de déformation simple, comme la rotation d'une cuillère dans le café, qui creuse effectivement la surface du liquide et si l'on effectue rigoureusement l'expérience, on observe bien un creux à l'interface air/liquide. Celui-ci s'explique par l'effet des forces d'inertie comme dans le cas de l'expérience du seau de Newton.

Récemment, Bohr *et al.* (2006) ont continué les travaux portant sur « le seau de Newton » mais avec une différence : les parois du seau restent fixes et seul le fond tourne. Lorsque la vitesse de rotation devient élevée, l'interface air/liquide se creuse et des déformations en forme de polygones à 6 côtés au maximum se créent à la surface du liquide. Si l'on utilise des liquides plus visqueux, les polygones ont moins de coins. Les polygones apparaîtraient lorsqu'une rupture spontanée de la symétrie axiale intervient vers des formes stationnaires simples ou des formes en rotation rigides. Selon ces auteurs, les polygones sont de nouveaux membres d'une classe fascinante de systèmes où la rupture spontanée de la symétrie axiale mène à des formes simples stationnaires ou tournant de façon rigide.

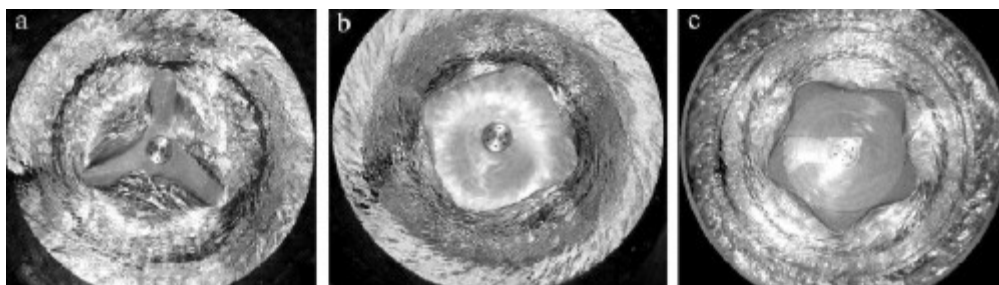


Figure III.73. Exemples de formes polygonales de l'interface eau - air (a) triangle. (b) carré. (c) pentagone. (Source Bohr *et al.*, 2006)

Dans cette famille se trouvent déjà les vortex de « Couette-Taylor » et les instabilités de « Kelvin-Helmholtz-Rayleigh ». Le processus complet est cependant encore très mystérieux.

D'autres types de sollicitations peuvent être appliquées aux interfaces, comme par exemple les pulsations d'onde acoustique (figure III.74a) ou encore le déplacement d'une interface dans un capillaire sous l'action d'un écoulement latéral par un des deux fluides composant l'interface liquide-liquide (Fig III.74b).

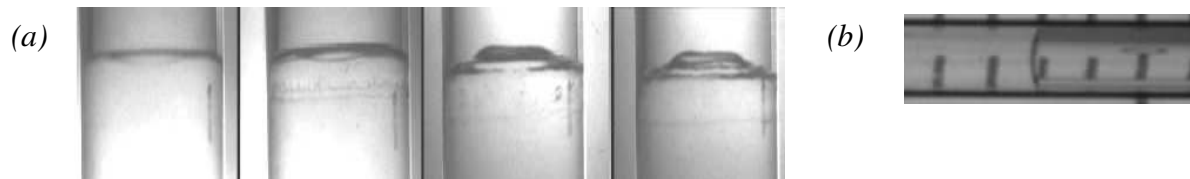


Figure III.74. Différents exemple de déformations d'interfaces (a) par Issenmann et al. (2008) (b) par Chan et Yang (2005).

III.3.1.3. L'effet Weissenberg et ses variantes

En plongeant une tige tournante dans un liquide newtonien, Karl Weissenberg (1946) a observé un abaissement de l'interface pour un fluide newtonien, et une montée de l'interface dans le cas d'un fluide non-newtonien élastique. Il fut le premier à faire cette observation, d'où le nom attribué à ce phénomène : l'effet Weissenberg. Cet effet, qui est devenu l'un des phénomènes les plus intéressants et connus concernant les fluides viscoélastiques, est le fruit des propriétés élastiques du fluide. Il tend à provoquer l'ascension d'un liquide non-newtonien élastique le long du rotor alors que pour un liquide newtonien purement visqueux, on observe la formation d'un vortex creux.

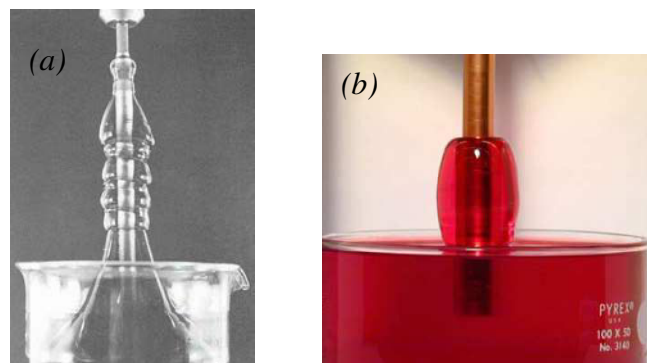


Figure III.75. Visualisation de l'effet Weissenberg par (a) Boger et Walters (1993), (b) McKinley (1993).

Les contraintes normales non nulles de ces solutions polymériques élastiques agiraient comme une force circulaire autour de la tige qui forcerait le liquide à se déplacer vers l'intérieur, à l'encontre de la force centrifuge, et vers le haut, à l'encontre de la force gravitationnelle. Ce concept a servi de base à certaines applications de mesures de grandeurs rhéologiques.

Beavers et Josph (1978) ont étudié des interfaces composées d'eau et de solution polymérique flottant au dessus. Ils ont observé une descente dans l'eau, le long de l'axe, du fluide non-newtonien environ quatre fois plus importante que la montée du fluide en contact avec de l'air, on parle alors de « l'effet Weissenberg amplifié ». Cependant, ces auteurs n'ont pas comparé l'influence et l'amplification de la montée du fluide. L'amplification est encore plus importante lorsque l'eau est remplacée par un fluide newtonien de densité proche de celle de la solution viscoélastique. Saville et Thompson (1969) ont coloré le fluide non-newtonien pour observer l'existence d'un écoulement secondaire perpendiculaire à l'écoulement circulaire original.

Bonn *et al.* (2004) ont étudié le cas d'un axe tournant immergé dans des interfaces constituées d'eau et d'huile tout deux newtoniens. L'étude montre qu'une montée de l'interface le long de l'axe de rotation n'est observée que lorsque la phase lourde possède une viscosité plus faible que la phase légère (fig. III.75a et b). On parle alors d'effet « Weissenberg inversé », car l'interface eau-air se creuse dans le cas d'un effet Weissenberg classique. L'étude montre que cette montée n'est pas le fruit d'un effet « non-newtonien » mais est plutôt due à l'écoulement newtonien instable du fluide. Néanmoins, la visualisation entreprise par PIV (fig. III.75.c) ne permet pas d'apporter une conclusion claire quant au lien entre les instabilités et le déplacement du fluide.

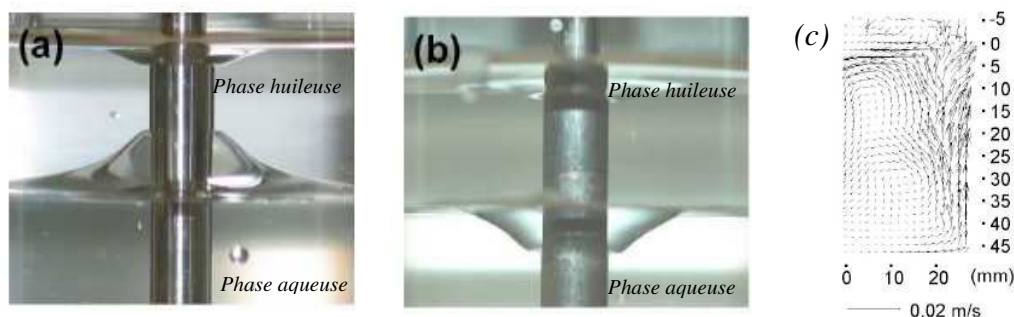


Figure III.75. Etude de la déformation d'une interface phase aqueuse//huile par une tige immergée tournante (a) Lorsque la phase huileuse est la plus visqueuse (b) Lorsque la phase aqueuse est la plus visqueuse (c) Champs de vitesse PIV des instabilités d'écoulements. Source Bonn et al. (2004).

L'écoulement de base d'un fluide tournant autour d'un cylindre rotatif est circulaire. Néanmoins, au-delà d'une certaine fréquence de rotation, cet écoulement devient instable, mais aucune visualisation n'a permis de conclure quant à l'origine qualitative de la montée de l'interface. En effet, la visualisation à l'échelle macroscopique, notamment par PIV, est difficile dans une zone si étroite.

III.3.1.3. Anisotropie des contraintes

Dans un fluide newtonien soumis à un écoulement de cisaillement simple ($u_x = \dot{\gamma} y$), seule la contrainte tangentielle σ_{xy} est modifiée par l'écoulement, les contraintes normales restent isotropes et égales à $-p$. Dans certains liquides, essentiellement des solutions de polymères de très grande masse moléculaire, l'écoulement de cisaillement induit également une différence entre les contraintes normales :

$$\sigma_{xx} - \sigma_{yy} = N_1(\dot{\gamma}) \text{ et } \sigma_{yy} - \sigma_{zz} = N_2(\dot{\gamma}) \quad (III.33)$$

L'anisotropie des contraintes normales est un effet non-linéaire : à faible taux de cisaillement, N_1 et N_2 sont des fonctions quadratiques de $\dot{\gamma}$. Pour refléter ce caractère non linéaire, on définit deux coefficients d'anisotropie Ψ_1 et Ψ_2 tels que : $N_1 = -\Psi_1 \dot{\gamma}^2$ et $N_2 = -\Psi_2 \dot{\gamma}^2$.

En général N_1 est négatif et beaucoup plus grand en valeur absolue que N_2 qui est généralement positif. L'apparition d'anisotropie des contraintes normales est liée au fait que l'écoulement de cisaillement modifie la microstructure du fluide et la rend anisotrope. Prenons l'exemple d'une solution de polymères : la macromolécule en solution a l'aspect d'une « pelote » de fil contenue dans une enveloppe sphérique. Lorsqu'elle est soumise à un cisaillement suffisamment fort, cette pelote se déforme en un ellipsoïde dont le grand axe a tendance à tourner vers la direction de l'écoulement. L'élasticité du polymère, d'origine essentiellement entropique, a tendance à ramener cet ellipsoïde vers une forme sphérique. La force de rappel est maximale dans la direction de l'écoulement ; elle est responsable de l'apparition d'une compression le long de l'écoulement. Ceci implique donc que $\sigma_{xx} < \sigma_{yy}$, soit $N_1 < 0$. En revanche, il n'y a pas d'interprétation simple du signe de N_2 . L'anisotropie des contraintes normales a deux manifestations spectaculaires : l'ascension du fluide le long d'un barreau tournant (effet Weissenberg) et l'expansion du jet sortant d'un orifice. Dans l'écoulement engendré par le cylindre tournant, la vitesse est essentiellement azimutale, avec

un gradient radial. L'anisotropie des contraintes normales conduit ici à : $\sigma_{\theta\theta} < \sigma_{rr}$. Il y a une « tension » le long des lignes de courant circulaires qui tend à pousser le fluide vers le centre de rotation et donc à le faire monter le long du cylindre tournant.

III.3.1.4. Instabilités de type Taylor-Couette

Le passage d'un écoulement laminaire où la vitesse est indépendante du temps à un écoulement turbulent où la vitesse varie de manière aléatoire dans le temps s'effectue par une série d'instabilités qui rendent l'écoulement de plus en plus complexe (Taylor, 1923, Coles, 1965, Andereck *et al.*, 1986). Regardons, par exemple, l'écoulement entre deux cylindres concentriques, lorsqu'on fait tourner le cylindre intérieur et que le cylindre extérieur est immobile. A faible vitesse, les lignes de courant sont des cercles concentriques, il n'y a pas de structure particulière visible dans l'écoulement. Au delà d'une vitesse critique, des « rouleaux » apparaissent dans l'écoulement (fig. III.76a) avec l'apparition d'une composante de vitesse axiale et d'une composante radiale qui sont périodiques le long de l'axe des cylindres. Les trajectoires des éléments de fluides s'enroulent sur des tores. La vitesse reste indépendante du temps. Cette première instabilité est due à la force centrifuge. En augmentant encore la vitesse de rotation, une seconde instabilité apparaît au delà d'une autre vitesse critique. Cette seconde instabilité (fig. III.76b) se manifeste par une ondulation des rouleaux. La vitesse du fluide devient alors périodique dans le temps. En continuant à augmenter la vitesse de rotation, on constate que la vitesse varie aléatoirement dans le temps, l'écoulement est devenu turbulent. Néanmoins, les visualisations montrent que l'écoulement garde une périodicité spatiale le long de l'axe des cylindres. En augmentant considérablement la vitesse de rotation, on finit par faire disparaître la périodicité spatiale, l'écoulement atteint un état de turbulence développée.

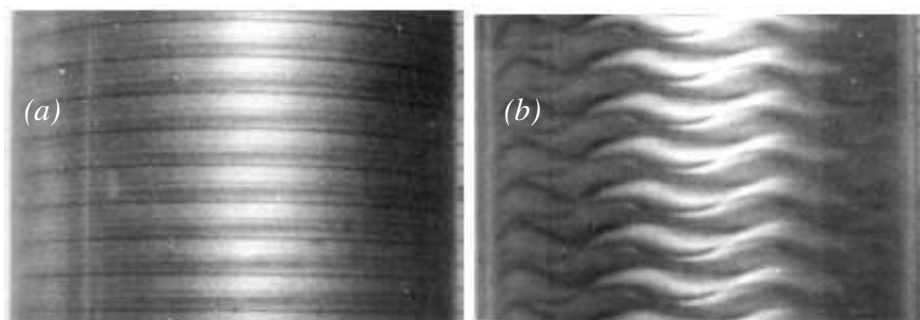


Figure III.76. *Instabilité de Taylor dans un écoulement de Couette par Burkhalter et Koschmieder (1973).*

Abcha *et al.* (2006) ont visualisé par PIV les régimes d'écoulement circulaire de Couette, des rouleaux de Taylor et des rouleaux ondulés de Taylor comme le montre la figure III.77.

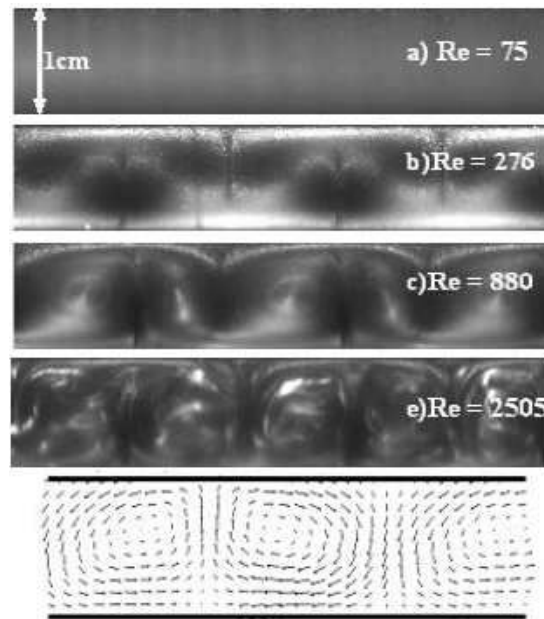


Figure III.77. Mesures PIV des différentes instabilités intervenant dans un écoulement circulaire de Couette par Abcha *et al.* (2006).

Les différents régimes d'écoulement sont caractérisés par le nombre de Taylor tel que défini par Stuart (1958) :

$$Ta = \sqrt{\frac{d_2}{d_1}} \frac{\omega d_2 d_1}{\nu} = \sqrt{\frac{d_2}{d_1}} Re \quad (III.34)$$

où ν est la viscosité cinématique, d_2 est le diamètre de l'axe de rotation et d_1 , la distance entre la paroi et l'axe de rotation. Stuart (1958) a montré l'existence d'une valeur critique du nombre de Taylor $Ta_c = 41$ à partir de laquelle les instabilités apparaissent. Cette valeur a été confirmée à de nombreuses reprises dans la littérature.

Notre étude va, dans un premier temps, se focaliser sur l'effet Weissenberg classique et l'effet Weissenberg amplifié. A l'aide d'une caméra rapide et d'un système PIV, nous allons vérifier les observations expérimentales disponibles à ce sujet, avant de pousser notre étude à l'échelle microscopique.

III.3.2. Mise en œuvre à l'échelle macroscopique

Cette partie est réalisée dans le but de vérifier les phénomènes relatés dans la littérature concernant l'effet Weissenberg classique, son amplification ainsi que les différentes instabilités d'écoulements. Elle a été réalisée en collaboration avec M^{me} Changwei Zhao.

III.3.2.1. Etude de l'effet Weissenberg

Les mesures expérimentales de la montée de l'interface constituée par le système PAAm 0,5%/air montrent une déformation et une montée de l'interface. La figure III.78 illustre un exemple de montée d'interface au voisinage de l'axe de rotation pour une interface composée de PAAm 0,5% et d'air pour différentes vitesses de rotation de l'axe de rotation entraîné par un moteur. Les mesures sont arrêtées à des vitesses de rotation de 900 tr.min⁻¹ en raison de l'apparition de différentes perturbations (instabilités, création d'anneaux ou de gouttes, etc.).

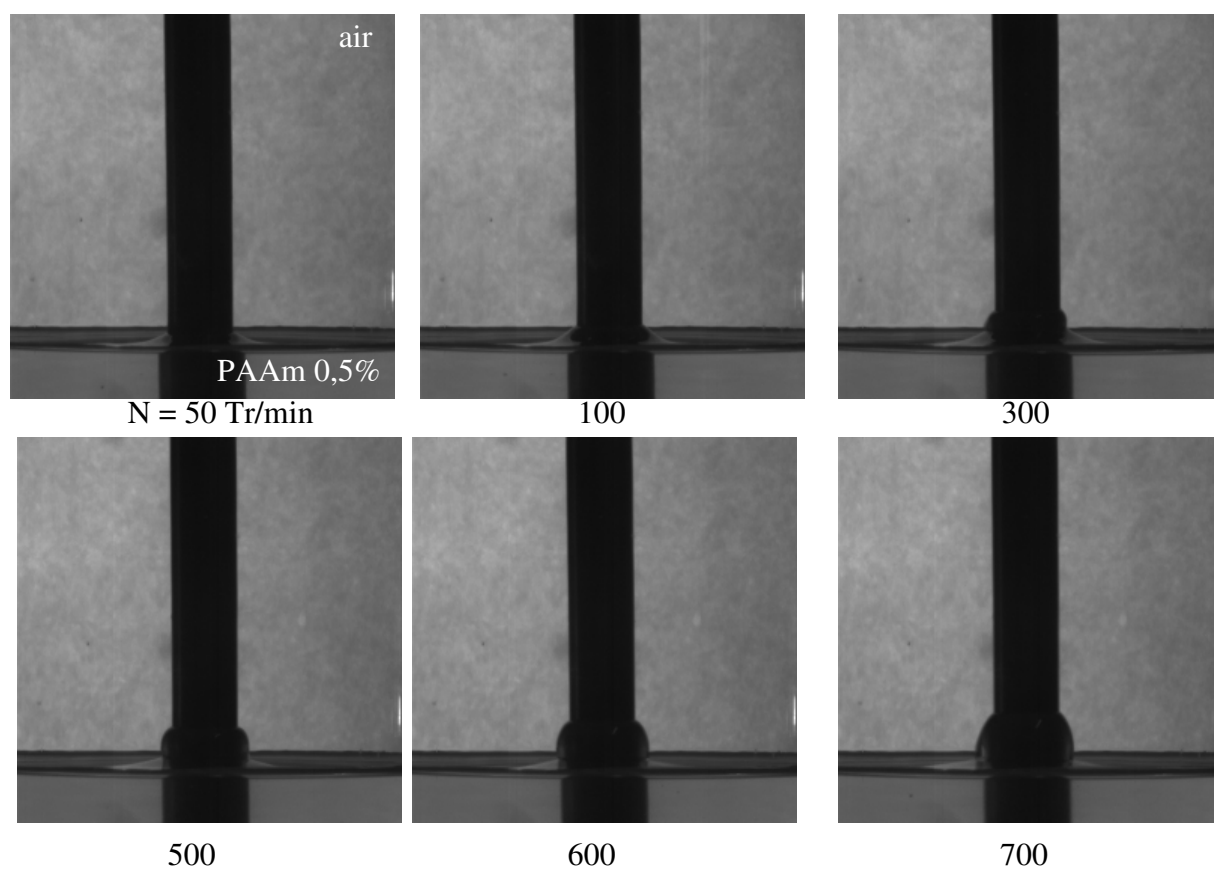


Figure III.78. Déformation de l'interface PAAm 0,5%/air à différentes vitesses de rotation de la tige tournante. $D_{axe} = 10 \text{ mm}$ (acier).

Trois concentrations massiques différentes de PAAm ont été utilisées comme phase polymérique : 0,5; 0,75 et 1 %. L'évolution de la hauteur de montée déplacement en fonction de la vitesse de rotation de l'axe est présentée sur la figure III.79.

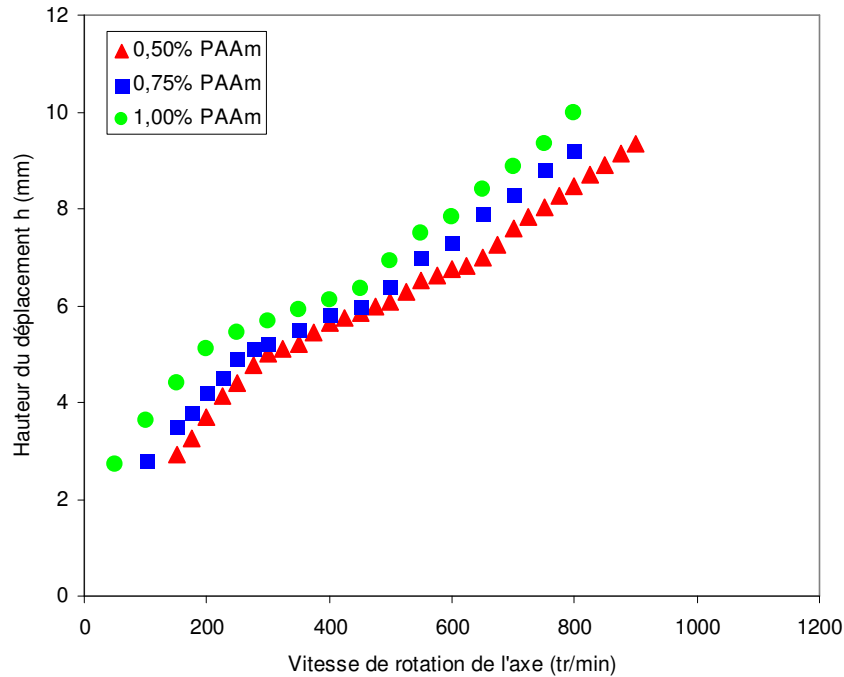


Figure III.79. Variation de la hauteur de l'interface PAAm/air pour différentes concentrations massiques de polymère 0,25 ; 0,75 et 1%. $D_{axe} = 10$ mm.

Les trois courbes présentées sur la figure III.79 montrent que plus la solution polymérique de PAAm est concentrée et plus l'effet est important. Cela confirme le paragraphe §III.3.1.3 qui explique l'origine de cet effet par les contraintes normales non nulles de ces fluides qui augmentent avec la concentration en PAAm (c.f. tableau I.09).

Pour étudier les mécanismes responsables de la montée de l'interface, nous avons utilisé le système de PIV permettant d'obtenir des champs de vecteur vitesse.

Le champ de vitesse obtenu est mesuré légèrement en amont de l'axe de rotation, comme le montre la figure (III.80.b) afin de limiter les effets de réflexions sur l'axe tournant qui masqueraient le déplacement des particules traçantes.

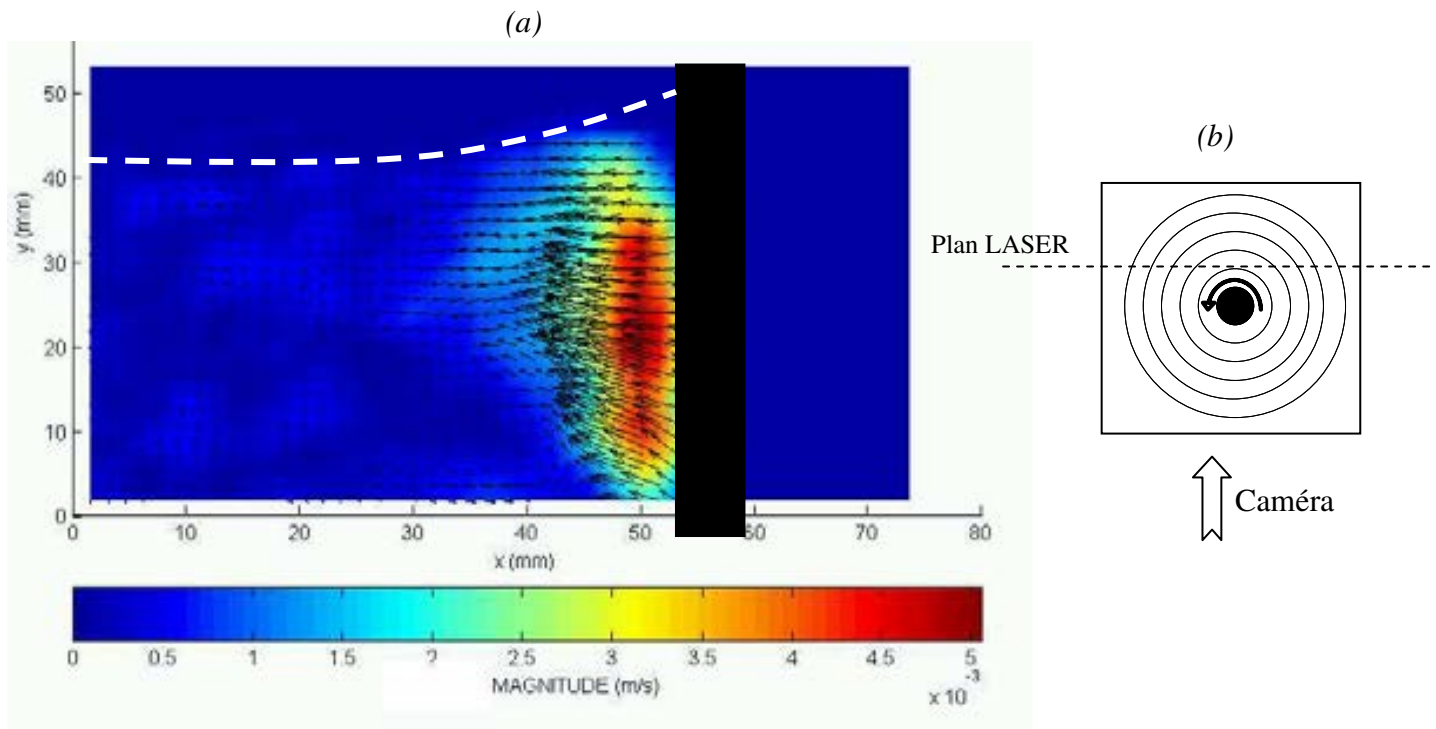


Figure III.80. (a) Mesure du champ de vitesse lors de l'ascension d'une interface composé de PAAm 0,5% et d'air. Diamètre de l'axe de rotation de 10 mm. $N = 500 \text{ tr.min}^{-1}$. (b) Positionnement de la nappe LASER pour l'expérience.

Le champ de vitesse obtenu et illustrée sur la figure III.80.a, montre un déplacement azimuthal du fluide non-newtonien avec un gradient radial. L'écoulement de cisaillement induit des contraintes normales, indépendantes de la direction de l'écoulement engendrant une tension le long des lignes de courant qui pousse le fluide vers l'axe et à le faire monter.

Cependant il est très difficile de visualiser les vecteurs vitesses dans la zone de la montée du fluide en raison de l'épaisseur de l'interface, la petite taille de la zone de fluide montante et la réflexion du LASER créant une zone sombre sans données de champ de vitesse.

Par ailleurs, aucune instabilité d'écoulement au sein du fluide n'a été observée dans la gamme de vitesses de rotation possibles ($N \in [0-1500 \text{ tr/min}]$) et que pouvait fournir le moteur d'agitation utilisé pour ces trois fluides étudiés. L'écoulement reste azimuthal dans tous les cas.

III.3.2.2. Effet Weissenberg amplifié

Les mesures expérimentales de la montée de l'interface constituée par le système PAAm 0,75% / huile de silicone 1000 sont illustrées sur la figure III.81 qui montre une déformation et une montée très prononcées et semblables à celles obtenues pour un effet Weissenberg classique à l'interface. On observe également la formation d'un tore autour de l'axe de rotation pour les très grandes vitesses de rotation.

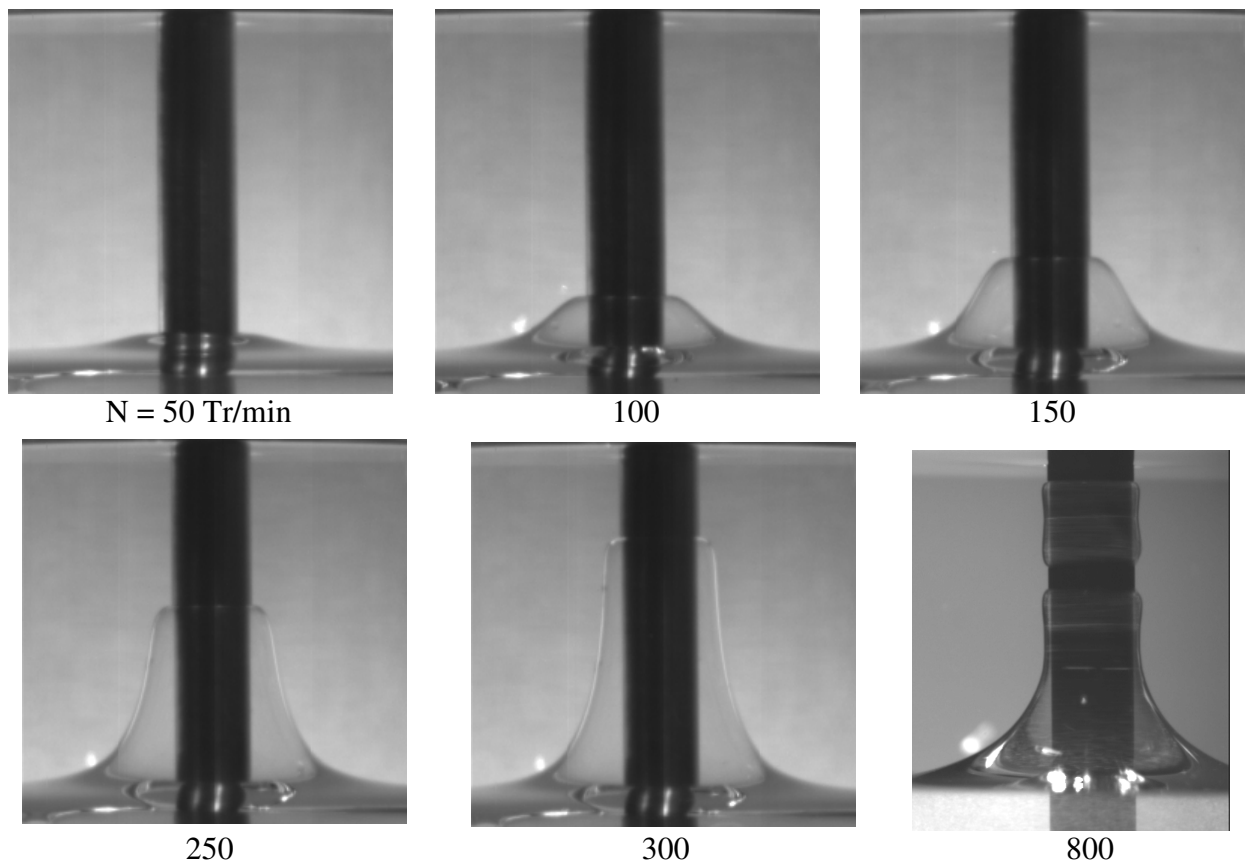


Figure III.81. Variation de la hauteur de l'interface PAAm 0,75% / huile de silicone 1000 pour différentes vitesses de l'axe de rotation. $D_{axe} = 10$ mm (acier).

Cependant, la montée de l'interface est ici très importante si on la compare à la montée de la même phase lourde en contact avec de l'air. On retrouve ici des résultats similaires à ceux observés par Beavers et Joseph (1978), à savoir que l'ajout d'une phase au dessus ou en dessous de la solution polymérique conduit à un déplacement de l'interface beaucoup plus marqué que lors du contact avec de l'air. Ces auteurs ont attribué cette amplification à un écoulement secondaire. Pour vérifier leur hypothèse, nous avons entrepris une étude PIV,

comme le montre la figure III.82. Les champs de vitesse ont été mesurés par PIV à deux vitesses différentes $N = 200$ tr/min (fig. III.82.a) et $N = 800$ tr/min (fig. III.82.c).

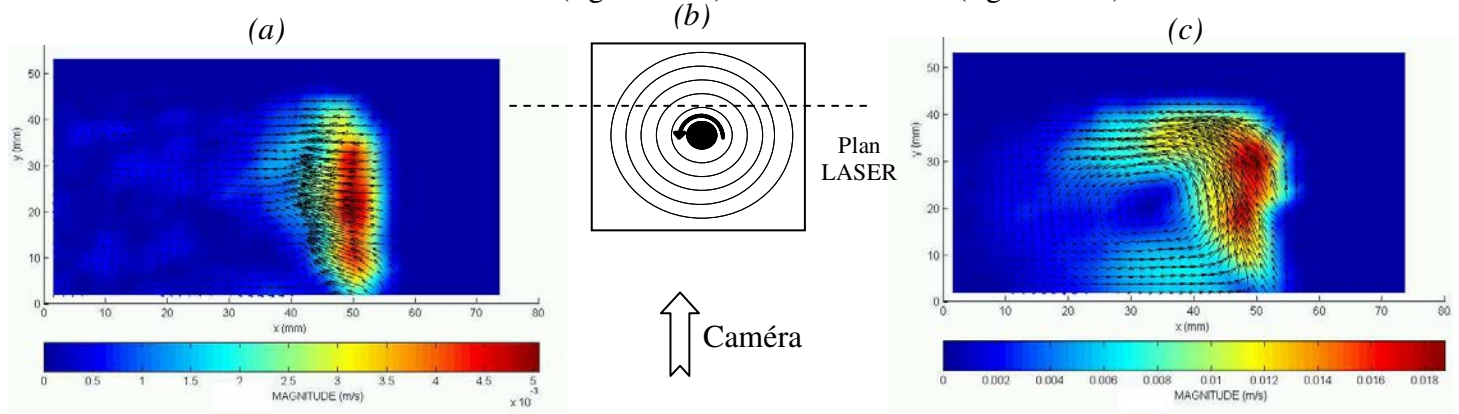


Figure III.82. (a) Mesure du champ de vecteurs vitesse lors de l'ascension d'une interface composée de PAAm 0,5% et d'huile de silicone 100. Diamètre de l'axe de rotation de 10 mm (acier). $N = 200$ tr.min⁻¹. (b) Positionnement de la nappe LASER pour l'expérience. (c) Mesure du champ de vecteurs vitesse lors de l'ascension d'une interface composée de PAAm 0,5% et d'huile de silicone 100. Diamètre de l'axe de rotation de 10 mm (acier). $N = 800$ tr.min⁻¹.

On remarque qu'au delà d'une certaine vitesse de rotation, il apparaît au sein de la phase lourde une instabilité de l'écoulement perpendiculaire à l'écoulement circulaire original. Cette instabilité pourrait être à l'origine de l'amplification. Afin de s'en assurer, on étudie également l'influence des phases, de leurs viscosités et concentrations sur l'évolution du déplacement de l'interface en fonction de la vitesse de rotation (fig. III.83).

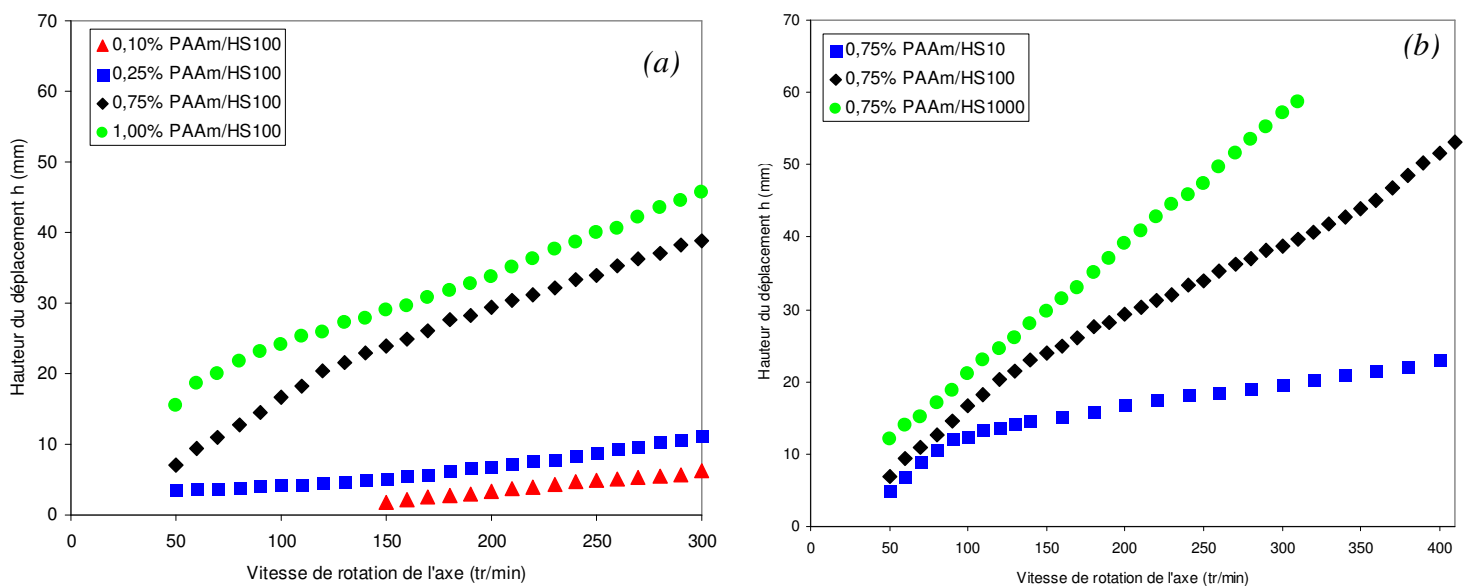


Figure III.83. Influence des phases sur l'évolution de la hauteur du déplacement de l'interface en fonction de la vitesse de rotation de l'axe (a) Influence de la phase lourde (b) Influence de la phase légère.

On note des amplifications pouvant atteindre jusqu'à 10 fois la hauteur de déplacement de l'interface en comparaison avec le système PAAm/air. Sur la figure III.83.a, on peut remarquer que plus la phase lourde est concentrée en polymère, plus le phénomène de montée est important, ce qui est en accord avec l'effet Weissenberg classique. De plus, plus la phase légère est visqueuse, plus le phénomène est amplifié. Enfin, on notera sur la figure III.84, l'existence de deux régimes distincts. Le premier (I) correspond à une augmentation de la hauteur de déplacement de même allure que celle obtenu avec l'effet classique, tandis que le second présente une augmentation linéaire correspondant à l'apparition des instabilités pouvant être à l'origine de l'amplification.

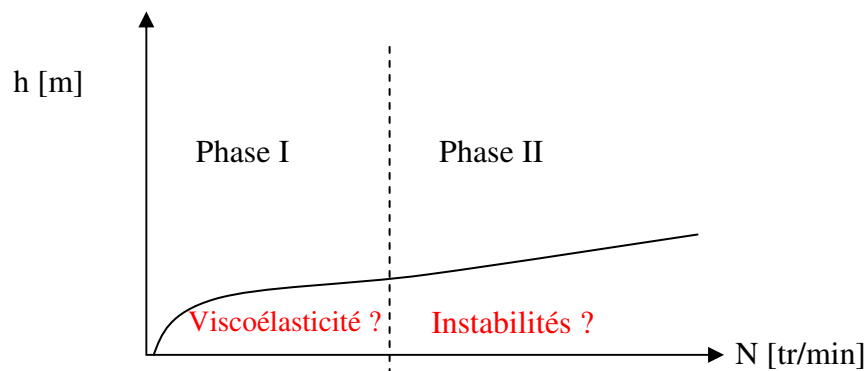


Figure III.84. Schéma de l'allure de l'évolution de la hauteur de déplacement de l'interface en fonction de la vitesse de rotation.

L'ensemble des résultats obtenus à l'échelle mésoscopique pour les fluides non newtoniens peut être représenté par une corrélation du type (Erreur moyenne de 22%) :

$$\frac{h}{d_{\text{axe}}} = \frac{1}{2} \text{Ta}^{\frac{1}{2}} \text{De}^{\frac{1}{2}} \left(\frac{\mu_h}{\mu_f} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (\text{III.35})$$

$$\text{Ta} \in [5 \times 10^{-4} - 0,18] ; \text{De} \in [136 - 4077] ; d_{\text{axe}} \in [4 - 10 \text{ mm}] \text{ et } \mu_h/\mu_f \in [0,71 - 346]$$

Afin de s'affranchir des propriétés viscoélastiques du fluide et de se focaliser sur les phénomènes d'instabilités, une étude similaire a été entreprise sur des interfaces liquide-liquide composées de fluides newtoniens comme phase légère.

III.3.2.2.2. Interfaces composées de fluides newtoniens

L'effet Weissenberg est une caractéristique propre aux fluides non newtoniens viscoélastiques, mais Bohn *et al.* (2004) ont observé des phénomènes d'ascension d'interface pour des systèmes composés d'eau et d'huile à condition que le fluide lourd soit moins

visqueux que le fluide léger. Dans le cas contraire, on observait un abaissement de l'interface. Nous avons vérifié ces observations expérimentales avec une interface composée d'eau et d'huile de silicone 100 (Fig. III.85.a) et une autre composée de HV45 65% et d'huile de silicone 10 (Fig. III.85.b). Dans le premier cas, l'interface monte tandis que dans le second cas, elle se déplace vers le bas.

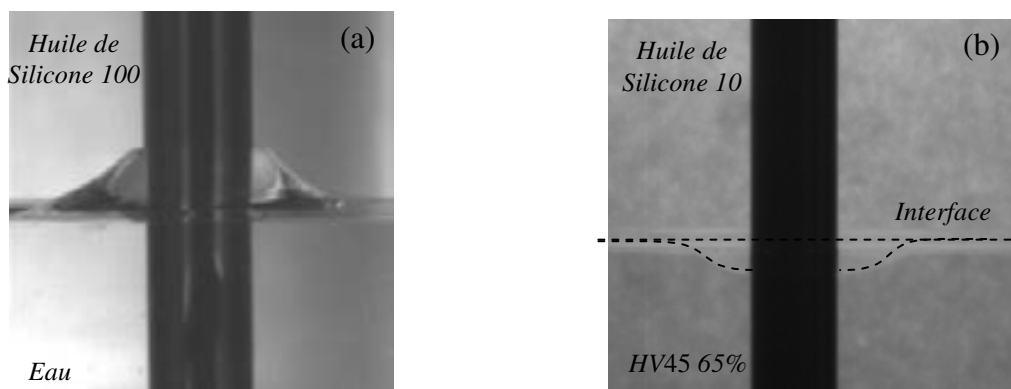


Figure III.85. Déplacement de l'interface (a) vers le haut dans le cas d'interface eau/huile de silicone 100 (b) vers le bas dans le cas d'une interface HV45 65%/ huile de silicone 10.

Dans le cas observé sur la figure III.85.a, on parle alors de l'effet Weissenberg « inversé », car sans l'huile l'interface se creuserait. De plus, la montée de l'interface est d'autant plus importante que l'huile est visqueuse comme le montre la figure III.86 dans le cas où l'eau constitué la phase lourde.

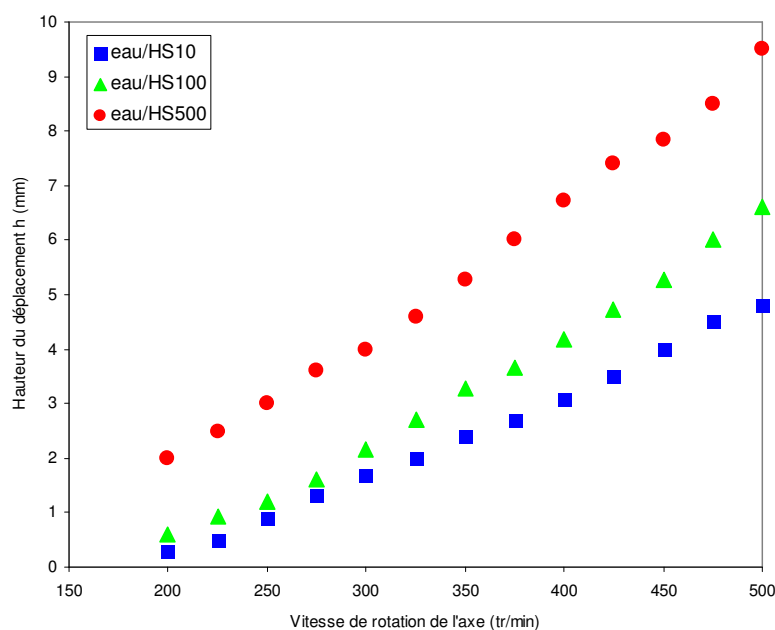


Figure III.86. Evolution de la hauteur de déplacement pour trois interfaces différentes composées d'eau et d'huiles de silicone différentes.

Sur la figure III.87, on étudie l'influence de la phase lourde. Des solutions de HV45 de différentes concentrations ont été utilisées comme phase lourde afin de modifier la viscosité de cette phase, la phase légère étant dans tous les cas l'huile de silicone 100. On observe encore une fois que tant que la viscosité de la phase lourde est plus élevée que celle de l'huile, l'interface monte, mais dans le cas contraire (HV40-45%), l'interface descend.

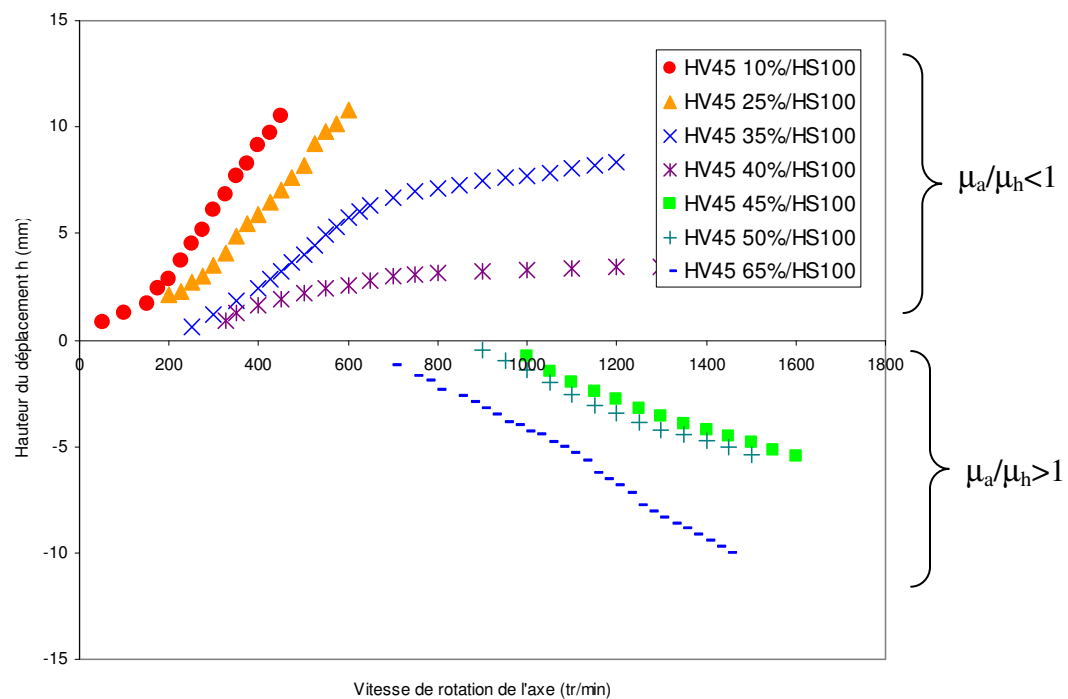


Figure III.87. Evolution de la hauteur de déplacement pour trois interfaces différentes composées d'huile de silicone 100 et de 7 solutions de fluide visqueux (HV45) de concentrations différentes.

La déformation de l'interface dépend donc du rapport μ_f/μ_h des viscosités du fluide lourd et de la phase huileuse ainsi que de la vitesse de rotation de l'axe N (en tr/min). Plus le rapport de viscosités augmente et plus la pente de la montée diminue jusqu'à ce que le rapport μ_f/μ_h devienne plus grand que 1. Ensuite cette pente devient négative et augmente de nouveau en valeur absolue avec μ_f/μ_h . Il est donc possible, d'après ces observations, de corréler le déplacement de l'interface selon la corrélation suivante :

$$\frac{h}{d_{\text{axe}}} = \alpha \left(1 - \frac{\mu_f}{\mu_h} \right) N^\beta \quad (III.34)$$

$$\text{Avec } \alpha = 3,8 \cdot 10^{-6} \quad \beta = 1,7 \cdot \left(\frac{\mu_f}{\mu_h} \right)^{-\frac{1}{15}} \quad N \in [0 - 2000 \text{ tr/min}] \quad \frac{\mu_f}{\mu_h} \in [0,1 - 6] \quad \text{et } d_{\text{axe}} \in [4 - 10 \text{ mm}]$$

Cette corrélation donne des résultats très satisfaisants, comme l'illustre la figure III.88, avec une erreur moyenne de 24% sur 118 données expérimentales.

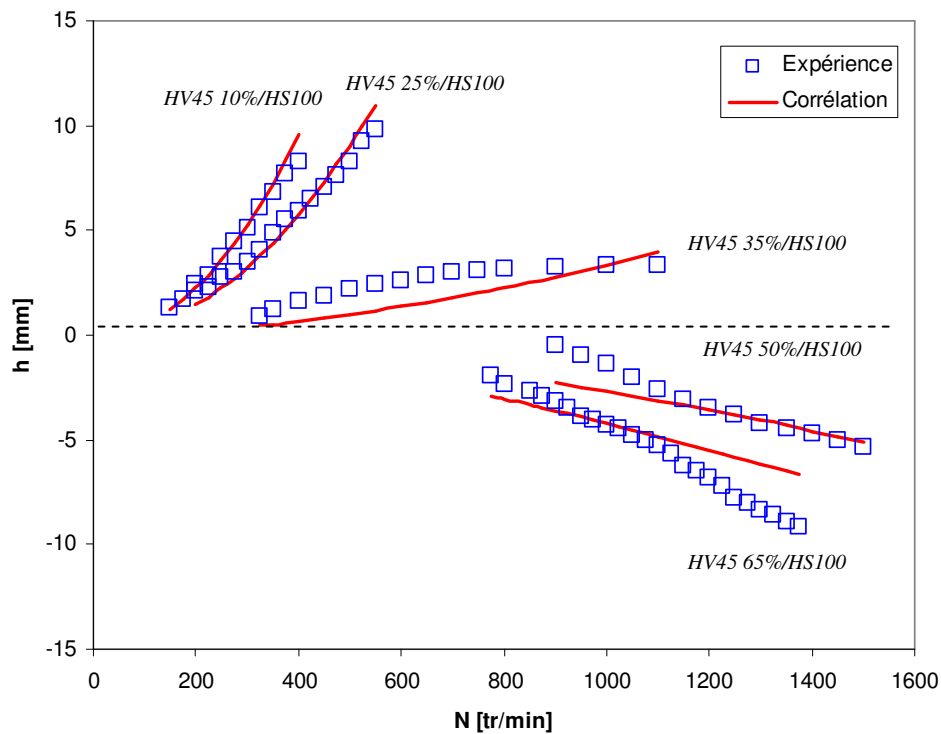


Figure III.88. Comparaison des valeurs expérimentales et corrélées du déplacement de l'interface en fonction de la vitesse de rotation du moteur pour 5 interfaces différentes.

Les champs de vitesses mesurés par PIV sont représentés pour le cas (a) et (b) des figures III.85 respectivement sur les figures III.89 et III.90. Ces mesures ont été effectuées pour un déplacement de l'interface vers le haut et vers le bas. On observe ainsi dans les deux cas, que le déplacement de l'interface apparaît seulement lorsqu'une instabilité d'écoulement sous forme de rotation est présente. Si l'instabilité intervient dans la phase lourde en premier, l'interface monte et si elle intervient d'abord dans la phase légère, l'interface descend. Les valeurs du nombre de Taylor étant plus petite que 41, on peut supposer que la présence de la phase légère accélère l'apparition des instabilités par rapport au système en contact avec de l'air, de plus il existerait une compétition entre les deux phases pour l'apparition de l'instabilités d'écoulement. Ceci est en accord avec les observations effectuées sur la viscosité des fluides. En effet, plus le fluide est visqueux, moins les instabilités apparaissent rapidement ; ce qui explique l'influence observée du au rapport des viscosités. En effet lorsque celui ci est inférieur à un, plus il est faible et plus la montée sera importante. Lorsqu'au contraire ce rapport est supérieur à un, plus la descente sera importante avec des instabilités apparues dans la phase légère, cf. HV45 65%/HS10.

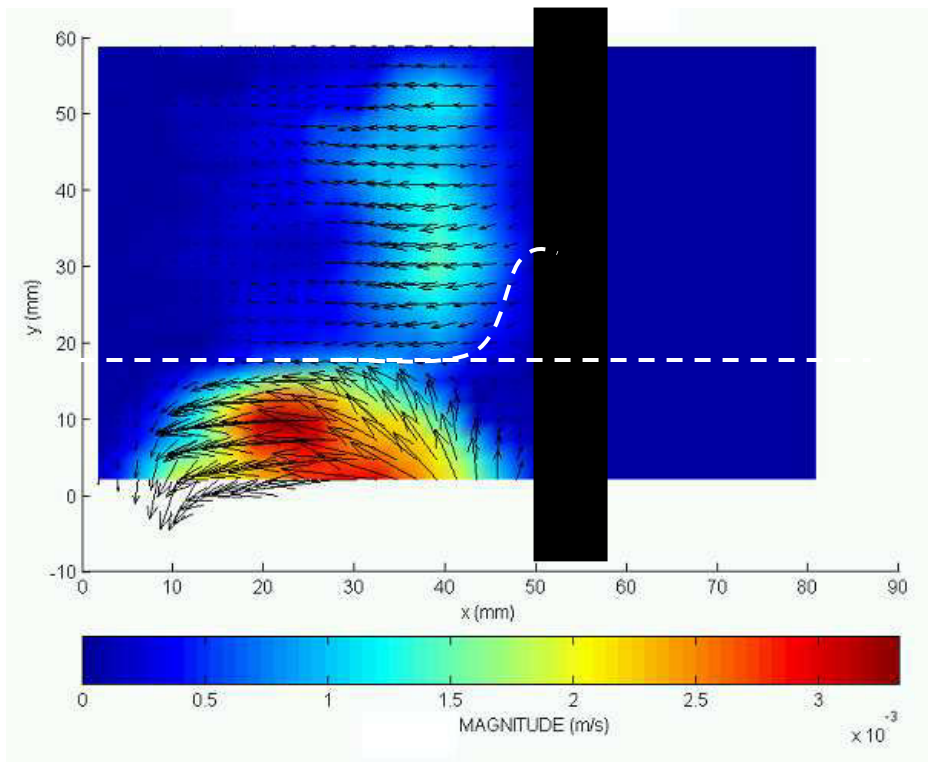


Figure III.89. Mesure du champ de vitesse lors de l'ascension d'une interface composée d'eau et d'huile de silicone 100. Diamètre de l'axe de rotation de 10 mm (acier). $N = 500 \text{ tr.min}^{-1}$.

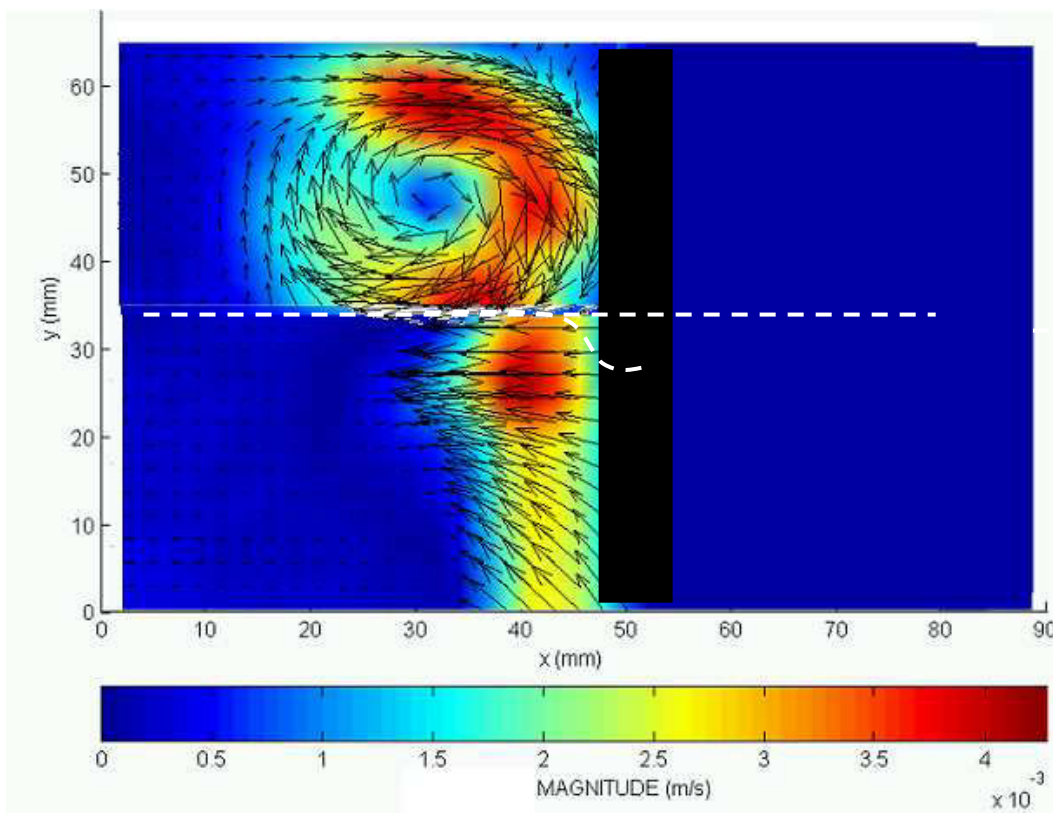


Figure III.90. Mesure du champ de vitesse lors de l'ascension d'une interface composée de HV45 65% et d'huile de silicone 10. Diamètre de l'axe de rotation de 10 mm (acier). $N = 600 \text{ tr.min}^{-1}$.

III.3.2.3. Instabilités d'écoulement de « Taylor-Couette »

Les instabilités d'écoulement responsables de l'amplification de l'effet Weissenberg ou encore de la montée ou descente d'interface pour les fluides newtoniens, ont pu être visualisées par PIV. En ajoutant quelques gouttes du fluide tracé à une forte concentration dans la phase huileuse, la différence de concentration due à la non-homogénéité du milieu fait apparaître la trajectoire du fluide lors de la transition du régime d'écoulement azimuthal vers l'écoulement instable, comme l'illustre la figure III.91.

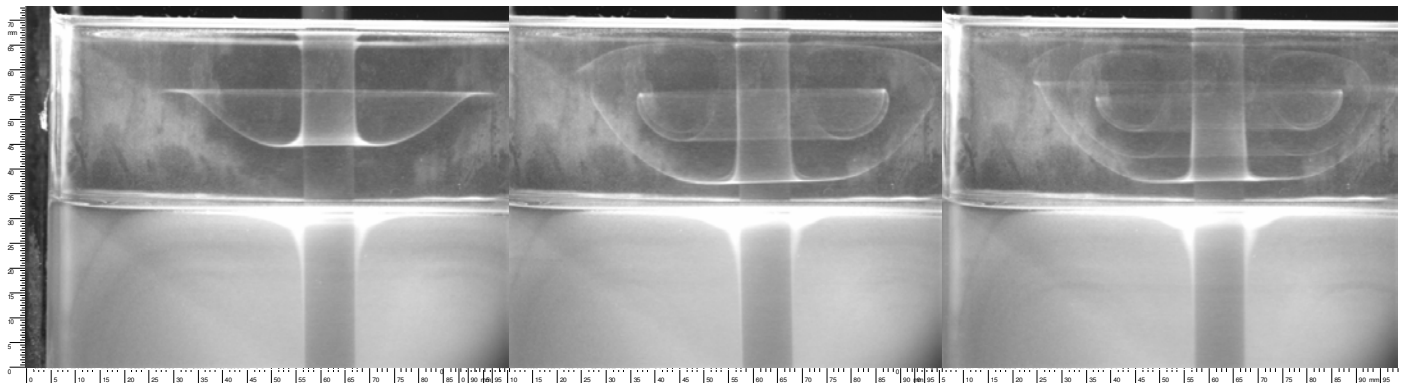


Figure III.91. Transition entre l'écoulement laminaire et les instabilités de Couette-Taylor observées par inhomogénéité du milieu dans la phase supérieure. Système HV45 50%/HS 100. $D_{axe} = 10 \text{ mm}$ (acier). $N =$

De la même façon, des rouleaux de Taylor ont pu être observés dans la phase lourde (fig. III.92.).

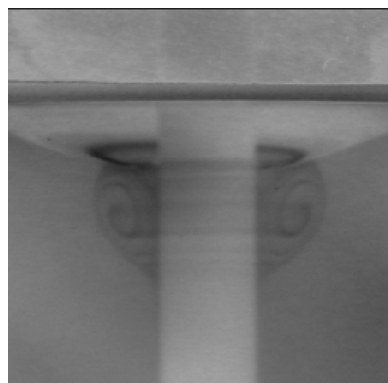


Figure III.92. Instabilité d'écoulement observée par inhomogénéité du milieu dans la phase inférieure.

Cette étude préliminaire a permis de valider et de conforter certaines observations présentes dans la littérature (Beavers et Joseph, 1968, ou encore Bonn *et al.*, 2004). Il a été possible de comprendre certains phénomènes liés à la déformation d'interfaces. Néanmoins, la réalisation de ces interfaces verticales font intervenir des forces de gravité et celles-ci peuvent affecter le phénomène d'ascension ou de descente de l'interface. Afin de s'affranchir de l'effet de gravité, l'étude a été orientée vers des interfaces verticales. Cette réalisation nécessite donc de changer d'échelle et de réaliser des déplacements d'interfaces submillimétriques (quelques centaines de micromètres). L'utilisation de technique de μ -PIV s'est donc avérée nécessaire compte tenu de l'échelle des phénomènes mis en jeu. Elle permettra notamment de caractériser les écoulements dans la partie du fluide en déplacement, ce qui n'a pu être réalisé à l'échelle mesoscopique.

III.3.3. Mise en œuvre de l'effet Weissenberg à l'échelle microscopique

Notre étude se focalise sur des interfaces verticales composées d'huile et d'un fluide newtonien ou non-newtonien juxtaposé comme le montre la figure III.93. Pour que cette interface reste verticale, des conduites de quelques millimètres ont été utilisées afin que les forces de capillarité soient plus importantes que les forces de gravité.

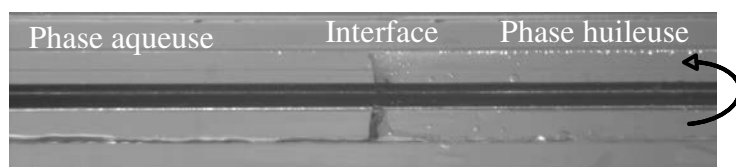


Figure III.93. Photographie de la conduite de section carrée de 4 mm et de l'axe de rotation en tungstène de 1,6 mm

Le montage expérimental est constitué d'un canal à base carrée de 4×4 mm en plexiglas et de qualité optique, d'une longueur de 70 mm nous permettant ainsi d'y introduire au centre un axe de rotation suffisamment long pour s'assurer d'avoir une vitesse uniforme le long de la conduite. L'axe utilisé est en tungstène, un métal très dur, diminuant ainsi les vibrations dues aux hautes vitesses de rotation. Des diamètres de 1,6 mm, 1 mm et 500 μ m ont été utilisés pour les différentes expériences. Par convention, et ce dans toute cette étude, la phase aqueuse (eau et HV45 à différentes concentrations) sera positionnée à gauche et la phase huileuse (huile de silicone 10, 50, 100 et 1000) à droite de l'interface verticale liquide-liquide.

III.3.3.1. Cas des fluides non-newtoniens

Les premières observations expérimentales effectuées sur des fluides non-newtoniens en contact avec une phase huileuse sont présentées ci-dessous. On s'intéresse dans un premier temps à l'interface PAAm 1,25% / huile de silicone 100. En augmentant progressivement la vitesse de rotation de l'axe, on observe une amplification du déplacement de l'interface qui peut atteindre plusieurs millimètres et qui s'effectue de la phase non newtonienne vers la phase huileuse. La figure III.94 montre le déplacement de l'interface en fonction de la vitesse de rotation.

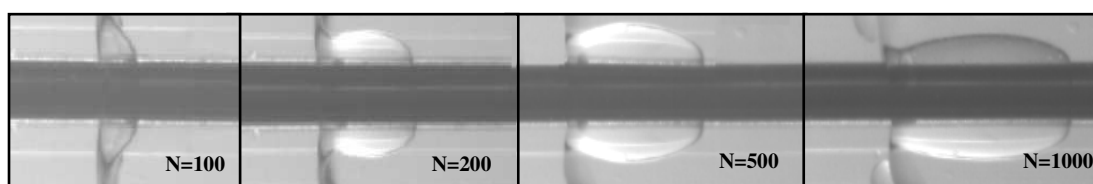


Figure III.94. Evolution du déplacement de l'interface pour le système PAAm 1,25% (à gauche) / huile de silicone 100 (à droite) en fonction de la vitesse de rotation de l'axe N (tr/min). Diamètre de l'axe de 1,6 mm (W).

L'écoulement créé par la rotation de l'axe induit dans la phase non newtonienne des contraintes normales. Cette anisotropie des contraintes normales conduit tout comme pour l'effet Weissenberg macroscopique à pousser le fluide vers l'axe, ce qui engendre son déplacement vers la phase huileuse. L'effet Weissenberg est donc réalisable horizontalement et à l'échelle millimétrique, ce qui permet de l'étudier en s'affranchissant de toutes les forces de gravités. On remarque que plus la vitesse de rotation est importante, plus cet effet sera amplifié augmentant ainsi le déplacement du fluide vers la droite. On représente sur la figure III.95, l'évolution de la longueur du déplacement de l'interface en fonction de la vitesse de rotation pour différentes concentrations de la solution polymérique de PAAm.

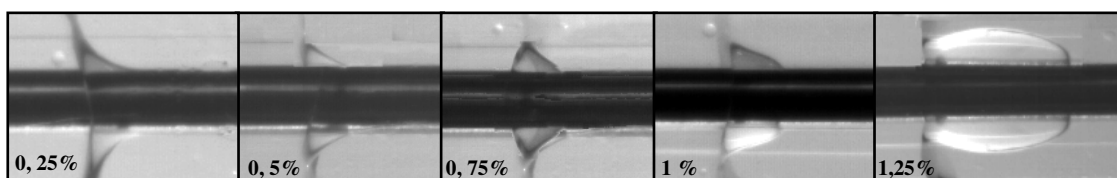


Figure III.95. Evolution de l'influence de la concentration du fluide non-newtonien sur le déplacement de l'interface PAAm (à gauche) / huile de silicone 100 (à droite) à la vitesse de rotation de 1000 tr/min¹. $D_{axe} = 1,6$ mm (W).

Les résultats relatifs à l'évolution de la longueur de déplacement de l'interface en fonction de la vitesse de rotation sont reportés sur la figure III.96 pour les différentes concentrations de PAAm.

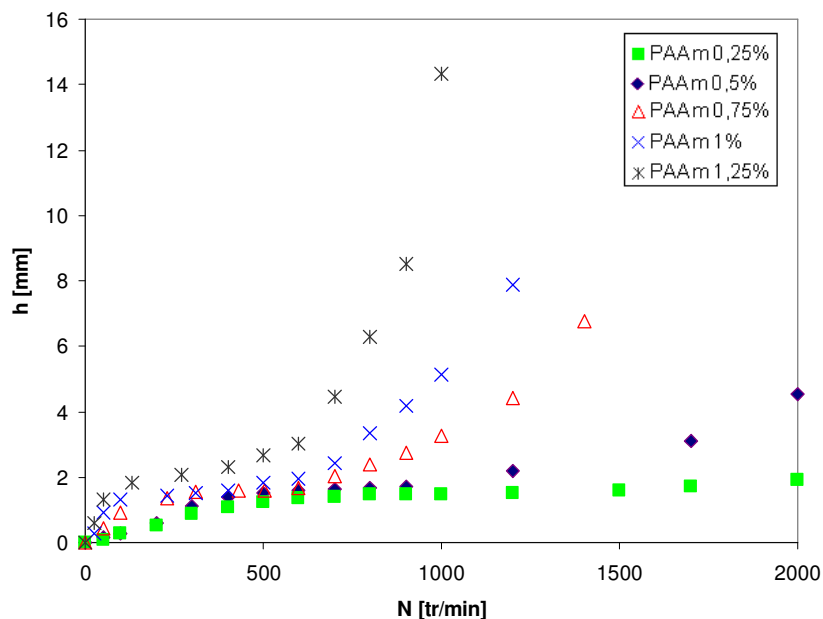


Figure III.96. Evolution du déplacement de l'interface pour différentes concentrations de PAAm en contact avec de l'huile HS100 en fonction de la vitesse de rotation N (tr/min). $D_{axe} = 1,6$ mm.

Sur cette figure, on remarque que plus la concentration en PAAm est élevée, plus le déplacement est important. Ceci permet de mettre en évidence l'importance de la viscoélasticité et des contraintes normales de cet effet purement non-newtonien. Cependant, après une augmentation rapide de la longueur de déplacement de l'interface, on obtient d'abord un plateau correspondant à une longueur d'étirement constante, suivi d'une très forte amplification. Cependant, nous ne pouvons rien conclure à présent quant aux phénomènes conduisant à cette amplification, et qui pourraient être attribués aux propriétés élastiques ou encore à un écoulement secondaire induit par la géométrie comme ce fut le cas aux plus grandes échelles. Dans le but d'approfondir les paramètres responsables de ce phénomène, le diamètre de l'axe de rotation a été modifié. Différents diamètres ont été utilisés : 0,5 ; 1 et 1,6 mm. Dans le but de quantifier au mieux l'influence du diamètre de l'axe sur la longueur de déplacement, nous comparerons ici les résultats obtenus avec le système PAAm 1,25%/HS 100 qui fournit un déplacement maximal de l'interface permettant de ce fait d'améliorer la précision des mesures. Les images obtenues par caméra rapide avec ce système sont reportées sur la figure III.97 pour une vitesse de rotation fixée tandis que la figure III.98 regroupe l'ensemble des résultats en fonction de la vitesse de rotation.

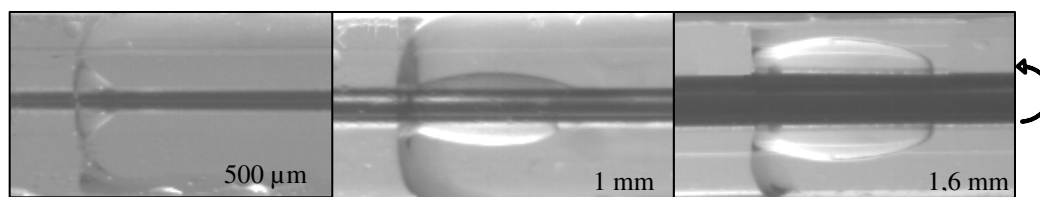


Figure III.97. Evolution de l'influence du diamètre de l'axe de rotation sur la déformation de l'interface PAAm 1,25% (à gauche) / huile de silicone 100 (à droite) à la vitesse de rotation $N = 1000 \text{ tr/min}$.

Comme précédemment, la figure III.98 montre une augmentation rapide de la longueur de déplacement en fonction de la vitesse, suivie d'une transition stationnaire où le déplacement varie peu et enfin une augmentation importante lorsque la vitesse de rotation augmente. La première partie de l'augmentation est sensiblement la même pour les trois diamètres étudiés mais il est à noter que l'augmentation finale est d'autant plus forte que le diamètre de l'axe est important. La vitesse tangentielle au sein du fluide étant proportionnelle au rayon de l'axe, on en déduit que cette forte augmentation résulte de l'inertie de l'écoulement et non plus seulement de la concentration en polymère de la phase aqueuse, d'autant que ce phénomène apparaît au delà d'une certaine vitesse d'écoulement.

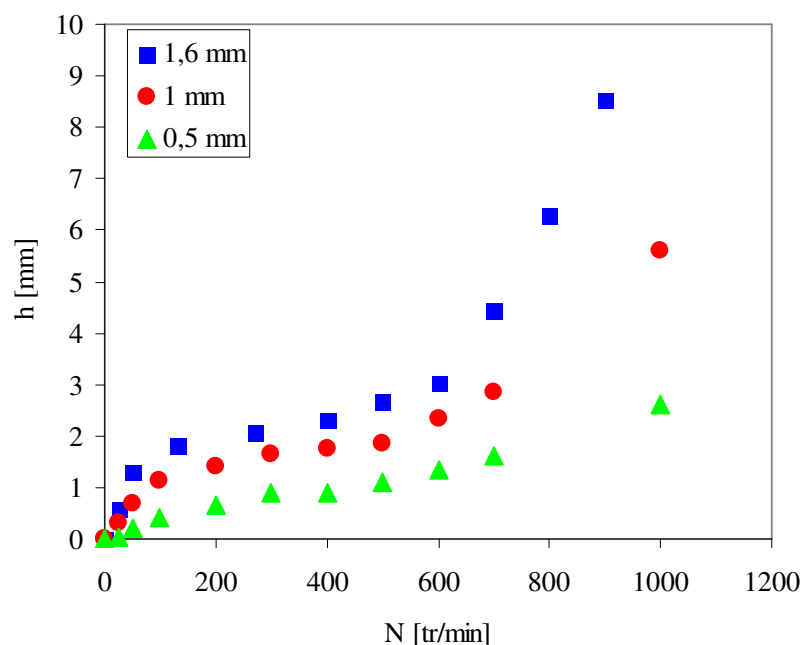


Figure III.98. Influence du diamètre de l'axe de rotation sur l'évolution du déplacement de l'interface pour l'interface constituée de PAAm 1,25%/HS 100 en fonction de la vitesse de rotation N .

L'influence de la viscosité de l'huile a également été étudiée. Trois huiles de silicone de différentes viscosités ont été utilisées. Les figures III.99 et III.100 représentent l'évolution du déplacement de l'interface en fonction de la vitesse de rotation de l'axe pour différentes interfaces.

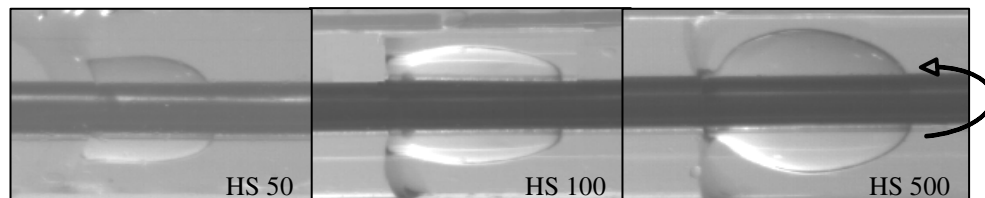


Figure III.99. Evolution du déplacement de l'interface en fonction de la viscosité de l'huile pour une interface composée de PAAm 1,25% (à gauche) et d'huile de silicone (à droite) à la vitesse de rotation $N = 1\,000\text{ tr/min}$.

On observe une allure similaire de l'évolution du déplacement en fonction de la vitesse de rotation. On remarque ainsi que le déplacement de l'interface obtenu à faible vitesse de rotation et pour une concentration donnée en PAAm est approximativement le même. Cependant, à grandes vitesses, plus la phase huileuse est visqueuse, plus le déplacement est important pour une concentration de PAAm fixée.

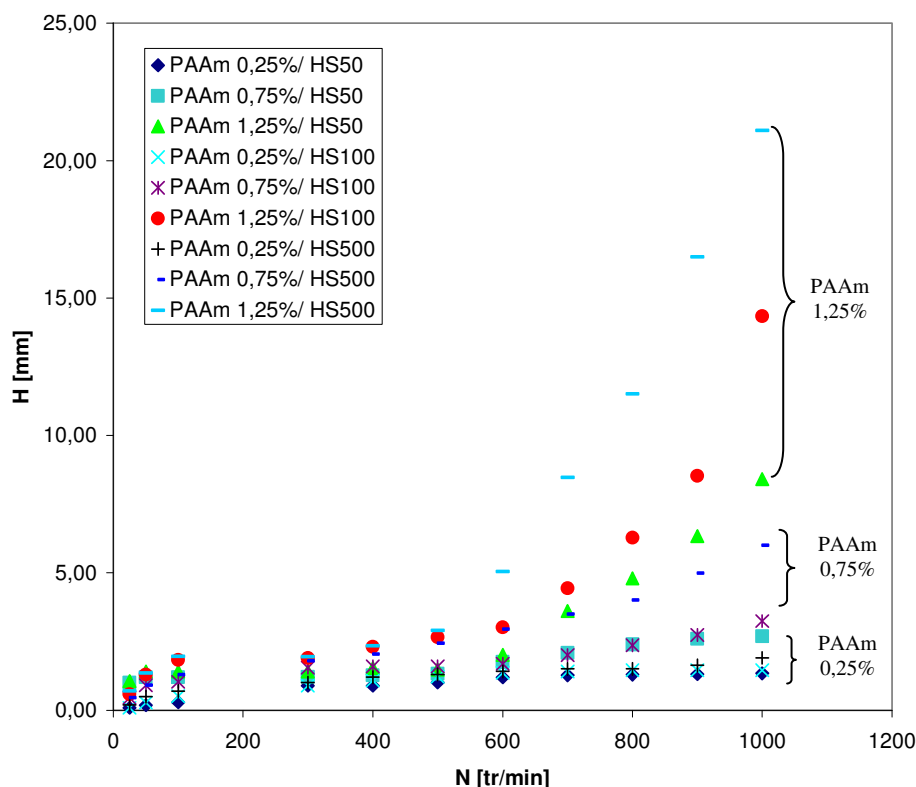


Figure III.100. Influence de la viscosité de l'huile sur l'évolution du déplacement de l'interface en fonction de la vitesse de rotation N .

Concernant la tension interfaciale, il est à noter, comme l'ont remarqué Bonn *et al.* (2004) pour les fluides newtoniens à l'échelle macroscopique, qu'elle a une influence mineure sur le déplacement. Plusieurs tensions interfaciales ont été testées sans obtention de différences majeures sur la longueur du déplacement, cependant certaines différences ont été observées au niveau de la forme de l'interface déformée.

La viscosité des fluides et la taille de l'axe semblent donc être les paramètres majeurs du phénomène présenté. Le déplacement serait donc favorisé par des forces d'inerties plus importantes dans la phase aqueuse que dans la phase huileuse, ce qui est le cas, lorsque l'on choisit des huiles fortement visqueuses.

Si l'on s'intéresse à l'allure des courbes précédentes, on observe une similitude entre elles. En effet, comme le montre la figure III.101, elles ont toutes une évolution similaire : dans un premier temps, une augmentation rapide de la longueur de déplacement en fonction de la vitesse de rotation suivie d'un palier, puis une seconde augmentation intervient au delà d'une certaine fréquence.

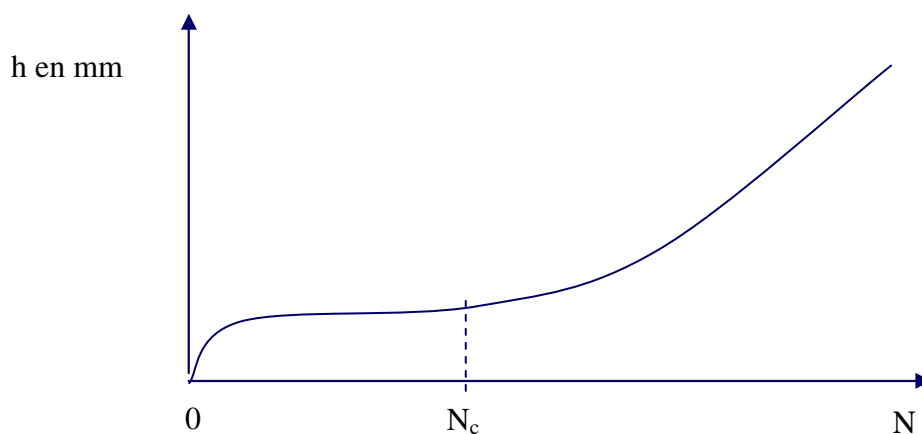


Figure III.101. Schéma représentant l'allure du déplacement de l'interface en fonction de la vitesse de rotation N .

Pour tenter d'interpréter l'ensemble des résultats obtenus pour toutes les interfaces, on entreprend une étude adimensionnelle. Etant donné les types de forces intervenant et la viscoélasticité des fluides, les nombres de Déborah et de Taylor pourraient intervenir dans le phénomène de déplacement de l'interface.

Formellement, le nombre de Deborah est le rapport entre le temps de relaxation, caractérisant la fluidité intrinsèque d'un matériau, et l'échelle de temps caractéristique d'une expérience testant la réponse du matériau. Plus le nombre de Deborah est petit, plus le matériau apparaît fluide.

On le définit donc comme suit :
$$De = \frac{\lambda_k}{\lambda_t} \quad (III.36)$$

avec : λ_k : temps caractéristique du fluide en s (Modèle de Carreau, cf. chapitre I)

λ_t : le temps caractéristique d'observation de l'expérience en s

La longueur de déplacement est par ailleurs rapportée au diamètre de l'axe d. On représente ainsi l'évolution de ce paramètre adimensionnel en fonction du produit des nombres de Taylor et de Deborah ($De^{2/3} Ta^{1/6}$) sur la figure III.102 ci-dessous.

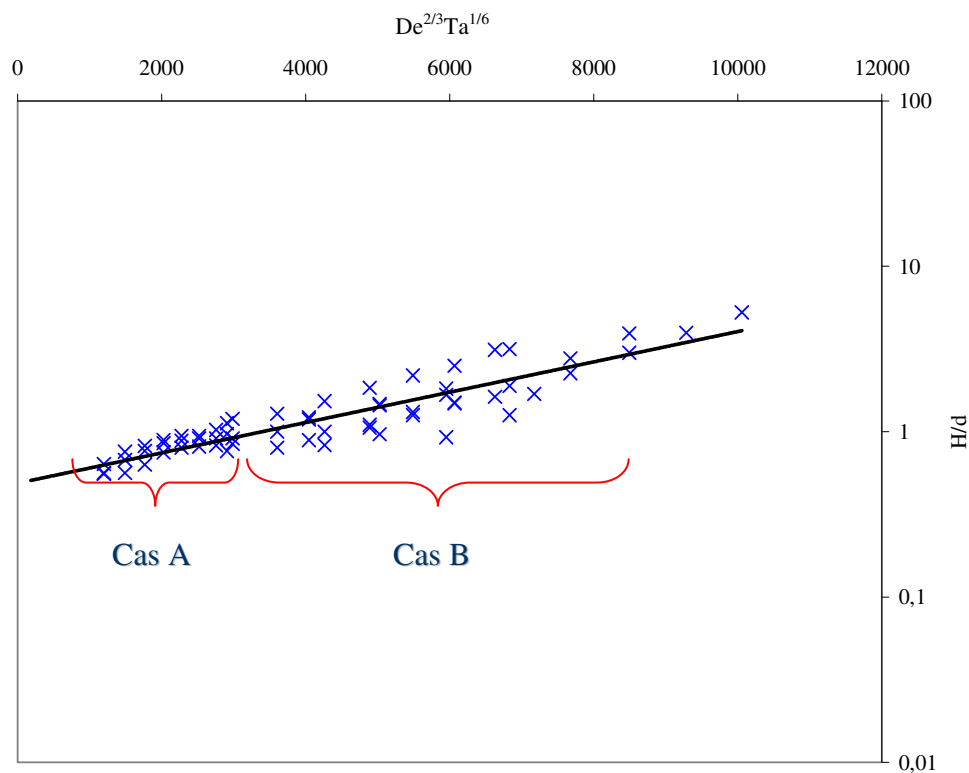


Figure III.102. Evolution du rapport adimensionnel h/d en fonction du nombre de Taylor et du nombre de Deborah.

On observe, d'après la figure III.102 que l'évolution de h/d en fonction des nombres adimensionnels est de type exponentiel. On peut établir la corrélation suivante permettant d'exprimer la longueur du déplacement h en fonction des paramètres de l'écoulement.

$$\frac{h}{d_{axe}} = \frac{1}{6} Ta^{\frac{1}{6}} De^{\frac{2}{3}} \left(\frac{\mu_h}{\mu_f} \right)^{\frac{1}{10}} \quad (III.37)$$

$$De \in [70-7500] \quad Ta \in [3,1 \times 10^{-4}-0,5] \text{ et } d \in [0,5-1,6 \text{ mm}] \text{ et } \mu_h/\mu_f \in [0,47-211]$$

L'erreur moyenne obtenue est de 26% pour 98 points expérimentaux. Il est à noter que la corrélation donne de bons résultats pour des vitesses peu élevées (4% d'écart avec les valeurs expérimentales), cependant, passé une certaine vitesse, l'écart entre l'expérience et la corrélation est plus important (20% d'erreur). Cela permet ainsi d'envisager l'existence de deux régimes d'écoulements :

- cas A : Faibles vitesses de rotations ;
- cas B : Grandes vitesses de rotations.

Ainsi, il semblerait que la partie où la corrélation donne de bons résultats corresponde à la première partie de la courbe obtenue sur la figure III.102. L'expérience et l'analyse basée sur les nombres adimensionnels pour cette partie sont en très bon accord. On pourrait donc supposer que cette analyse prenne bien en compte les effets des contraintes normales classiques de l'effet Weissenberg intervenant aux faibles vitesses de rotation et que, passé une certaine vitesse de rotation, un effet indépendant des propriétés visqueuses du fluide intervient et engendre la seconde augmentation du déplacement observée. Cette dernière pourrait résulter par ailleurs d'un éventuel couplage entre les propriétés rhéologique du fluide et les instabilités d'écoulement.

Pour justifier cette dernière hypothèse, une étude μ -PIV est entreprise afin de visualiser l'écoulement et vérifier l'apparition d'éventuelles instabilités aux grandes vitesses de rotation. De plus pour s'affranchir des effets purement non newtoniens et vérifier l'hypothèse du déplacement de l'interface due aux instabilités d'écoulement, une étude sera entreprise en utilisant des fluides newtoniens après cette étude μ -PIV.

Cas A : Faibles vitesses de rotation

Nous travaillons d'abord à des faibles vitesses de rotation. Des particules de latex hydrophile permettant de tracer la phase aqueuse ont été utilisées. La figure III.103 représente le champ de vitesse obtenu par micro-PIV pour une interface composée de PAAm 0,5% et d'huile de silicone 100 à la vitesse de 300 tr/min (avant l'apparition du phénomène « d'amplification » $N_c \approx 600$ tr/min).

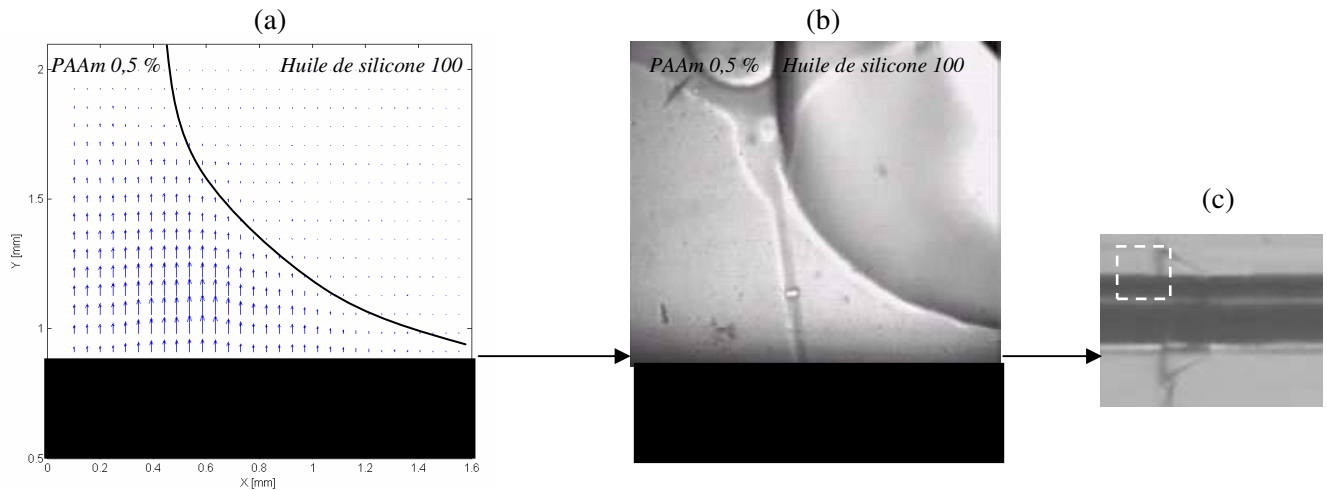


Figure III.103. (a) Champ de vitesse obtenu pour l'interface PAAm 0,5%/HS100 à la vitesse de 300 tr/min. (b) Image du déplacement de l'interface prise au microscope. (c) Image du déplacement prise à l'aide de la caméra rapide.

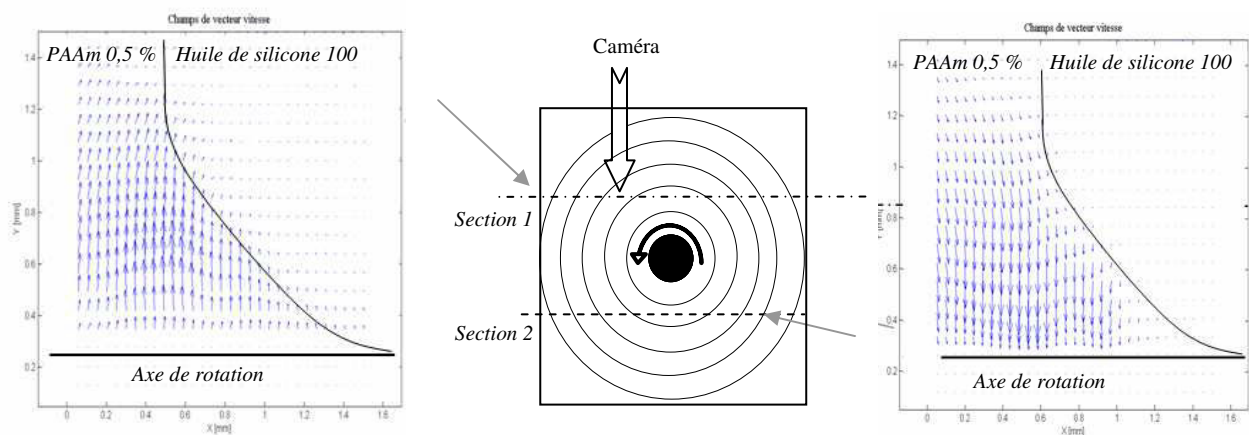


Figure III.104. Champs de vitesse mesurés par μ -PIV pour l'interface PAAm 0,5%/HS100 à la vitesse de rotation de 300 tr/min pour différentes profondeurs dans la micro-conduite.

L'image n'est pas prise au centre de la canalisation, mais légèrement au dessous ou au dessus de l'axe comme l'illustre la figure III.104. En effet, le mouvement étant circulaire, et étant donné que la prise de vue ne peut se faire que verticalement, pour mettre en évidence le mouvement azimuthal de l'écoulement, il est nécessaire de mesurer des champs de vitesse légèrement au dessus et au dessous de l'axe de rotation comme le montre la figure III.105

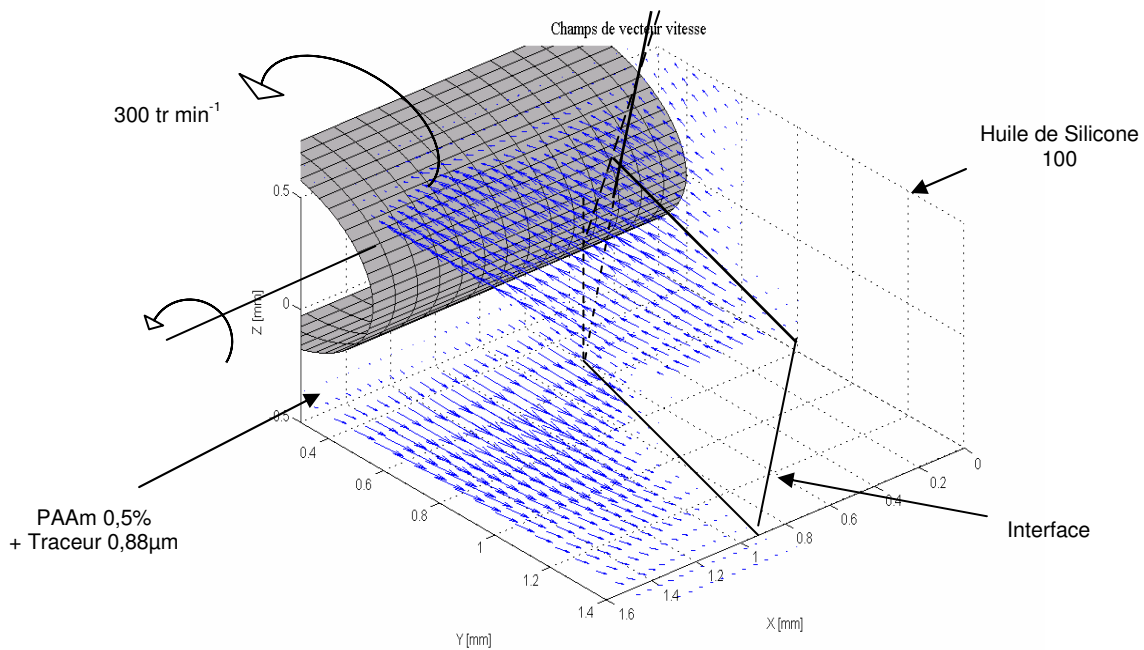


Figure II.105. Représentation en 3D des champs de vitesses mesurés par micro-PIV pour l'interface PAAm 0,5%/HS100 – 300 tr/min

La figure III.106 montre le même écoulement azimuthal pour une viscoélasticité plus grande de la phase aqueuse polymérique permettant ainsi l'obtention d'une l'interface beaucoup plus allongée.

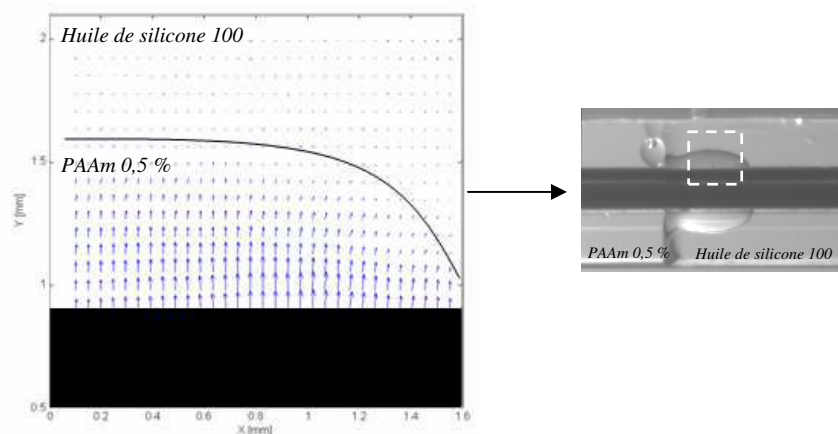


Figure III.106. Champ de vitesse mesuré par µ-PIV pour l'interface PAAm 1,25%/HS100 – 300 tr/min.

Tous ces champs de vitesse mesurés en régime permanent et montrent un écoulement azimuthal parfait avec une déformation de l'interface stable. La figure III.107 correspond au champ de vitesse obtenu lors d'une augmentation de la vitesse de rotation du moteur de 300 à 600 tr/min. On y voit apparaître le déplacement du fluide le long de l'axe sous l'action des contraintes normales.

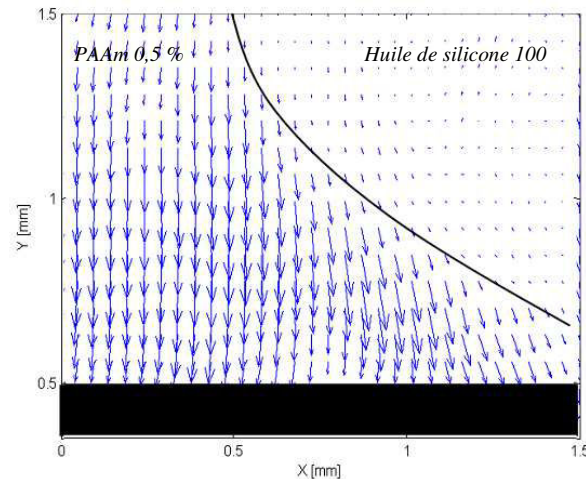


Figure III.107. Champ de vecteurs vitesse mesuré par micro-PIV pour l'interface PAAm 1,25%/HS100 lors de l'augmentation de la vitesse de rotation de l'axe de 300 tr/min à 600 tr/min.

La technique μ -PIV nous permet ici de suivre l'écoulement dans la partie du fluide en déplacement, ce qui correspond à une couche de fluide de quelques centaines de micromètres. Cette technique pourra donc nous fournir des renseignements complémentaires que nous n'avons pu obtenir précédemment par PIV.

Des expériences ont ensuite été réalisées à des vitesses de rotation de l'axe supérieures à 500 tr/min (vitesse critique d'amplification). La figure III.108.a représente le champ de vitesse obtenu pour l'interface composée de PAAm 1,25%/HS100 à la vitesse de rotation de l'axe de 700 tr/min. On constate alors la présence d'une instabilité de l'écoulement.

En effet, l'écoulement circulaire de base s'étant transformé en un écoulement contra-rotatif. Cet écoulement a tendance à pousser le fluide de la gauche vers la droite, engendrant une augmentation du déplacement du fluide. En effet, cet écoulement secondaire ajouté aux contraintes normales pousse le fluide nettement plus que si le fluide était en contact avec de l'air. Ceci peut donc expliquer l'amplification de l'effet Weissenberg.

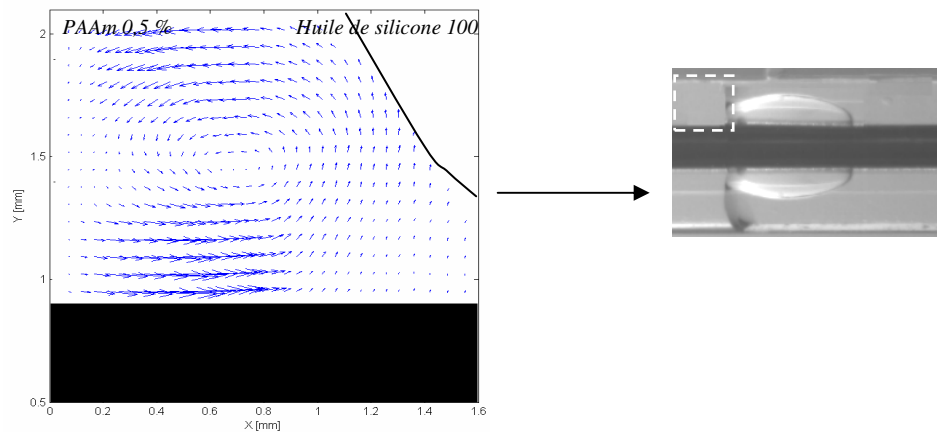


Figure III.108.a Champ de vecteurs vitesse mesuré par micro-PIV pour l'interface PAAm 1,25%/HS100 – 700 tr/min.

La figure III.108.b montre également les champs de vitesse dans la partie ascendante du fluide pour la même interface que précédemment. On observe toujours la boucle d'instabilité au niveau de l'interface et on constate que l'écoulement est resté azimuthal dans la partie ascendante du fluide. La zone entre les deux écoulements est difficilement mesurable avec précision en raison de reflets au niveau de l'interface.

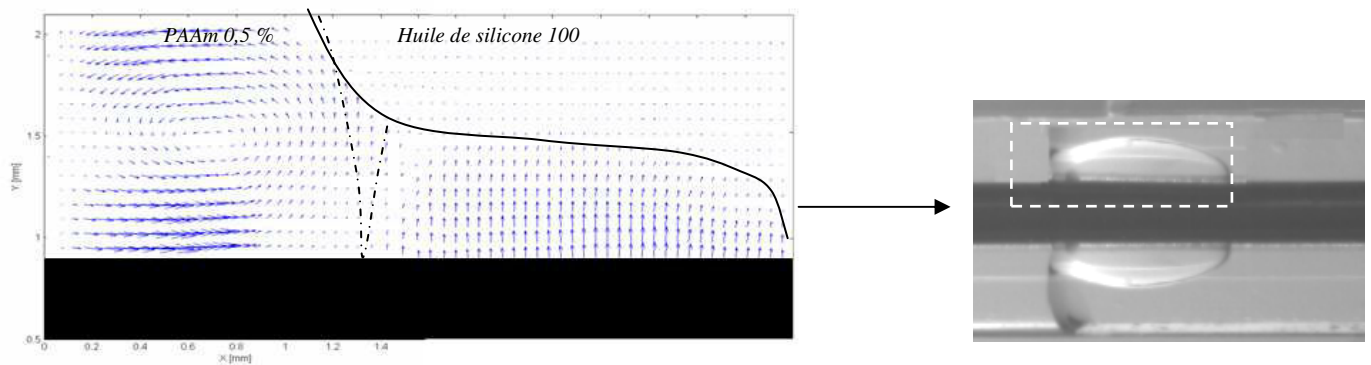


Figure III.108.b Champ de vitesse mesuré par micro-PIV pour l'interface PAAm 1,25%/HS100 – 800 tr/min

III.3.3.2. Cas des fluides newtoniens

Des expériences similaires aux précédentes ont été réalisées en utilisant des fluides newtoniens pour comprendre l'effet d'un rapport de viscosité des phases en l'absence de viscoélasticité. Les premières images obtenues en utilisant une interface composée d'eau et d'huile de Silicone 100 sont représentées sur la figure III.109. On y observe un déplacement de quelques millimètres de l'interface, de l'eau vers l'huile, en augmentant la vitesse de rotation de l'axe. Ce déplacement est beaucoup moins marqué que pour les fluides non newtoniens étudiés précédemment.

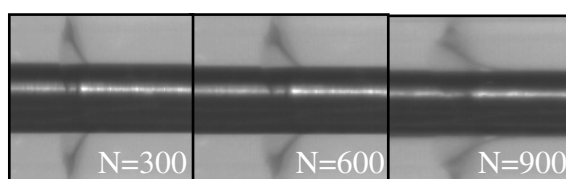


Figure III.109. Image du déplacement de l'interface eau /huile de silicone 100 en fonction de la vitesse de rotation N (tr/min).

Pour pouvoir comparer l'influence de la viscosité de la phase huileuse, trois interfaces différentes entre l'eau et de l'huile de silicone 10, 100 et 1000 ont été étudiées.

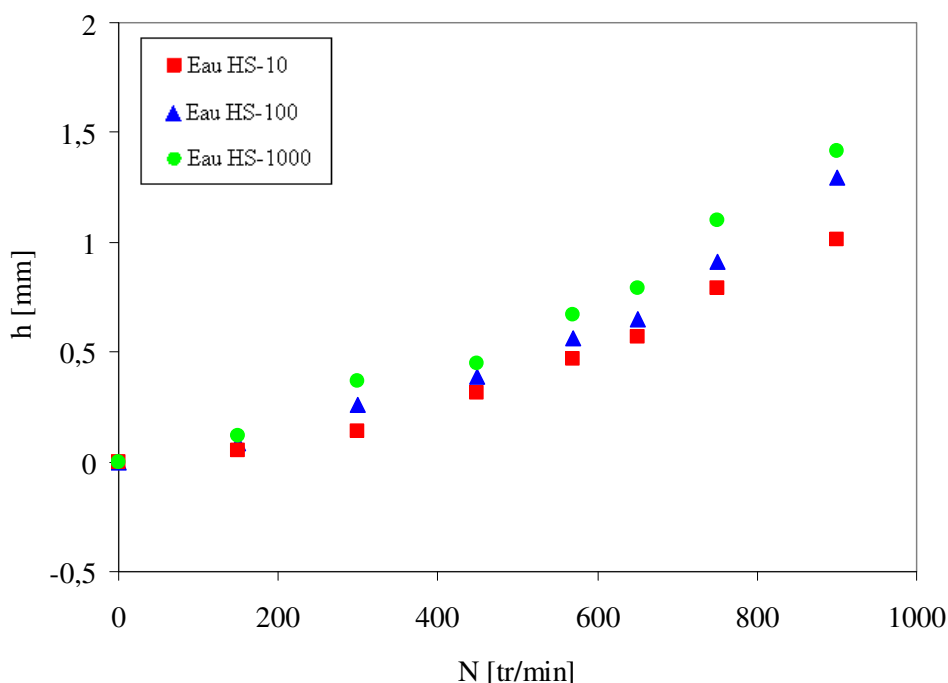


Figure III.110. Evolution du déplacement de l'interface eau-huile pour différentes viscosités de l'huile de silicone en fonction de la vitesse de rotation N (tr/min). Diamètre de l'axe de 1,6 mm.

On obtient alors, comme dans le cas des fluides non-newtoniens un déplacement de l'interface de l'eau vers l'huile de silicone. Ce déplacement est d'autant plus important que l'huile est visqueuse, l'eau étant moins visqueuse que toutes les huiles utilisées.

Sachant que l'eau ne possède pas de propriétés viscoélastiques, son ascension le long de l'axe du fluide dans la phase huileuse est assez inattendue. Néanmoins, ceci est en accord avec les observations effectuées par Bonn *et al.* (2004) sur les interfaces verticales, qui présentaient une ascension de l'eau vers l'huile en raison des instabilités dues à l'écoulement dans la cuve. Il semblerait donc, que pour l'eau, il existe des instabilités qui pousseraient l'eau vers la phase huileuse dans toutes les configurations réalisées.

Pour bien comprendre ce phénomène, d'autres expériences ont été réalisées en utilisant, trois huiles différentes (HS10, HS100 et HS1000) et cinq concentrations d'Emkarox (HV45 20%, 35%, 50%, et 65%) ce qui permet de travailler avec 12 interfaces différentes.

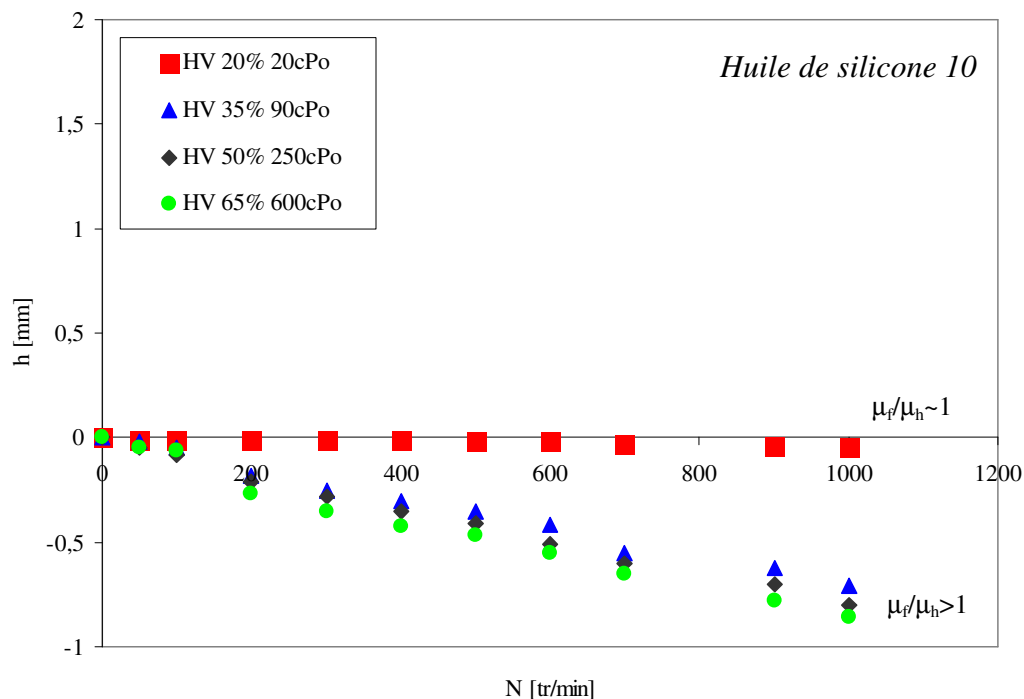


Figure III.111. Evolution du déplacement de l'interface Emkarox HV45 – huile de silicone 10 pour différentes concentrations de Emkarox en fonction de la vitesse de rotation N (tr/min). Diamètre de l'axe de 1,6 mm

Pour l'huile de silicone 10 (Fig. III.111), les résultats sont différents des résultats obtenus précédemment en présence d'eau. Pour les fluides newtoniens (HV45 35% 50% et 65%) dont la viscosité est plus grande que l'huile, on observe un déplacement dans le sens inverse, soit de l'huile vers le fluide ; tandis que pour le fluide (HV45 20%) dont la viscosité est voisine de celle de l'huile, on observe presque un équilibre de l'interface, ce qui est illustré sur la figure III.113.

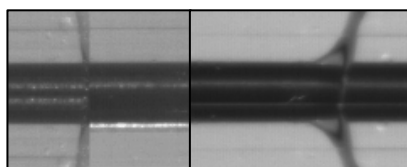


Figure III.112. Images des interfaces obtenues avec les systèmes huile HS10/HV₄₅ 20% à gauche et HS10/HV₄₅ 65 % à droite.

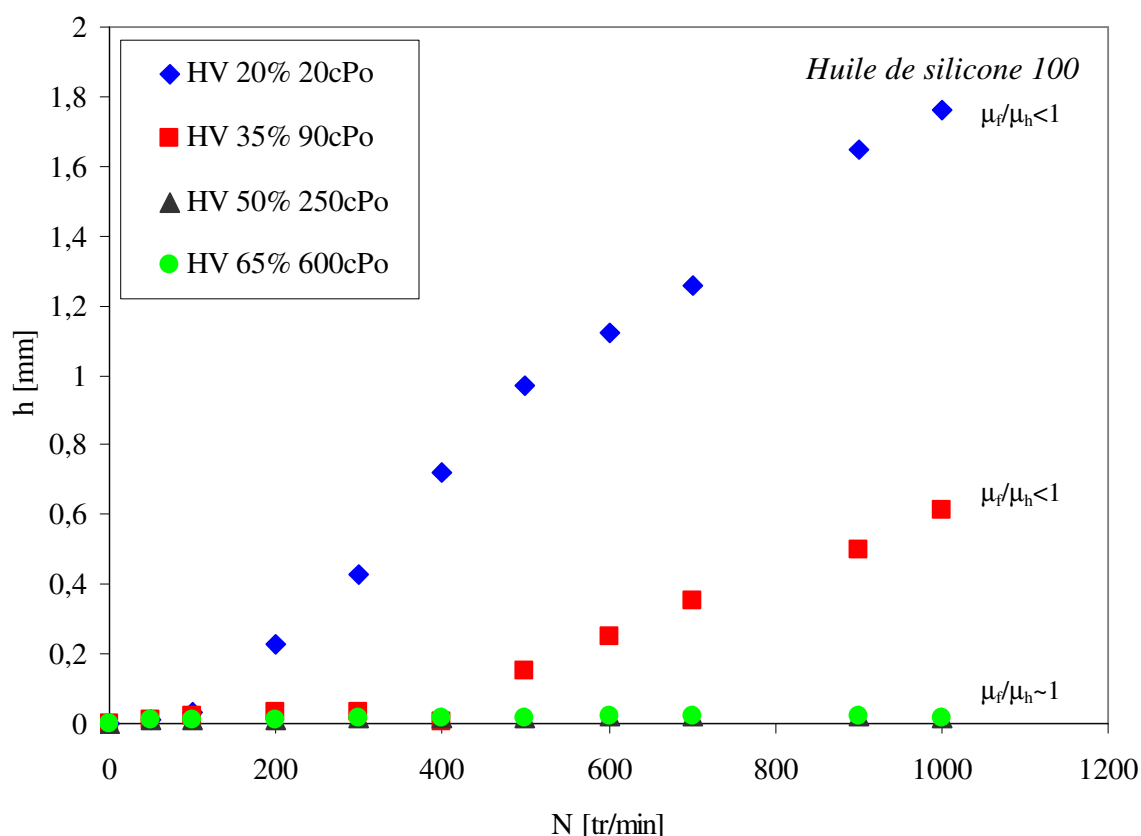


Figure III.113. Evolution du déplacement de l'interface Emkarox HV45 – huile de silicone 100 pour différentes concentrations du Emkarox en fonction de la vitesse de rotation N (tr/min). Diamètre de l'axe de 1,6 mm

Pour l'huile de silicone 100 (Figure III.113), on obtient des résultats sensiblement proche de ceux obtenus pour l'eau. Encore une fois pour les fluides dont la viscosité est plus faible que celle de l'huile (HV45 20% et 35%), on observe un déplacement dans le sens du fluide vers l'huile et pour les fluides dont la viscosité est du même ordre de grandeur, il ne se passe rien au niveau de l'interface comme le montre aussi la figure III.114.

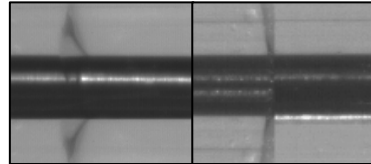


Figure III.114. Image des interfaces obtenues avec les systèmes huile HS100/ HV45 20% à gauche et HS100/ HV45 65 % à droite.

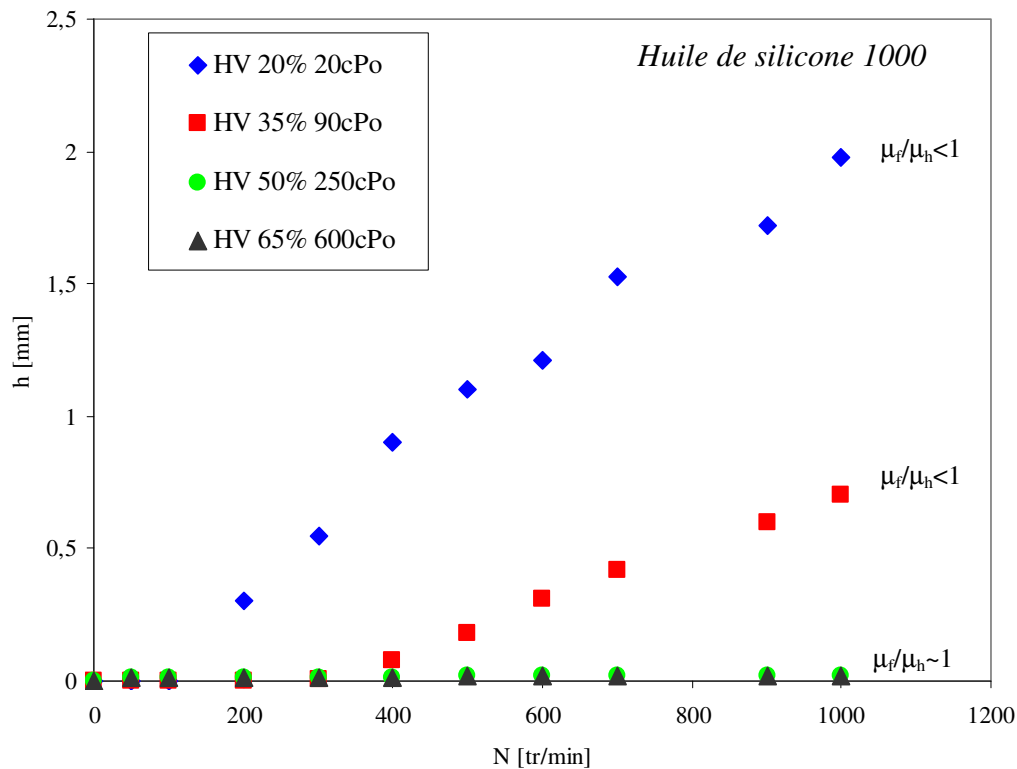


Figure III.115. Evolution du déplacement de l'interface Emkarox HV45 – huile de silicone 1000 pour différentes concentrations du Emkarox en fonction de la vitesse de rotation N (tr/min). Diamètre de l'axe de 1,6 mm.

Enfin les observations précédentes se confirment encore en présence d'huile de silicone HS1000 comme le montre la figure III.115. Le déplacement de l'interface a lieu du fluide

aqueux vers l'huile pour les fluides nettement moins visqueux que l'huile (HV45 20% et 30%), aucun déplacement n'est obtenu pour les deux autres fluides tant que leur viscosité reste du même ordre de grandeur. Ainsi le phénomène de déplacement dépend pour une grande partie du rapport des viscosités entre les deux phases.

On obtient donc, trois types de déplacements différents résumés sur la figure III.116. De plus, on remarque sur cette figure que le déplacement n'est pas immédiat mais n'apparaît que lorsque l'on dépasse une certaine valeur de la vitesse de rotation critique N_c .

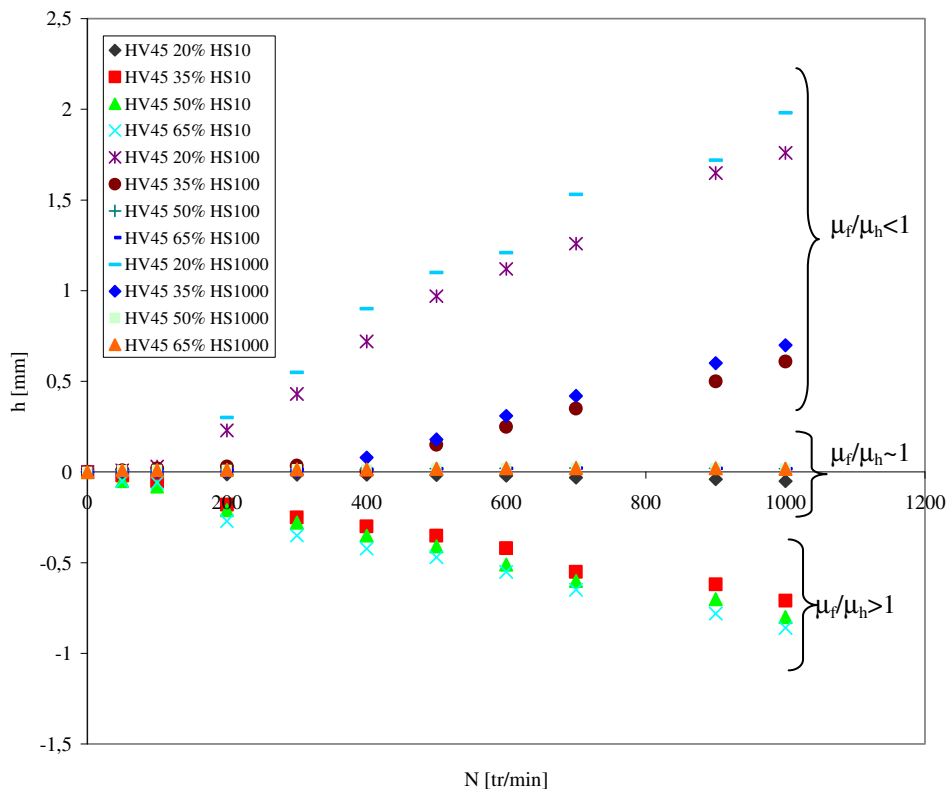


Figure III.116. Evolution du déplacement de l'interface pour l'ensemble des 12 interfaces étudiées HV45/huile de silicone.

En résumé, il semble que le rapport de viscosités des deux phases ait une importance primordiale dans le sens du déplacement de l'interface :

- si l'huile est la plus visqueuse, on observe un déplacement « positif », de la phase aqueuse vers l'huile ;
- si l'huile est la moins visqueuse, on observe un déplacement « négatif » de l'huile vers le fluide aqueux ;

- si l'huile et le fluide ont des viscosités sensiblement comparables, on observe un équilibre de l'interface de façon dynamique.

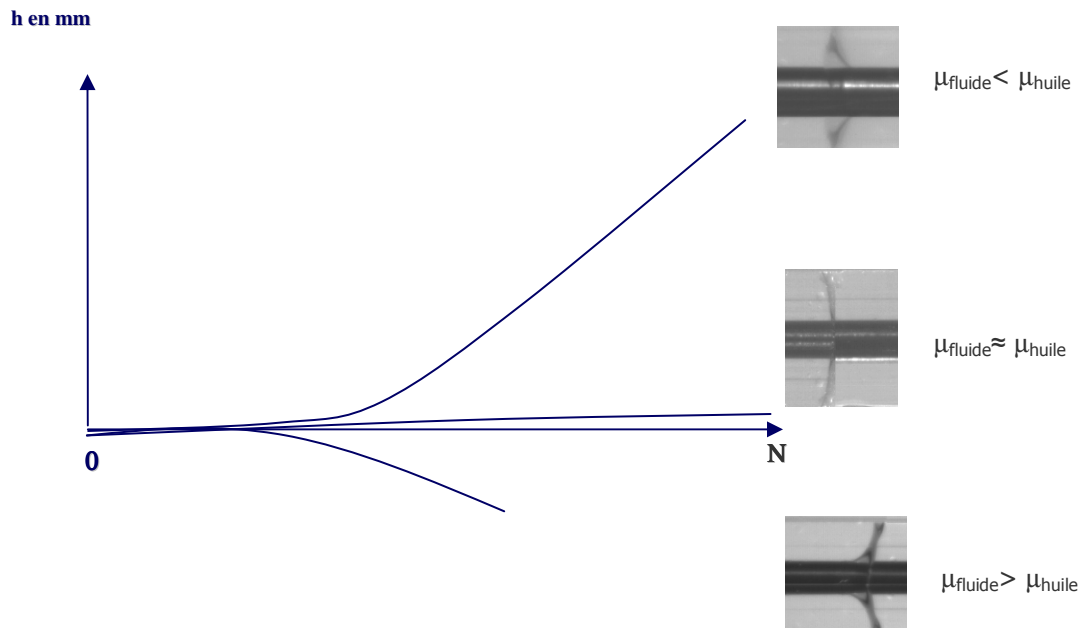


Figure III.117. Evolution du sens du déplacement de l'interface selon le rapport de viscosités des deux phases.

Cependant le rapport des viscosités ne semble pas être le paramètre déclenchant du phénomène. En effet, le déplacement, lorsqu'il a lieu, ne se produit qu'à partir d'une certaine valeur de la vitesse de rotation. Le rapport des viscosités est une condition nécessaire, et la force inertielle est une condition suffisante.

Pour les déplacements « positifs » ($\mu_{\text{fluide}} < \mu_{\text{huile}}$), on peut déduire à partir de la figure III.116 une augmentation linéaire de cette vitesse critique ω_c en fonction de la viscosité du fluide de la phase aqueuse. Il semble que dans ce cas, il existe un critère de déclenchement du phénomène qui dépend de la viscosité du fluide. Le déplacement négatif est observé pour les faibles viscosités de l'huile, et lorsqu'elles sont inférieures à celle de la phase aqueuse ($\mu_{\text{fluide}} > \mu_{\text{huile}}$), on constate à partir de la figure III.116 que la vitesse critique de déclenchement du déplacement est cette fois indépendante de la viscosité du fluide aqueux mais semblerait plutôt dépendre de la viscosité de l'huile. Ainsi la viscosité de la phase dans laquelle se produit l'instabilité semble être importante.

Il semblerait donc que la viscosité de la phase la moins visqueuse ait une grande importance sur la vitesse de rotation de déclenchement du phénomène de déplacement de l'interface dans

un sens ou dans l'autre (fig. III.117). Comme pour les fluides non-newtoniens, une étude adimensionnelle peut nous permettre de mettre en évidence différents régimes d'écoulement, de comprendre et d'évaluer la vitesse critique de déclenchement. Nous réutiliserons donc le rapport H/d adimensionnel caractérisant le déplacement ainsi que le nombre de Taylor qui caractérise l'importance de la rotation d'un fluide autour de l'axe de rotation ainsi que les propriétés rhéologiques utiles dans ce cas précis.

On définit également le rapport des nombres de Taylor : $I = \frac{Ta_{\text{fluide}}}{Ta_{\text{huile}}} = \frac{\rho_f \cdot \mu_{\text{Huile}}}{\mu_f \rho_{\text{Huile}}} \quad (III.38)$

On trace donc, sur la figure III.118, l'évolution du rapport adimensionnel H/d caractérisant le déplacement en fonction du nombre de Taylor pour l'ensemble des interfaces composées des fluides newtoniens. Sachant que, d'après ce qui précède, c'est le fluide le moins visqueux, et *a fortiori* le fluide au plus grand nombre de Taylor, qui impose le sens du déplacement de l'interface, il faut donc choisir d'utiliser, pour chaque système, le nombre de Taylor le plus grand entre celui du fluide newtonien aqueux et celui de l'huile. Cet effet sera d'ailleurs étudié plus tard par une étude μ -PIV.

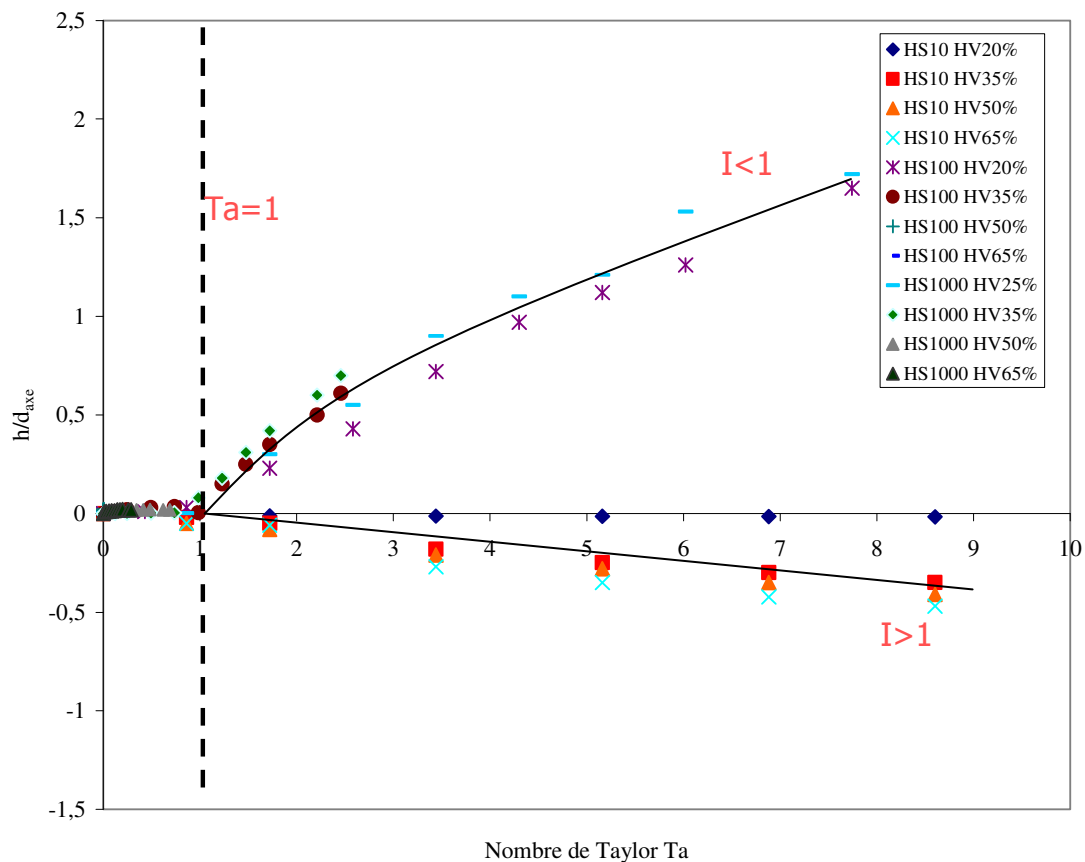


Figure III.118. Evolution du rapport adimensionnel h/d_{axe} en fonction du nombre de Taylor.

On observe sur ce graphique, que seul les systèmes ayant un nombre de Taylor plus grand que 1 montre un déplacement d'interface positif ou négatif et ensuite la valeur de I permet de savoir dans quel sens se déplacera le fluide.

- Si $Ta < 1$ ou si $I \approx 0$: pas de déplacement $\frac{h}{d_{axe}} \approx 0$
- Si $Ta > 1$: on observe un déplacement de l'interface
 - o Si $I > 1$: sens « positif »

$$\frac{h}{d_{axe}} = 0,17.Ta_a^{1,12} \quad (III.39)$$

- o Si $I < 1$: sens « négatif »

$$\frac{h}{d_{axe}} = -0,05.Ta_h \quad (III.40)$$

Ainsi, le déplacement de l'interface peut être estimé à partir des propriétés du fluide aqueux. De plus ce critère sur I , nous permet d'évaluer la vitesse critique d'apparition :

- o Si $I > 1$: sens « positif »

$$N_C = \frac{\mu_a \sqrt{D_{axe}}}{\rho_a d^{\frac{3}{2}}} \quad (III.41)$$

- o Si $I < 1$: sens « négatif »

$$N_C = \frac{\mu_h \sqrt{D_{axe}}}{\rho_h d^{\frac{3}{2}}} \quad (III.42)$$

Il semblerait donc que le déplacement de l'interface soit conditionné par le fait que le nombre de Taylor de l'un des deux fluides devienne plus grand que 1. Au delà d'une certaine vitesse de rotation, un phénomène responsable de ce déplacement intervient (quel que soit le sens), de la même manière que pour les fluides non newtoniens où une amplification de l'effet Weissenberg apparaît. Ce phénomène semble être le même dans les deux cas. Il pourrait être le résultat des propriétés physico-chimiques ou de la nature de l'écoulement.

Pour comprendre si cette amplification du déplacement aux grandes vitesses est le fruit de l'écoulement, une étude par μ -PIV est réalisée pour conclure quant aux origines de ce phénomène.

Concernant les fluides newtoniens, on distingue deux cas de figure, avant la vitesse critique, il ne se passe rien, $Ta < 1$, et au delà de cette vitesse, on observe un déplacement, $Ta > 1$.

- Cas A : $Ta < 1$

On s'intéresse à l'interface HV45 25% / HS100 à la vitesse de 200 tr/min, c'est à dire avant l'apparition du phénomène de déplacement de l'interface. L'écoulement est, de la même manière que pour les fluides non-newtoniens, circulaire, mais à la différence de ces derniers, l'interface reste verticale et plane. Le champ de vitesse est mesuré légèrement au dessus et en dessous de l'interface pour vérifier son caractère circulaire. La figure III.118 correspond à la partie supérieure de cette mesure obtenue par μ -PIV.

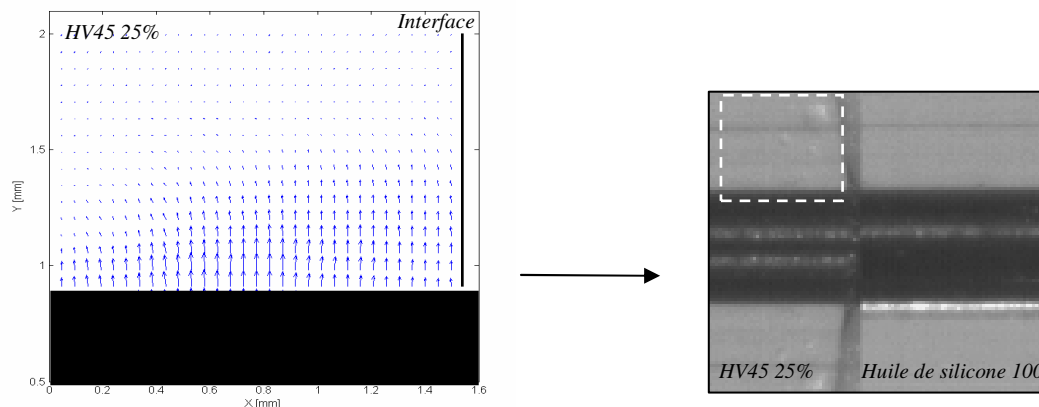


Figure III.118. Champ de vitesse mesuré par micro-PIV pour l'interface HV45 25% / HS100 – 200 tr/min

- Cas A : $Ta > 1$

On se place à présent sur l'interface obtenue avec le système HV45 25% / HS100 à la vitesse de 300 tr/min, c'est à dire au delà de la vitesse critique de déclenchement $N_c = 150$ tr/min. On observe alors la même instabilité de l'écoulement que pour les fluides non-newtoniens. L'écoulement circulaire pousse le fluide le long de l'axe et engendre le déplacement du fluide vers la phase huileuse.

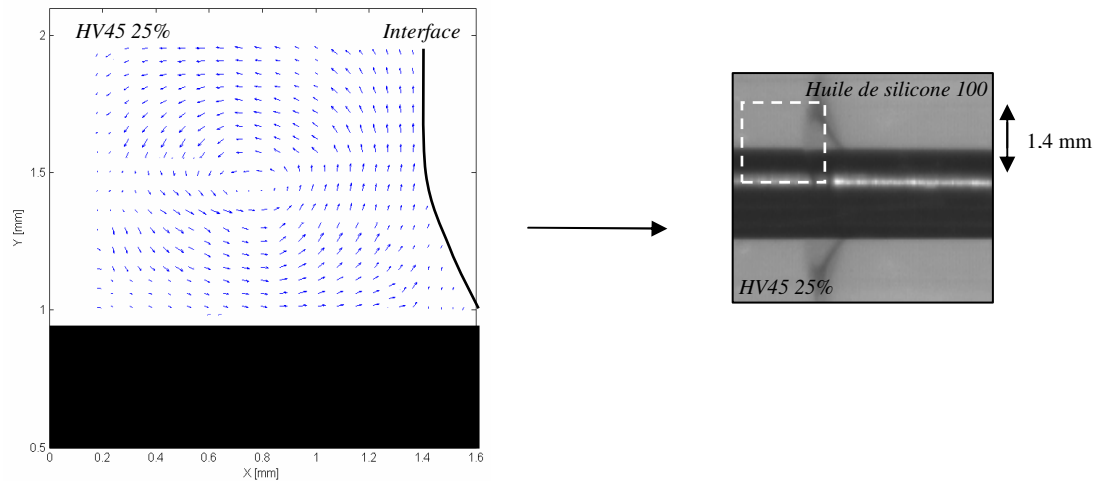


Figure III.119. Champ de vitesse mesuré par micro-PIV pour l'interface HV45 25% / HS100 – 300 tr/min

Ainsi, le déplacement se fait dans le sens déterminé par la phase de plus faible viscosité pour laquelle, le nombre de Taylor est le plus grand. C'est donc dans cette phase qu'apparaîtra d'abord l'instabilité de l'écoulement, les vitesses du vortex étant plus élevées que dans l'autre phase provoquant ainsi le déplacement de l'interface de cette phase vers l'autre. Dans le cas où les deux phases possèdent une viscosité semblable, les instabilités apparaissent à des vitesses similaires et les effets se compensent, ce qui explique l'équilibre de l'interface.

III.3.4. Conclusion

Cette étude nous a permis d'étudier des phénomènes interfaciaux à l'échelle mésoscopique et microscopique. La comparaison de l'effet Weissenberg aux différentes échelles est représentée sur le tableau III.04.

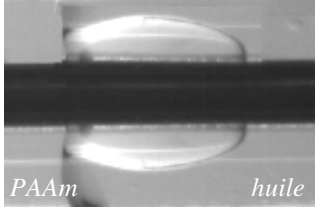
Fluide non-newtonien : <i>Effet Weissenberg</i>	
<i>Méso-échelle</i>	<i>Micro-échelle</i>
	
<i>Corrélation des résultats</i>	
$\frac{h}{d_{axe}} = \frac{1}{2} Ta_f^{\frac{1}{2}} De_f^{\frac{1}{2}} \left(\frac{\mu_h}{\mu_f} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (III.34)$	$\frac{h}{d_{axe}} = \frac{1}{6} Ta_f^{\frac{1}{6}} De_f^{\frac{2}{3}} \left(\frac{\mu_h}{\mu_f} \right)^{\frac{1}{10}} \quad (III.37)$
$Ta \in [5 \times 10^{-4} - 0,18]$ $De \in [136 - 4077]$ $d_{axe} \in [4 - 10 \text{ mm}]$ et $\mu_h/\mu_f \in [0,71 - 346]$	$Ta \in [3,1 \times 10^{-4} - 0,5]$ $De \in [70 - 7500]$ $d_{axe} \in [0,5 - 1,6 \text{ mm}]$ et $\mu_h/\mu_f \in [0,47 - 211]$
22% d'erreur relative moyenne	26% d'erreur relative moyenne
229 points expérimentaux	98 points expérimentaux

Tableau III.04. Comparaison des résultats de l'étude de l'effet Weissenberg multi-échelle.

Les différentes études réalisées tant sur l'effet Weissenberg classique que pour l'effet amplifié ont permis de vérifier et de confirmer certains résultats dans la littérature à l'échelle mésoscopique. L'étude PIV a permis de mettre en évidence les causes de l'amplification en visualisant les instabilités d'écoulement. Il n'a pas été possible en revanche de visualiser, à cette échelle, le déplacement du fluide dans la partie ascendante le long de l'axe de rotation. La réalisation d'interfaces horizontales et à l'échelle millimétrique nous a permis de visualiser des effets micro-Weissenberg horizontaux. Les déplacements d'interfaces, de l'ordre de quelques millimètres de longueur et de centaines de micromètres de largeur ont pu être visualisés et le système micro-PIV nous a permis d'obtenir des champs de vitesses difficilement visualisables à l'échelle macroscopique. Ainsi, il a été possible de visualiser et de comprendre le sens de l'écoulement des fluides et de localiser les instabilités à la base de la

partie du fluide qui se déplace le long de l'axe. Deux corrélations ont pu être établies pour les deux échelles avec une erreur relative moyenne acceptable (de l'ordre de 20%). L'utilisation de ce genre de corrélation intégrant le nombre de Deborah est très délicate du fait de la difficulté à quantifier le caractère élastique du fluide avec une bonne précision. Néanmoins, il est possible d'analyser ces corrélations afin de voir l'importance des différentes forces intervenant aux deux échelles. Dans les deux cas, le caractère viscoélastique du fluide a une grande influence sur le phénomène, mais il révèle encore plus fort à l'échelle microscopique. A cette échelle, l'influence de la vitesse de l'écoulement et du rapport des viscosités ont une influence moindre, ce qui peut s'expliquer par le confinement de l'écoulement. De plus, notre domaine d'étude ne nous permet pas de conclure quant à l'influence de la tension interfaciale tant sur la surface de l'axe de rotation que sur les parois des canaux. Il serait donc nécessaire par la suite élargir ce domaine d'étude, les forces de capillarités pouvant jouer un rôle important à cette échelle.

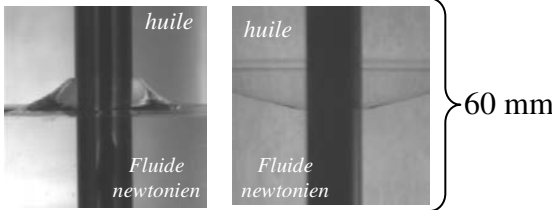
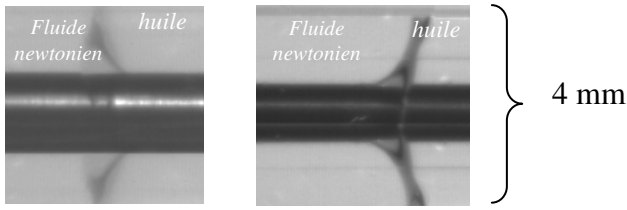
Fluide newtonien	
Meso-échelle	Micro-échelle
	
Corrélation des résultats	
$\frac{h}{d_{\text{axe}}} = \alpha \left(1 - \frac{\mu_f}{\mu_h} \right) \cdot N^\beta \quad (III.35)$ Avec $\alpha = 3,8 \cdot 10^{-6}$ $\beta = 1,7 \cdot \left(\frac{\mu_f}{\mu_h} \right)^{-\frac{1}{15}}$ $N \in [0 - 2000 \text{ tr/min}]$ $\frac{\mu_f}{\mu_h} \in [0,1-6]$ et $d_{\text{axe}} \in [4-10 \text{ mm}]$	$I > 1$ $\frac{h}{d_{\text{axe}}} = 0,1728 \cdot Ta_{\text{fluide}}^{1,12} \quad (III.39)$ $I < 1$ $\frac{h}{d_{\text{axe}}} = -0,05 \cdot Ta_{\text{huile}} \quad (III.40)$ $Ta \in [1-10]$ et $d_{\text{axe}} \in [0,5-1,6 \text{ mm}]$
24% d'erreur relative moyenne 118 points expérimentaux	5% et 9% d'erreur relative moyenne respectivement 49 et 37 points expérimentaux

Tableau III.05. Comparaison des résultats de l'étude multi-échelle du déplacement d'interfaces composées de fluides newtoniens.

La comparaison entre les résultats obtenus à l'échelle microscopique et mésoscopique relatifs aux déformations d'interfaces composées de fluides newtoniens est reportée dans le tableau

III.05. Les études à l'échelle mésoscopique nous ont permis de vérifier les observations de Bonn *et al.*, tout en les complétant avec une étude PIV pour de comprendre cet effet d'ascension de l'interface. La valeur du rapport des viscosités impose le sens du déplacement de l'interface. Les déplacements d'interfaces, de l'ordre de quelques millimètres de longueur et de centaines de micromètres de largeur ont pu être visualisés et le système de micro-PIV nous a permis d'obtenir des champs de vitesses. La figure III.120 résume les champs de vitesse principaux expliquant les divers scenari d'ascension.

Un critère de déplacement a pu être mis en évidence pour les fluides newtoniens relevant des paramètres clés du déplacement du fluide (viscosité, masse volumique...). Le phénomène de déplacement est accentué par le rapport des viscosités des deux phases, la vitesse de rotation mais aussi par la taille du diamètre de l'axe. En revanche, il semble être indépendant de toutes variations de la tension interfaciale dans la gamme des tensions interfaciales testées dans cette étude. De plus, nous avons pu proposer des corrélations permettant d'évaluer la longueur et le sens du déplacement et traduisant leurs différentes influences.

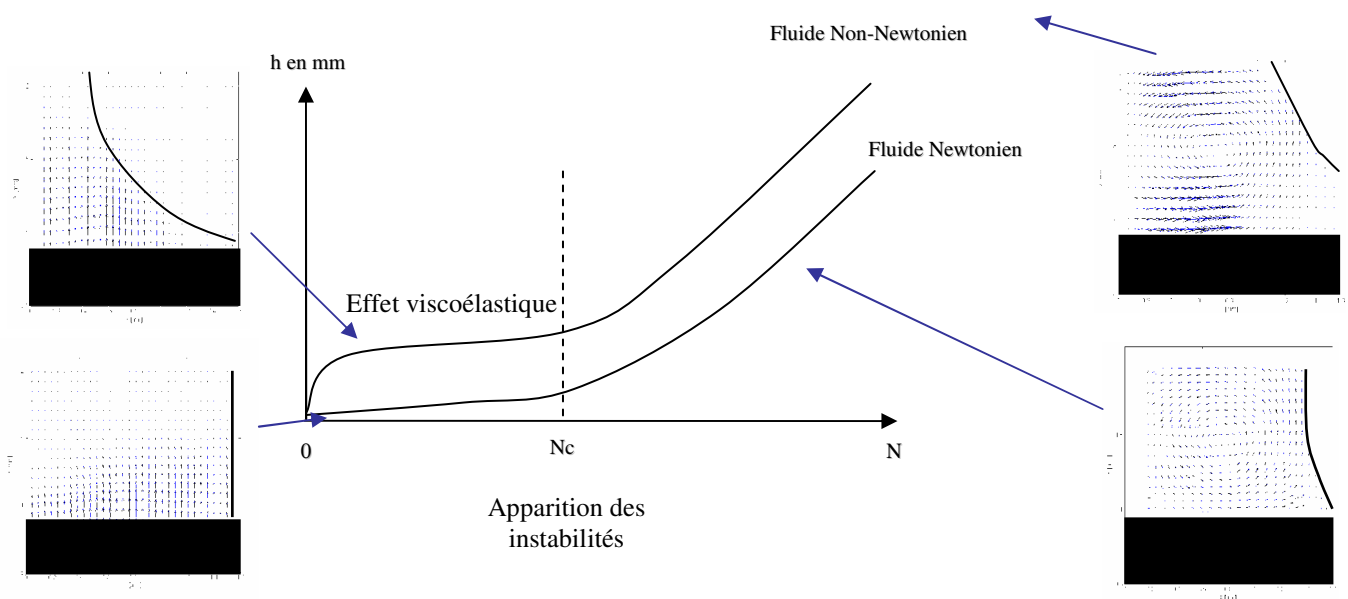


Figure III.120. Résumé des résultats obtenus lors des mesures des champs de vecteurs vitesses.

Cette étude pourra se poursuivre par l'étude d'autres fluides et une mise en commun de toutes les données expérimentales. L'effet du mouillage du fluide sur l'axe pourra de même être étudié et relié aux diverses tensions interfaciales ainsi qu'aux angles de contact des liquides sur le matériau utilisé.

Chapitre IV :
Interfaces Solide-Liquide

Chapitre IV :

Ecoulement autour de sphères rigides en sédimentation

dans des solutions polymériques

L'étude du comportement des sphères dans un milieu liquide présente un grand intérêt tant sur le plan de la recherche fondamentale que sur le plan des applications industrielles. L'établissement et la validation de modèles hydrodynamiques, de transfert de chaleur entre les sphères et le milieu liquide nécessitent la connaissance et la compréhension de la dynamique des sphères. La sédimentation de particules non browniennes dans des fluides complexes met en jeu des phénomènes très différents de ceux observés en milieu newtonien (chapitre III.2). Suivant les propriétés rhéologiques du fluide, on peut observer l'agrégation des particules, des vitesses de sédimentation non constantes, et ce même lorsque les effets inertiels sont négligeables (faibles nombres de Reynolds).

Nous nous intéressons ici à la sédimentation de particules sphériques dans des fluides présentant un fort caractère rhéofluidifiant. Pour cela, nous avons utilisé deux techniques de mesures : la caméra rapide afin de mettre en évidence les phénomènes liés à la sédimentation des sphères, et la technique PIV qui permet de décrire l'écoulement local autour de sphères à travers des mesures de champs de vitesses instantanés. On se reportera au chapitre 1 pour les modèles rhéologiques des fluides utilisés.

La présente étude s'inscrit dans la thématique du groupe concernant les écoulements dans les fluides complexes. Les différents travaux reportés dans la littérature et réalisés jusqu'à présent dans le domaine de la chute de sphères dans des milieux viscoélastiques et rhéofluidifiants nous ont permis de déceler des lacunes, notamment dans la structure de l'écoulement autour d'une sphère. Le premier objectif de ce travail est de caractériser l'écoulement autour de la sphère ; on s'intéressera notamment à la structure du sillage en fonction de la taille des particules de différentes densités et de la rhéologie du fluide en utilisant la technique PIV. Le second objectif consiste à étudier le phénomène de relaxation du fluide après le passage d'une

sphère. Cette étude constitue aussi bien un complément des travaux de thèse de Funfschilling (1999) et Kemiha (2006) qu'un support aux travaux de simulations avec les réseaux boltzmaniens (Lattice Boltzmann) réalisés dans notre équipe.

Dans la première partie, nous présenterons une revue bibliographique des différents travaux existant dans le domaine de la sédimentation des sphères dans des milieux viscoélastiques et rhéofluidifiants, pour le cas d'une sphère isolée. La deuxième partie sera consacrée à l'étude expérimentale du comportement d'une sphère isolée dans des fluides non newtoniens, en utilisant la technique PIV et enfin la dernière portera sur la relaxation du fluide après le passage d'une sphère.

IV.1. Synthèse bibliographique

Durant le dernier demi-siècle, de nombreux progrès ont été réalisés dans le domaine de la sédimentation de sphères rigides dans des fluides non newtoniens (élastiques, viscoélastiques...). Ces travaux concernent le transfert de matière, l'écoulement, notamment la vitesse terminale de chute d'une ou de plusieurs sphères, le calcul du coefficient de traînée et l'échange entre l'inclusion et le milieu continu. Pour plus de détails, on pourra se reporter aux ouvrages de Chhabra (1993), DeKee et Chhabra (2002), ou aux articles de revue comme ceux de Gheissay and Van den Brule (1996), Arigo and Mckinley (1998) et Harlen (2002).

Par rapport à la sédimentation dans un fluide newtonien (qui reste la base de comparaison, cf. §III.1.2), le caractère non newtonien dans notre étude modifie largement les interactions hydrodynamiques solide-fluide, ce qui rend le problème plus complexe. La résolution des équations de mouvement et de continuité de ce problème n'est possible analytiquement que pour le régime de Stokes (écoulement rampant pour $Re < 1$) et une solution numérique s'avère nécessaire.

En régime instationnaire, la sédimentation d'une sphère dans un fluide à caractère viscoélastique est caractérisée par l'existence d'un phénomène appelé communément dans la littérature « overshoot » et « undershoot », car la vitesse de chute passe par un maximum et un minimum avant de tendre vers une vitesse terminale stable. Ce phénomène qui intervient

surtout au début de la chute de la sphère a déjà été observé expérimentalement (King et Waters, 1972, Becker *et al.*, 1994, Rajagipalan *et al.*, 1996, Arigo et Mckinley, 1997) et numériquement (Zhen et Phan-Thien, 1992, Bodart et Crochet, 1994, Becker *et al.*, 1994, Rajagipalan *et al.*, 1996).

Bot *et al.* (1998) ont étudié la sédimentation d'une sphère dans un fluide de Boger en régime instationnaire et ont obtenu une augmentation de la vitesse relative de « l'overshoot » de la sphère avec le nombre de Deborah.

En plus de « l'overshoot », la vitesse terminale de chute de la sphère dans un fluide élastique dépend de l'intervalle de temps entre deux lâchers de sphères. Bisgaard (1983) fut le premier à remarquer que la vitesse terminale d'une sphère lâchée 10 minutes après la première dans une solution 1% PAAm dans du glycérol présente une augmentation de 30% par rapport à celle de cette dernière, tandis que pour un intervalle de temps de 2,5 heures entre les deux chutes, cette différence de vitesse se réduit à 2% de la première. Le phénomène est constaté par la suite pour d'autres types de fluides viscoélastiques (Cho *et al.*, 1984, et Gheissary et Van den Brule, 1996).

IV.1.1 Coefficient de traînée d'une sphère en sédimentation

Dans le cas d'un fluide non newtonien, on remplacera le nombre de Reynolds par le nombre de Reynolds généralisé dans lequel la viscosité dépendant alors de la vitesse de cisaillement (effet de rhéofluidification). Le coefficient de traînée approprié dans ce cas dépend de ces deux paramètres en plus du nombre de Deborah.

Chhabra et Uhlherr (1980) ont corrigé la corrélation de Schiller–Naumann (tableau III.03) en se basant sur leurs résultats expérimentaux et sur ceux du travail de thèse de Dallon (1967) pour tenir compte des effets de la rhéofluidification et de la viscoélasticité du fluide. La rhéologie de ce dernier est décrite par un modèle de Carreau et la corrélation suivante est proposée :

$$C_d = \frac{24}{Re_0} \left(1 + 0,15 Re_0^{0,687} \right) \left(1 + 0,65(n-1) De^{0,2} \right) \quad (IV.01)$$

$$\text{avec} \quad 0,52 \leq n \leq 1 \quad 0,032 \leq Re_0 \leq 394 \quad 0,032 \leq De \leq 630$$

IV.1.2. Champs de vitesses autour d'une sphère et sillage négatif

Dans le passé, plusieurs travaux expérimentaux ont porté sur l'écoulement autour d'une sphère en sédimentation dans un fluide viscoélastique et rhéofluidifiant. Les champs de vitesses ont en général été obtenus à partir de différentes techniques : Bisgaard (1983), Arigo *et al.* (1995) et Arigo et McKinley (1998) par LDV (Laser Doppler Velocimetry) et Arigo et McKinley (1998), Harrison *et al.* (2001) et Tatum *et al.* (2005) par PIV. Ces travaux ont contribué à caractériser l'écoulement de la sphère en sédimentation dans ces milieux et à visualiser l'ensemble des phénomènes liés à la rhéologie des fluides.

Sigli et Coutanceau (1977) furent les premiers à constater l'existence d'une traînée négative dans le sillage d'une sphère sédimentant dans un fluide viscoélastique (solution de PolyEthylène Oxide PolyOx-WSR-301). Dans leur travail, les champs de vitesses et les lignes de courants ont été déterminés pour de faibles nombres de Reynolds et de Deborah en visualisant par caméra l'écoulement autour de la sphère, la solution ayant préalablement étéensemencée par un traceur sensible à la lumière. Avant ces travaux, Acharya *et al.* (1977) ont étudié l'écoulement dans le sillage d'une sphère en chute dans des fluides viscoélastiques ; ils ont observé des zones de dominance des forces élastiques et des forces visqueuses selon la concentration de la solution.

Hassager (1979) a observé le même phénomène de traînée négative dans le sillage d'une bulle en ascension dans une solution viscoélastique et rhéofluidifiante de 1% de PolyAcrylAmide dans du glycérol et lui a alors attribué le nom de "sillage négatif". Plus tard, Bisgaard (1983) qui a confirmé l'obtention du sillage négatif, a mis en évidence, par LDV, l'existence de fluctuations de vitesses dans le sillage de la sphère. Maalouf et Sigli (1984) ont réaffirmé l'existence du sillage négatif pour des objets de différentes géométries en sédimentation dans des fluides viscoélastiques et rhéofluidifiants. Enfin, Funfschilling et Li (2001) ont localisé par des mesures de champs de vitesses obtenus par PIV, la zone du sillage négatif derrière une bulle en ascension dans des fluides viscoélastiques et rhéofluidifiants (solutions de PAAm).

Sur la figure IV.01 est représenté le profil de vitesses en amont et en aval d'une sphère en sédimentation dans un fluide viscoélastique. Sur le front de la sphère, l'écoulement du fluide a lieu dans la même direction que le déplacement de la sphère rigide. Derrière la sphère,

l'écoulement du fluide change de sens au voisinage direct de la sphère pour donner une vitesse négative; cette zone correspond au sillage négatif.

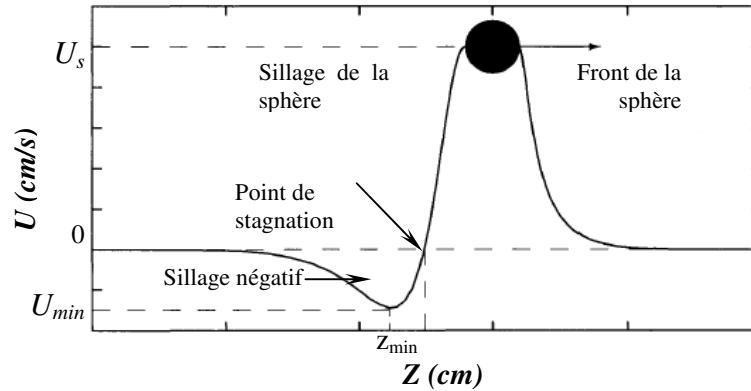


Figure IV.01. Schéma représentatif du profil axial de vitesses obtenu au centre de l'écoulement d'une sphère. (Source Kemiha et al., 2006).

L'observation de ce sillage négatif n'a pas toujours été évidente, en particulier avec les mesures expérimentales par LDV; la simulation numérique de Arigo *et al.* (1995) a par ailleurs montré l'absence du sillage négatif derrière une sphère dans un fluide élastique (0,31% PIB/PB). De même, Harrison *et al.* (2001) n'ont pas constaté de sillage négatif pour une sphère en chute dans 1% PAAm dans un mélange eau/glycérol (50/50), viscoélastique et rhéofluidifiant, mais ils n'ont pas exclu son existence, et expliqué cette absence par le champ de vision de leur système PIV tridimensionnel.

En utilisant les techniques LDV et PIV, Arigo et McKinley (1998) ont caractérisé l'écoulement autour d'une sphère dans un fluide viscoélastique et rhéofluidifiant pour une gamme du nombre de Deborah de $2,43 < De < 8,75$. Dans toutes leurs expériences le sillage négatif était bien présent mais avec une longueur dépendant du nombre de Deborah. Leurs observations concernant l'écoulement transitoire de la sphère, ont permis d'expliquer l'existence du sillage négatif en le considérant comme résultat de la compétition entre les contraintes élongationnelles et les contraintes rhéofluidifiantes dans le sillage de la sphère rigide.

Arigo et McKinley (1998) ont confirmé par LDV et PIV l'existence du sillage négatif derrière la sphère et la circulation latérale de la sphère sédimentant dans des fluides PAAm à différents nombres de Deborah. Cependant les champs de vitesses obtenus ne sont pas assez développés

autour de la sphère. Harrison *et al.* (2001) ont déterminé des champs de vitesses plus étendus autour de la sphère, mais sans sillage négatif. Plus récemment, Tatum *et al.* (2005) ont utilisé la PIV pour caractériser l'écoulement des sphères près des parois planes. La structure globale du sillage reste l'élément absent dans leur étude consacrée essentiellement aux effets de parois dans trois fluides : newtonien, non newtonien élastique et viscoélastique et rhéofluidifiant.

Tatum *et al.* (2005) ont constaté la présence du sillage négatif derrière des sphères métalliques rigides sédimentant dans un fluide viscoélastique et rhéofluidifiant pour un nombre de Deborah de 1,7; mais cela n'a pas été le cas pour des sphères en verre pour lesquelles $De < 1$. Ceci suggère alors l'existence d'un nombre de Deborah critique à partir duquel le sillage négatif apparaît derrière la sphère.

Harlen (2002), Chilcott et Rallison (1988), Lunsmam *et al.* (1993) et Satrape et Crochet (1994), ont confirmé numériquement l'existence du sillage négatif. Ils ont conclu que la distance entre la sphère et le début du sillage négatif ainsi que la vitesse absolue maximale dans le sillage négatif augmentent avec le nombre de Deborah. Ce résultat confirme par ailleurs les résultats expérimentaux de Arigo et McKeinely (1998). Enfin, les travaux expérimentaux et numériques de la littérature montrent une certaine compétition entre les forces élastiques (responsables du sillage négatif) et élongationnelles qui dominent dans la zone proche de la sphère, dans le sillage (Harlen, 2002).

La figure IV.02.a illustre un champ de vitesses obtenu par l'approche Lattice Boltzmann, autour d'une sphère rigide de 8 mm de diamètre. Elle montre clairement les trois zones caractéristiques autour de la sphère, à savoir : le sillage négatif, le cône creux qui l'entoure et la zone du front. Ce champ théorique est qualitativement comparable à celui obtenu expérimentalement.

L'existence du sillage négatif derrière les sphères en sédimentation dans des fluides viscoélastiques est devenue une évidence ; cependant, l'origine de ce phénomène reste controversée. Dans les travaux réalisés jusqu'à présent, l'hypothèse plausible qui a été avancée pour expliquer l'origine de ce phénomène est la rhéologie du fluide. Kemiha *et al.* (2006) ont comparé (fig. IV.02.b) les champs de vitesses autour d'une bulle et d'une sphère en milieu complexe, les résultats obtenus ont montré, pour les différents types et tailles de particules utilisées, une structure du champ de vitesses autour de la sphère similaire à celle

constatée autour d'une bulle, en particulier en ce qui concerne la forme conique du sillage négatif et le cône creux.

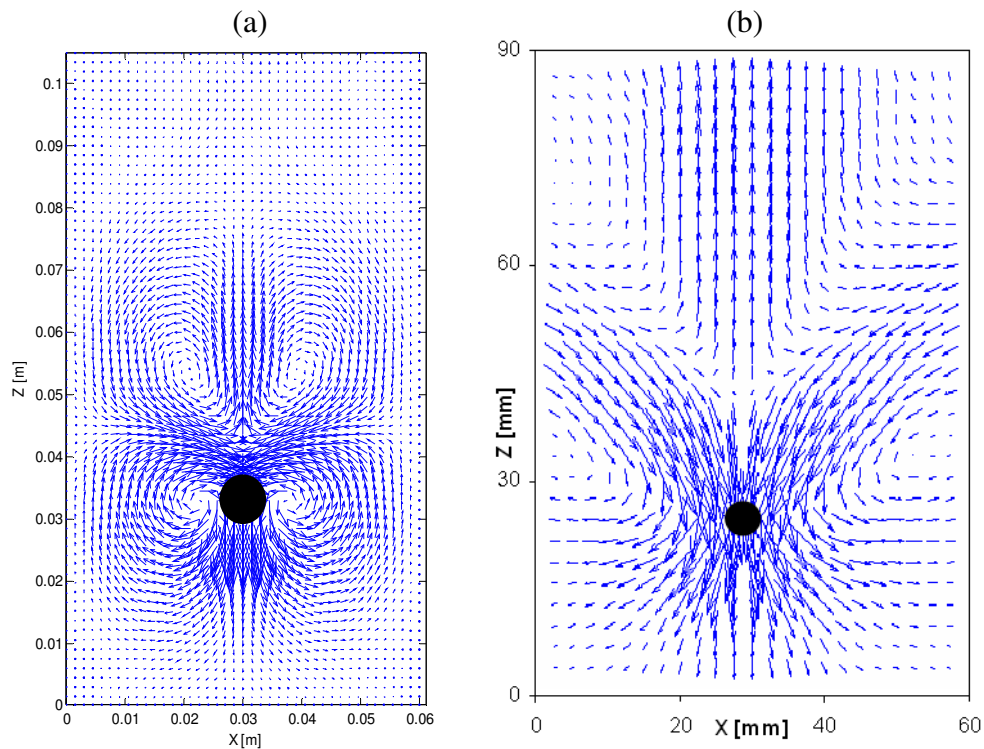


Figure IV.02. (a) Simulation de la sédimentation d'une sphère en verre ($d = 8 \text{ mm}$) dans 0,5% PAAm par Kemiha et al. (2006). (b) Champ de vitesses expérimental obtenu par PIV par Kemiha et al. (2006).

Les travaux expérimentaux, relatifs à la sédimentation des sphères et les travaux numériques permettant de reproduire la structure de l'écoulement en prenant en compte la rhéologie du fluide leur ont permis de conclure que la présence du sillage négatif serait plutôt liée aux propriétés rhéologiques du fluide, en particulier à la viscoélasticité (Kemiha *et al.*, 2006).

IV.2. Sédimentation de sphères dans les milieux non newtoniens

Dans cette partie, on étudie expérimentalement l'écoulement autour de sphères en sédimentation dans des fluides non newtoniens viscoélastiques et rhéofluidifiants. On traitera d'abord le cas le plus simple d'une sphère isolée puis, on s'intéressera au phénomène de relaxation après le passage d'une sphère dans un milieu non newtonien.

IV.2.1. Coefficient de traînée d'une sphère en sédimentation

Dans cette section on s'intéresse à la description de la sédimentation de sphères dans des fluides non newtoniens, viscoélastiques et rhéofluidifiants, en déterminant le coefficient de traînée à partir des vitesses terminales obtenues par analyse d'image. Ce coefficient de traînée est représenté en fonction du nombre de Reynolds généralisé. Pour étudier l'évolution du coefficient de traînée en fonction du nombre de Reynolds généralisé, nous avons utilisé trois concentrations de PAAm (0,25% ; 0,5% et 1%) et différentes tailles de sphères en verre, de 8 et 10 mm de diamètre et en acier de 5 et 10 mm de diamètre et enfin en céramique d'un diamètre de 20 mm. Les résultats ainsi obtenus sont représentés sur la figure IV.03. La courbe théorique obtenue à partir de la corrélation de Schiller et Neumann (1933) correspondant à $Re < 100$ a de même été reportée à titre de comparaison.

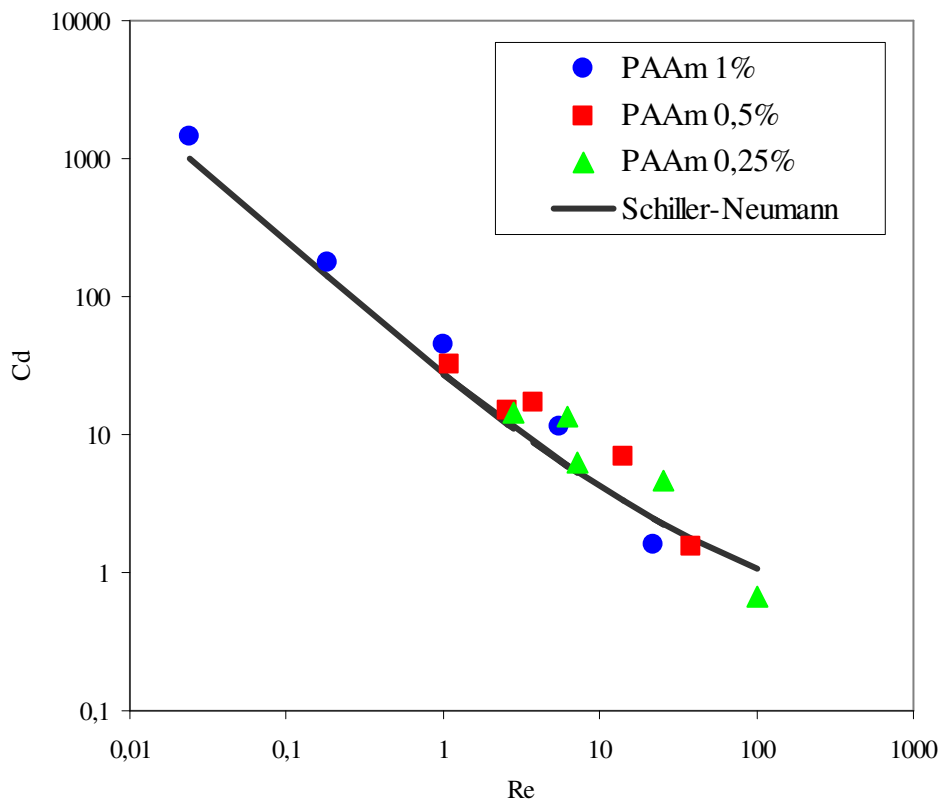


Figure IV.03. Evolution du coefficient de traînée en fonction du nombre de Reynolds pour des sphères dans les solutions 0,25% , 0,5 % et 1% PAAm.

On peut constater que pour $Re < 1$, les coefficients de traînée expérimentaux dans ces fluides sont en bon accord avec ceux obtenus à partir de la corrélation de Schiller et Neumann pour la sédimentation d'une sphère rigide. Un faible écart est noté pour des nombres de Reynolds supérieurs à l'unité dans la solution 1% PAAm, du fait probablement de la forte élasticité de cette solution.

IV.2.2 Champ de vitesses autour d'une sphère isolée

Afin de décrire en détail l'écoulement autour d'une sphère en sédimentation dans un fluide non newtonien viscoélastique et rhéofluidifiant, nous avons réalisé une série de mesures de champs de vitesses autour de sphères de tailles différentes, en sédimentation dans trois solutions 0,25%, 0,5% et 1% PAAm. Au delà de ces concentrations, la solution devient sensiblement opaque, ce qui rend la détection des particules fluorescentes par les caméras assez délicate.

Pour les trois types de sphères rigides en sédimentation dans la solution PAAm 1%, les différents champs de vitesses mesurés ont la même allure. On peut ainsi remarquer sur toutes les figures la structure axisymétrique du champ de vitesses autour de la sphère et distinguer les différentes zones qui entourent la sphère :

- la zone du front, correspondant au mouvement descendant du fluide, est similaire à celle obtenue lors de la sédimentation d'une sphère dans un fluide newtonien ou élastique (Harrison *et al.*, 2001, Tatum *et al.*, 2005); la direction du fluide étant ainsi la même que celle de la sphère.
- la zone du sillage (derrière la sphère rigide) présente une structure particulière. Elle se compose des deux zones suivantes :
 - une zone centrale de sillage négatif sous forme d'une poire inversée où le fluide est en mouvement ascendant et de sens opposé au déplacement de l'inclusion. Dans cette zone, l'écoulement est rectiligne, les vecteurs vitesses étant parfaitement verticaux.
 - une zone sous forme de cône creux qui entoure la zone centrale du sillage négatif et où le fluide est en mouvement descendant, de sens opposé au sillage négatif et se dirigeant vers la sphère de façon symétrique.

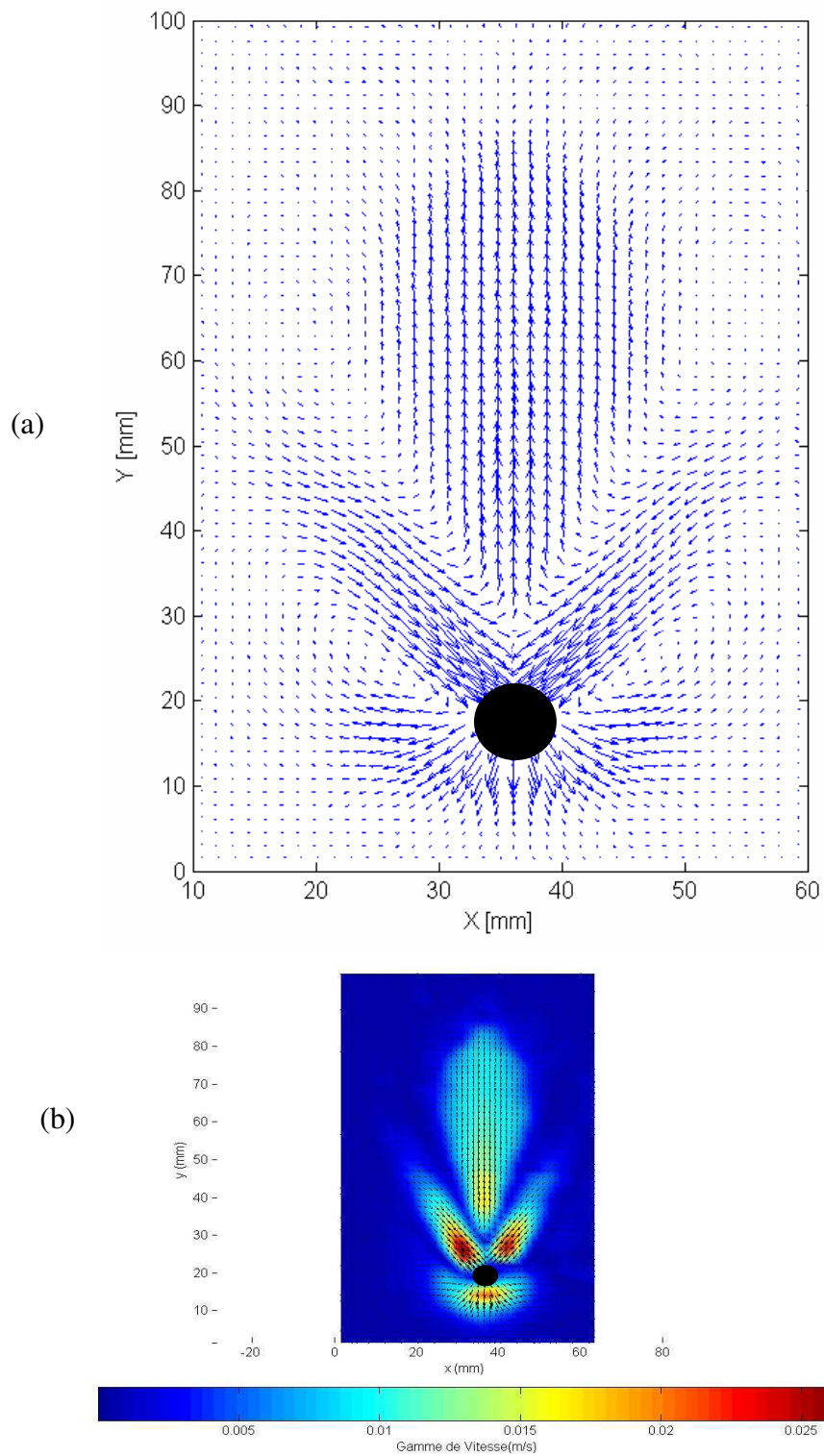


Figure IV.04. (a) Champ de vitesses autour d'une sphère en acier ($d = 5 \text{ mm}$) en sédimentation dans 1% PAAm. $U_S = 0,1 \text{ m/s}$, $Re = 1,01$; $De = 1302$ et $\theta \sim 50^\circ$ (b) champ de vitesses et carte des vitesses.

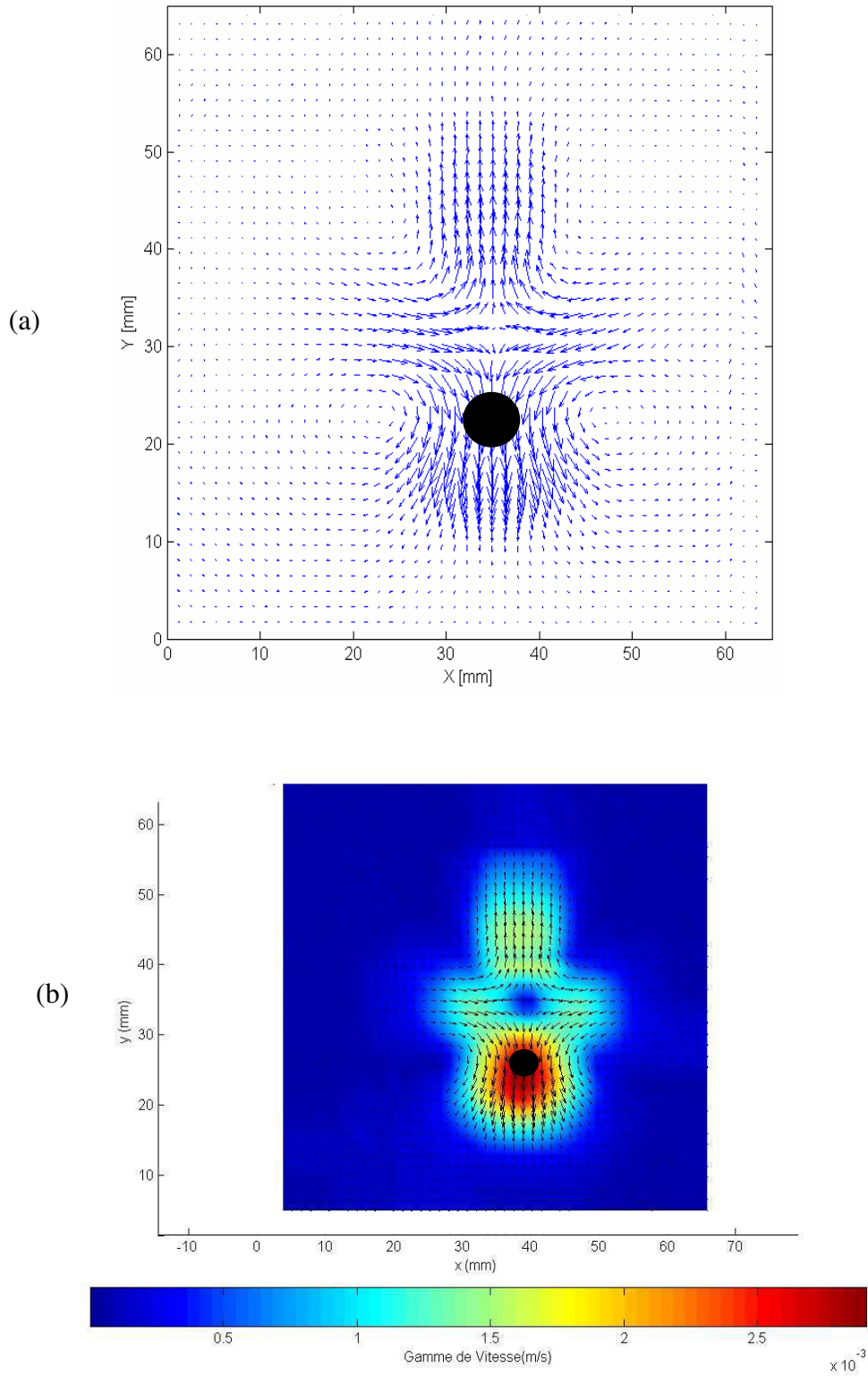


Figure IV.05. (a) Champ de vitesses autour d'une sphère en verre ($d = 8 \text{ mm}$) en sédimentation dans 1% PAAm. $U_s = 0,01 \text{ m/s}$, $Re = 0,02$; $De = 88$ et $\theta \sim 161^\circ$ (b) champ de vitesses et carte des vitesses.

Les champs de vitesses montrent une circulation du fluide de chaque côté de la sphère, reliant la zone du front à la zone du cône creux, et créant un vortex autour de la sphère rigide. Les différents champs de vitesses présentés sur les figures IV.04 et IV.05 montrent que la structure globale de l'écoulement autour d'une sphère sédimentant dans la solution 1% PAAm est la même pour les deux tailles de sphères.

Les différentes caractéristiques des champs de vitesses obtenus pour les trois solutions 0,25 ; 0,5 et 1% PAAm sont reportées sur le tableau IV.01. Elles nous permettront de comparer, pour les différents systèmes fluide/sphère utilisés, l'angle d'ouverture du cône ou la longueur du sillage négatif.

Solution	Type de sphère	Diamètre de la sphère d_s (mm)	Vitesse de chute de la sphère U (m/s)	Re	De	Angle du cône creux $\theta(^{\circ})$	Longueur du sillage Négatif L_{SN} (m)
PAAm 0,25%	Verre	8	0,1	2,9	340	54	0,1
		10	0,17	7,2	1250	52	0,07
	Acier	5	0,18	6,15	955	42	0,1
		8	0,39	11,6	1290	37,5	0,14
	Céramique	20	0,73	102	1450	28,9	0,35
PAAm 0,5%	Verre	8	0,07	1,09	330	67	0,08
		10	0,11	2,61	430	57,5	0,14
	Acier	5	0,16	3,82	1250	45	0,07
		8	0,32	8,3	1556	39,2	0,15
	Céramique	20	0,49	22	2000	32	0,29
PAAm 1%	Verre	8	0,01	0,02	82	161	0,03
		10	0,03	0,18	210	112	0,07
	Acier	5	0,1	1	1302	50,6	0,06
		8	0,25	5,5	2034	41,7	0,14
	Céramique	20	0,46	22	2018	34,9	0,26

Tableau IV.01. Caractéristiques des champs de vitesses obtenus avec les solutions 0,25 ; 0,5 et 1% PAAm.

IV.2.3. Caractéristiques du sillage d'une sphère dans le PAAm

Les caractéristiques regroupées dans le tableau V.01 sont exprimées en fonction de nombres adimensionnels décrivant les propriétés de l'écoulement et du fluide.

IV.2.3.1. Angle d'ouverture du cône creux

La variation de l'angle d'ouverture du cône creux est reportée sur les figures V.06 et V.07 en fonction des nombres de Reynolds généralisé et de Deborah afin de mettre en évidence les effets respectifs de la viscosité et de l'élasticité du fluide.

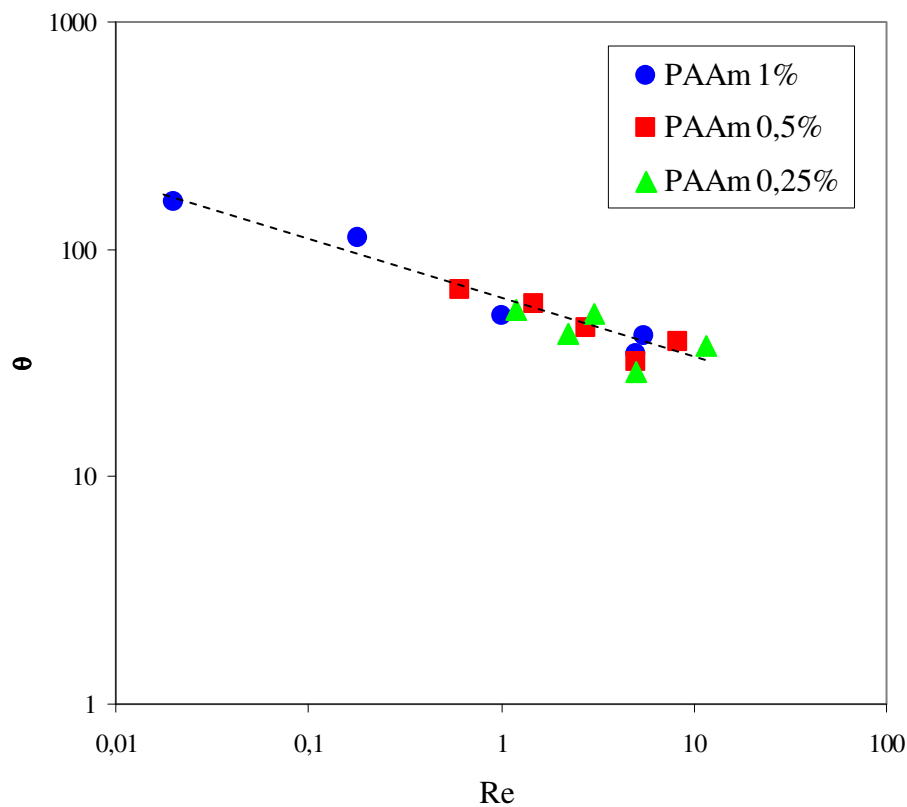


Figure IV.06. Evolution de l'angle d'ouverture du cône creux en fonction du nombre de Reynolds lors de la sédimentation des sphères dans les solutions de 0,25% ; 0,5 % et 1% PAAm.

La figure IV.06 montre l'évolution de l'angle d'ouverture du cône creux θ en fonction du nombre de Reynolds généralisé pour des sphères rigides en sédimentation dans les trois solutions de PAAm étudiées.

On constate que l'angle d'ouverture θ (°) est une fonction décroissante du nombre de Reynolds pour les deux solutions utilisées selon la loi de puissance suivante :

$$\theta = 67 \text{Re}^{-\frac{1}{5}} \quad (IV.02)$$

$$\text{Re} \in [0,02-101]$$

L'erreur relative moyenne obtenue en utilisant cette corrélation est de 7% sur les 14 valeurs d'angles mesurées. Ainsi, l'angle θ dépend de la viscosité du fluide et de la vitesse de sédimentation de la sphère.

Pour étudier l'effet de l'élasticité du fluide, l'évolution de l'angle d'ouverture du cône creux θ est reportée en fonction du nombre de Deborah sur la figure IV.07 pour les trois solutions de PAAm étudiées.

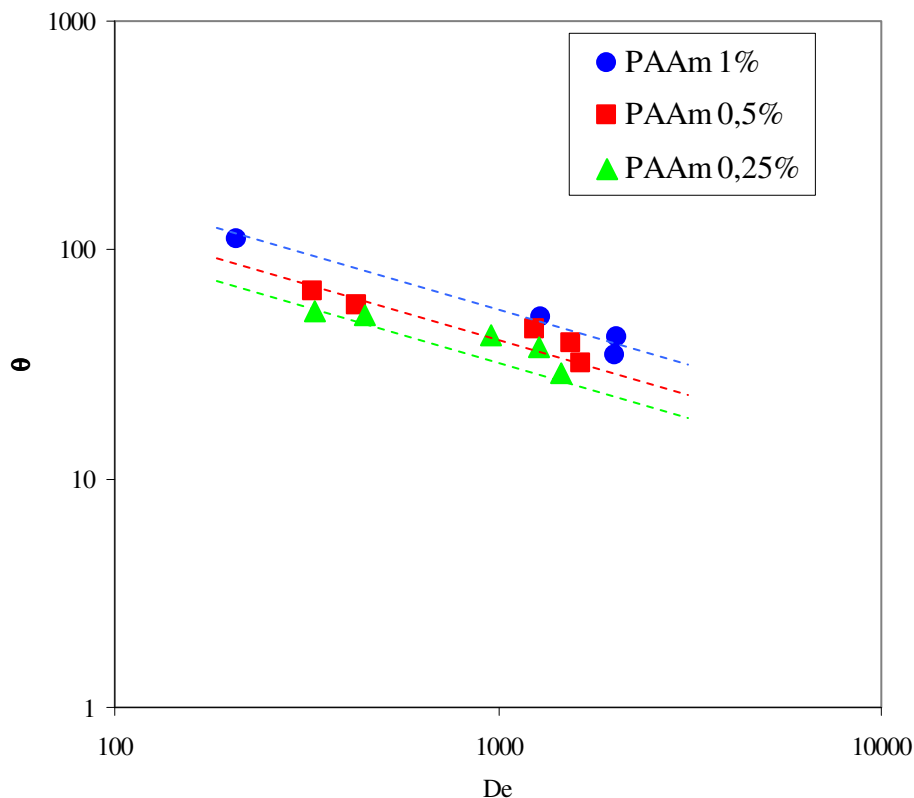


Figure IV.07. Evolution de l'angle d'ouverture du cône creux en fonction du nombre de Deborah lors de la sédimentation des sphères dans les solutions de 0,25% ; 0,5 % et 1% PAAm.

Le nombre de Deborah est défini à partir du modèle de Carreau (cf. chapitre I). Les résultats obtenus en utilisant le modèle de Maxwell étant sensiblement identiques, ils ne sont pas développés ici. La figure IV.07 montre la décroissance de l'angle θ lorsque le nombre de Deborah augmente. Les courbes obtenues pour les trois concentrations de PAAm sont parallèles du fait de la variation de θ avec la viscosité décrite précédemment.

Pour tenir compte des effets combinés de la viscosité et de l'élasticité du fluides sur l'angle θ du cône creux, nous avons tracé la variation de ce dernier paramètre en fonction du nombre de Mach viscoélastique défini par la racine carrée du produit du nombre de Reynolds généralisé et du nombre de Deborah (cf. chapitre I).

Tout comme pour les figures IV.06 et IV.07, on constate la décroissance de l'angle du cône creux θ en fonction du nombre de Mach viscoélastique pour les trois solutions. Ainsi, l'angle θ du cône creux dans le sillage d'une sphère rigide en sédimentation dans des solutions de PAAm dépend du caractère viscoélastique de la solution suivant la relation simple :

$$\frac{\theta}{\theta_{\max}} = Mc^{-\frac{1}{3}} \quad (IV.02)$$

$$Mc \in [1,4-383]$$

L'erreur relative moyenne sur cette corrélation est de moins de 5%. Le nombre adimensionnel $\theta/\theta_{\max}$ introduit fait intervenir l'angle maximal que peut prendre le cône $\theta_{\max} = 180^\circ$.

IV.2.3.2. Longueur du sillage négatif

La deuxième caractéristique principale à considérer pour la sédimentation d'une sphère dans les solutions de PAAm est la longueur du sillage négatif L_{SN} . La détermination de cette grandeur permet de montrer l'impact de la chute de la sphère sur la structure du fluide. L'évolution de la longueur du sillage négatif en fonction du nombre de Reynolds est reportée sur la figure IV.08 pour les trois fluides étudiés. On remarque, à partir des courbes obtenues, que la longueur du sillage est une fonction croissante monotone du nombre de Reynolds.

$$\frac{L_{SN}}{d_s} = 10.Re^{\frac{1}{6}} \quad (IV.03)$$

$$Re \in [0,02-101]$$

L'erreur relative moyenne obtenue avec cette corrélation est de 22% sur les 14 valeurs de sillages mesurées.

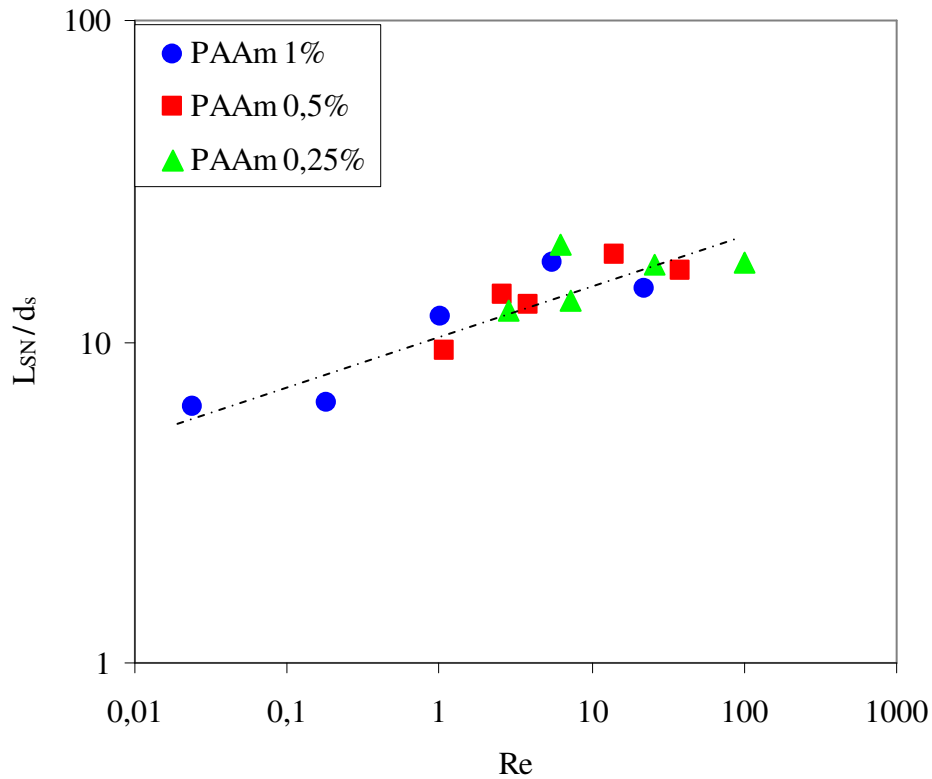


Figure IV.08. Variation de la longueur du sillage négatif en fonction du nombre de Reynolds généralisé pour des sphères rigides dans différentes solutions de 0,25%, 0,5 % et 1% PAAm.

Pour mettre en évidence l'effet de la viscoélasticité, la variation de la longueur du sillage négatif en fonction du nombre de Mach viscoélastique défini selon le modèle de Carreau peut être représenté par la corrélation suivante :

$$\frac{L_{SN}}{d_s} = 5 \cdot Mc^{\frac{1}{5}} \quad (IV.04)$$

$$Mc \in [1,4-383]$$

L'erreur relative moyenne obtenue en utilisant cette corrélation est de 19% sur les 14 valeurs de longueurs de sillages mesurées.

IV.3. Etude du « dumping » du fluide dans les milieux non newtoniens

En plus de la structure particulière du champ de vitesses autour de la sphère (notamment la présence du sillage négatif), un autre phénomène a été observé après le passage de la sphère. En effet, les mesures de champ de vitesses obtenues par la technique PIV au-dessus de la zone centrale du sillage négatif ont montré un déplacement vertical oscillant du fluide après le passage de la sphère.

Ce phénomène, qui se traduit par plusieurs changements simultanés et brefs du sens de déplacement du fluide, peut être expliqué par une réponse du fluide à travers son élasticité, à la déformation créée lors du passage de la sphère dans cette zone de la colonne. Hormis pour les faibles nombres de Reynolds, ce phénomène a souvent été observé dans nos expériences. Nous présenterons dans ce qui suit quelques cas types illustrant ce phénomène dans l'un des trois fluides utilisés. Avec l'aide du système PIV, nous avons mesuré, par la méthode eulérienne et après le passage de la sphère, l'évolution du champ de vitesses du liquide au cours du temps en un point fixe de la colonne.

La figure IV.09 montre les champs de vitesses et les cartes de lignes de courants obtenus à une position donnée et à différents instants et qui représentent la réponse du fluide 1% PAAM après le passage d'une sphère en acier de 5 mm de diamètre. On constate ainsi successivement pour des temps d'acquisition croissants :

- la zone du sillage négatif derrière la sphère rigide (fig. IV.09.a b) et sa fin (fig. IV.09.c),
- le déplacement du fluide dans un sens opposé à celui du sillage négatif mais à une vitesse relativement faible par rapport à celle obtenue dans le sillage négatif (fig. IV.09d),
- une seconde inversion dans le sillage de la sphère (fig. IV.09.e et f),

On constate ainsi qu'à cette position de la colonne, le fluide a subi deux sens de déplacement en 0,5 secondes. L'ensemble des cycles d'inversion du sens de déplacement dans ce cas précis sont reportés sur la figure IV.09.g. Le fluide subit au total plus de 10 inversions mesurables de son sens d'écoulement en 2 secondes (période d'inversion de 0,2s). Au delà, les vitesses étant faibles, il est quasiment impossible de les mesurer. Ce mouvement ondulatoire qui traduit la réponse du fluide au passage de la sphère est lié au caractère élastique du fluide. En fin de processus et après dissipation des oscillations qui accompagnent la sédimentation de la sphère, le fluide reprend son état de repos initial après 2,5 secondes.

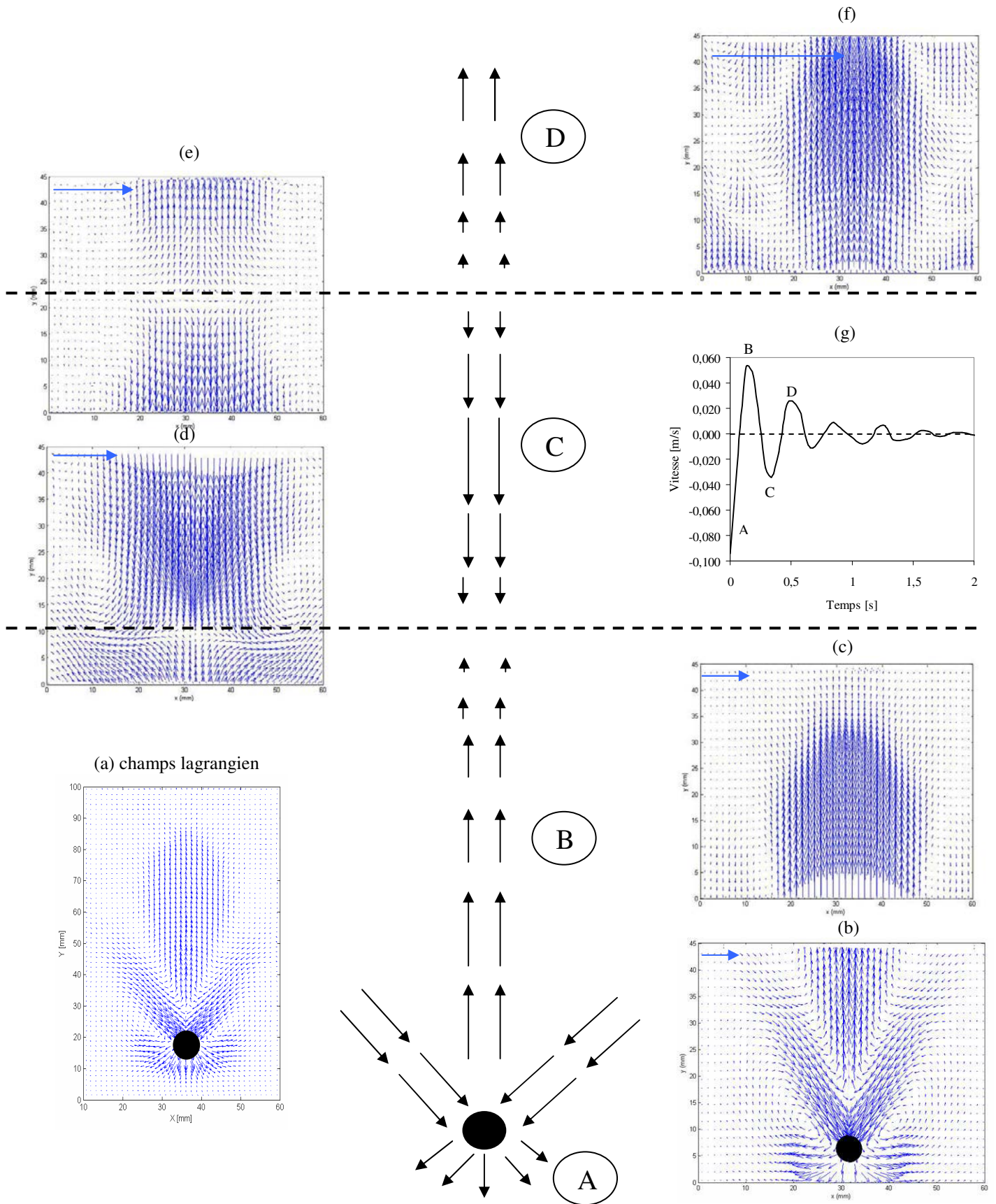


Figure IV.09. Relaxation du fluide après le passage d'une sphère en milieu complexe.

Afin d'étudier ce phénomène de relaxation et de déterminer les paramètres qui l'affectent, nous avons testé différentes taille de sphères, toutes choses égales par ailleurs, comme le montre la figure IV.10. Pour un fluide donné, on observe que plus la taille de la sphère est importante, plus l'amplitude des oscillations est grande, et plus le nombre de cycles sera élevé.

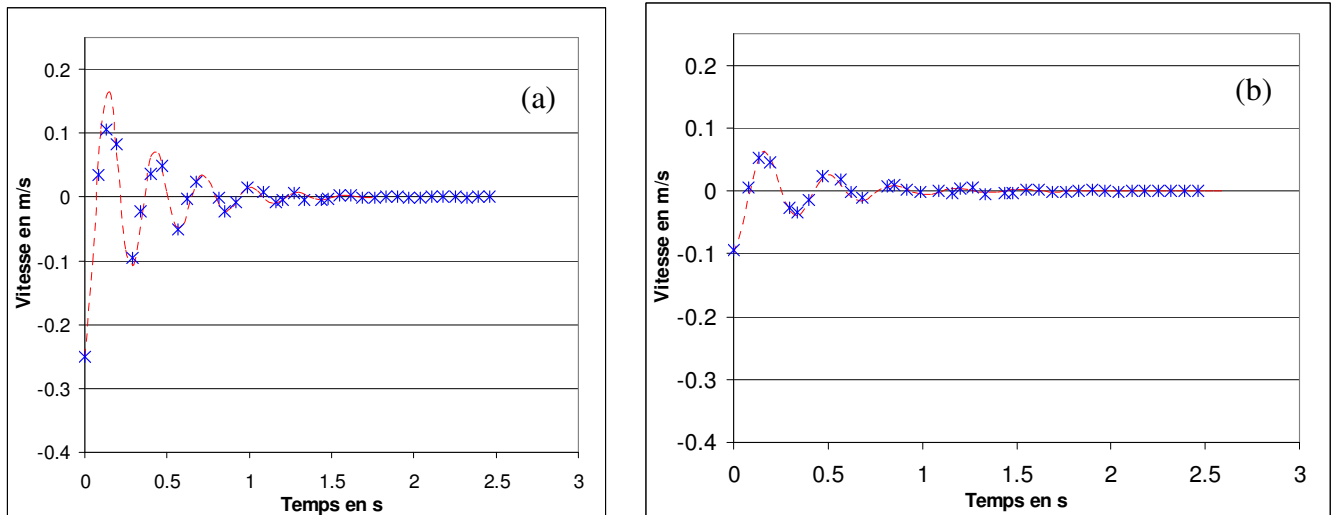


Figure IV.10. Influence de la taille de la sphère en acier sur la relaxation du fluide après son passage en milieu complexe (PAAm 1%). (a) $d_{\text{sphère}} = 8 \text{ mm}$. $Re = 5,5$. $De = 2034$. (b) $d_{\text{sphère}} = 5 \text{ mm}$. $Re = 1$. $De = 1302$.

En choisissant des sphères de tailles identiques (figure IV.11) mais de masses volumiques différentes, on observe que la sphère en acier de densité plus élevée, provoque un nombre d'oscillations plus élevé et une amplitude plus grande. Il semblerait donc que la vitesse de la sphère joue un rôle prépondérant dans la relaxation du fluide.

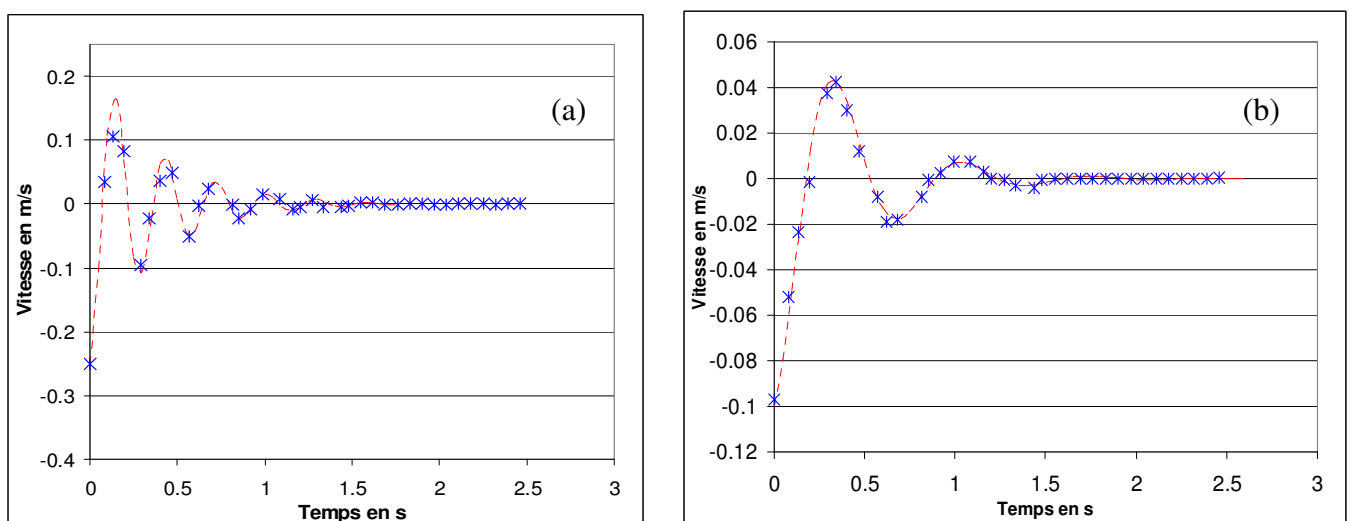


Figure IV.11. Influence du matériau d'une sphère de 8 mm sur la relaxation du fluide après son passage dans PAAm 1%. (a) sphère en acier. $Re = 5,5$. $De = 2034$ (b) sphère en verre. $Re = 0,02$. $De = 82$.

Afin de tester l'influence de la viscoélasticité, trois fluides sont étudiés (PAAm 0,25% ; 0,5% et 1%) pour deux sphères de densités différentes. Les expériences montrent que pour une sphère donnée, plus le fluide est viscoélastique, plus le nombre d'oscillations est important, mais leur amplitude est plus faible. Ce phénomène est bien traduit par les nombres de Reynolds et de Déborah indiqués sur chaque figure.

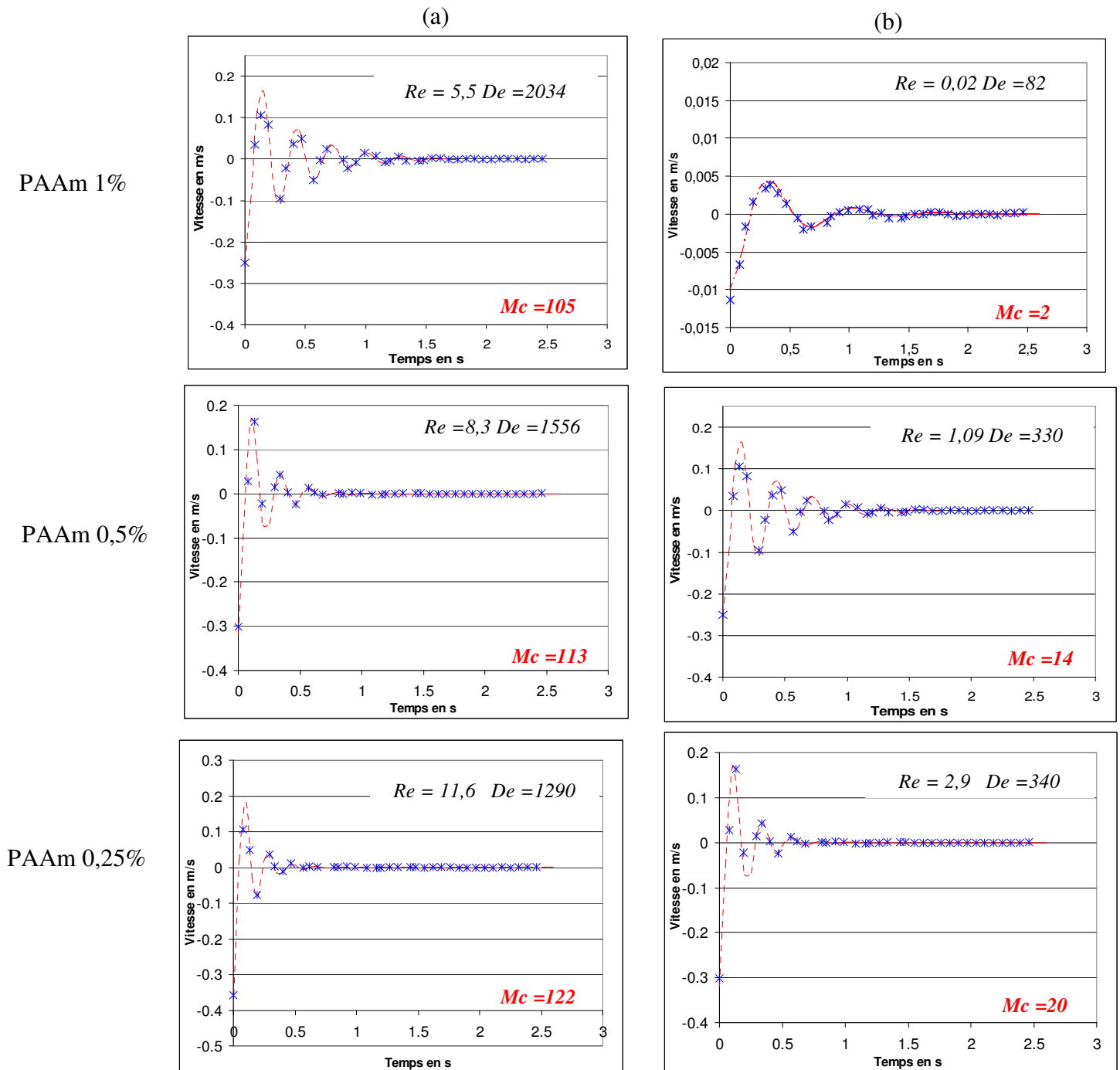


Figure IV.12. Influence du fluide lors de sa relaxation après le passage d'une sphère de 8mm dans les fluides PAAm. (a) sphère en acier (b) sphère en verre.

De plus, on constate que dans le cas du fluide le moins élastique et pour la sphère la plus petite, on n'observe quasiment aucune oscillation mise à part celle du sillage négatif. Il semblerait que pour un nombre de Deborah inférieur à 100, le phénomène de relaxation soit très faible et que pour un nombre de Deborah inférieur à 50, le sillage négatif n'apparaisse pratiquement plus (concentration en PAAm de 0,05 et 0,1 %).

Afin de tenir compte des propriétés visqueuses et élastiques des fluides, le nombre de Mach (cf. chapitre I) est indiqué sur chaque courbe de la figure IV.12. Deux observations importantes relatives aux effets visqueux et élastiques peuvent ainsi en être déduites :

- moins le fluide est visqueux, moins le nombre d'oscillations est grand (effet visqueux),
- plus le nombre de Mach viscoélastique est important plus l'amplitude des oscillations est grande (effet élastique).

Il est intéressant de remarquer que les courbes présentées sur la figure IV.12 présentent de fortes similitudes avec celles que l'on pourrait obtenir à l'aide d'un oscillateur amorti. Ceci est d'autant plus marquant que le modèle le plus simple de fluide viscoélastique (consistant à additionner les contraintes d'origine élastique et les contraintes d'origine visqueuse) se représente comme l'association en parallèle d'un ressort et d'un piston (Modèle de Kelvin-Voigt) qui n'est autre qu'un oscillateur amorti.

IV.4. Analogie avec le système « masse-ressort-amortisseur »

Afin de réaliser une analogie avec un oscillateur amorti, il est utile de définir le système masse-ressort-amortisseur illustré sur la figure IV.13.

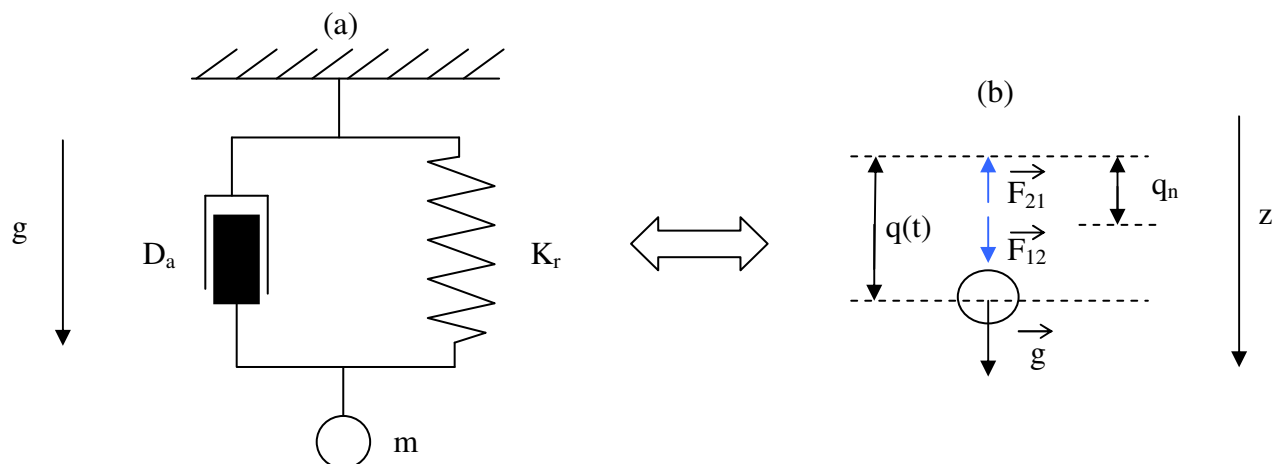


Figure IV.13. (a) Modèle de l'oscillateur amorti. (b) Bilan de forces appliqué à la masse m .

On considère une masse de fluide $m = 1 \text{ kg}$ soumis à la gravité $g = 9,81 \text{ m/s}^2$, un ressort de raideur $K_r \text{ (N/m)}$ de longueur neutre $q_n = 0,1 \text{ m}$. et un amortisseur de coefficient $D \text{ (N.s/m)}$.

Afin de décrire le mouvement du fluide soumis à une contrainte visqueuse (amortissement D) et élastique (ressort de raideur K_r), plusieurs hypothèses doivent être formulées :

- mouvement purement vertical,
- masse du fluide supposée ponctuelle,
- ressort et amortisseur supposés sans masse,
- ressort : loi force/déplacement linéaire,
- amortisseur : loi force/vitesse linéaire,
- pas de contact direct entre la masse et le support,
- pas de frottement (air, ressorts, ...).

Le choix de la variable permettant de suivre le déplacement de la masse de fluide par rapport au support est $q = q(t)$. Le bilan de forces appliqué à la masse est indiqué sur la figure IV.13, avec :

- g : gravité.
- F_{12} : force exercée par le support sur la masse (via l'ensemble ressort/amortisseur) ;

$$\begin{aligned} \text{Avec } F_{12} &= F_{\text{ressort}} + F_{\text{amortisseur}} \\ &= -K_r(q - q_i) - D \dot{q} \end{aligned} \quad (IV.05)$$

D'après la seconde loi de Newton, l'accélération subie par un corps dans un référentiel galiléen est proportionnelle à la résultante des forces qu'il subit, et inversement proportionnelle à sa masse m . D'où l'équation différentielle du second ordre :

$$-K(q - q_i) - D \dot{q} + mg = m \ddot{q} \quad (IV.06)$$

Après une simple résolution, on aboutit à la forme suivante (Conditions limites $q'(t=0) = v_i$, v_i étant la vitesse de sédimentation de la sphère et $q''(t=0) = 0$) :

$$\left\{ \begin{aligned} q(t) &= \alpha_1 e^{\beta_+ t} + \alpha_2 e^{\beta_- t} + \frac{mg}{K} + q_i & (IV.07) \\ \text{Avec } \beta_{\pm} &= \frac{-\frac{D}{m} \pm \sqrt{\frac{D^2}{m^2} - 4Km}}{2} ; \quad \alpha_2 = \frac{v_i}{\beta_-^2 - \beta_+^2} \text{ et } \alpha_1 = -\frac{\beta_-}{\beta_+} \alpha_2 & (IV.08) \end{aligned} \right.$$

Ainsi cette équation a été appliquée à l'ensemble des fluides et des sphères étudiés. Par une méthode du simplex, les paramètres de l'équation IV.07 K_r et D_a ont été optimisés pour être en adéquation avec les résultats expérimentaux. Les valeurs calculées sont reportées dans le tableau IV.02. Les courbes alors obtenues par l'équation IV.07 sont alors reportées en pointillés sur les figures IV.10 ; IV.11 et IV.12 et montrent un excellent accord.

fluide	$d_{\text{sphère}}$	-	Raideur K_r (N/m)	Coefficient d'Amortissement D_a (N.s/m)
PAAm 0.25%	8	acier	130	15
PAAm 0.25%	5	acier	107	14,8
PAAm 0.25%	10	verre	104	14,9
PAAm 0.25%	8	verre	98	14,7
PAAm 0.5%	8	acier	125	11
PAAm 0.5%	5	acier	108	11,1
PAAm 0.5%	10	verre	100	11,2
PAAm 0.5%	8	verre	97	11,2
PAAm 1%	8	acier	120	5,5
PAAm 1%	5	acier	103	5,5
PAAm 1%	10	verre	96	5,5
PAAm 1%	8	verre	89	5

Tableau IV.02. Valeurs des paramètres optimisés K_r et D_a de l'équation IV.07.

D'après ces valeurs, on peut tracer l'évolution de la raideur K_r en fonction du nombre de Mach viscoélastique Mc (Figure IV.14).

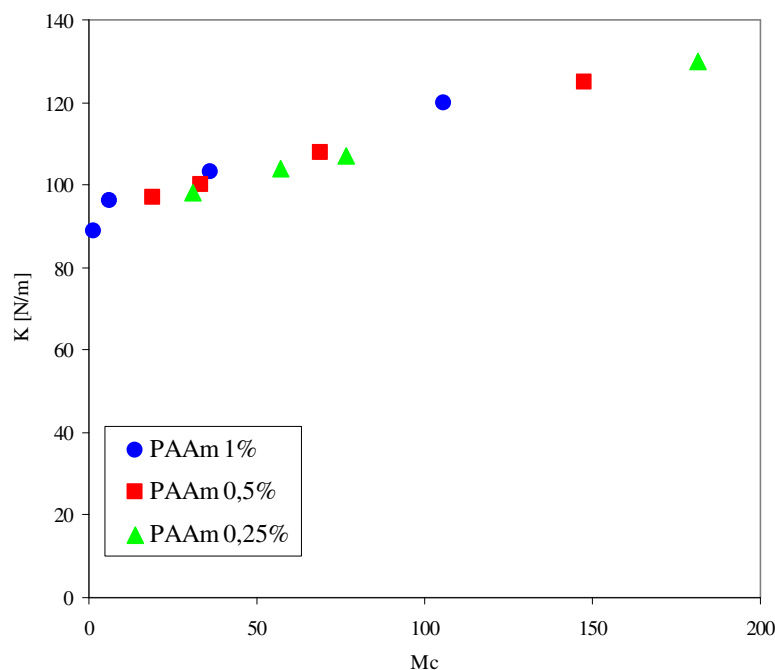


Figure IV.14. Evolution de la raideur K_r en fonction du nombre de Mach viscoélastique.

On observe que la raideur K_r évolue de manière croissante et monotone en fonction du nombre de Mach viscoélastique selon la relation suivante :

$$K_r = \frac{Mc}{z'} + 92 \quad (IV.09)$$

$$z' = 5 \text{ m/N} \quad Mc \in [1,4-383] \quad Re \in [0,02-101] \quad \text{et} \quad De \in [81-2034]$$

Cette corrélation empirique nous permet d'estimer à 3% d'erreur près en moyenne la constante d'élasticité permettant d'obtenir des résultats en bon accord avec nos expériences. Elle traduit bien l'influence de l'élasticité du fluide dans le modèle de l'oscillateur amorti. D'autre part, si on observe les valeurs du coefficient D dans le tableau IV.02, on observe que cette valeur est sensiblement identique pour les expériences utilisant le même fluide. Plus cette valeur est grande, moins l'amortissement est important, et plus le nombre d'oscillations sera faible. Ce paramètre dépend directement des propriétés rhéologiques du fluide, il est donc intéressant de le relier aux temps de relaxation défini par Carreau selon la relation :

$$D_a = \frac{\lambda_c}{z} \quad (IV.10)$$

$$z = 4 \text{ m/N} \quad \text{et} \quad \lambda_c \in [25-75 \text{ s}]$$

Les équations IV.7 IV.9 et IV.10 permettent donc de représenter avec un bon accord le phénomène de relaxation. La viscoélasticité représentée par le modèle de l'oscillateur amorti permet de bien rendre compte des effets visqueux et élastique du fluide.

IV.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié expérimentalement les écoulements autour de sphères en sédimentation dans des fluides non newtoniens viscoélastiques. Les résultats concernant les caractéristiques hydrodynamiques autour d'une sphère isolée dans trois solutions de PAAM ont été présentés. Les champs de vitesses obtenus à l'aide de la technique PIV nous ont permis de mettre en évidence la structure de l'écoulement autour d'une sphère. Cette structure montre trois zones différentes : une zone située sur le front de la sphère dans laquelle le liquide est en mouvement descendant, une zone centrale de sillage négatif de forme conique où le liquide se déplace vers le haut dans le sens opposé à celui de la sédimentation et enfin une zone correspondant au cône creux qui entoure le sillage négatif et dans laquelle le liquide est dirigé

vers la sphère. Cette structure est comparable à celle obtenue dans le cas d'une bulle en ascension dans des solutions de PAAm (Funfschilling et Li, 2001) et pour une sphère en sédimentation (Kemiha *et al.*, 2006).

L'influence des caractéristiques viscoélastiques du fluide sur l'angle d'ouverture du cône creux θ a été mise en évidence. Ainsi, pour une solution de PAAm, l'angle θ décroît avec les nombres de Reynolds, de Deborah et de Mach viscoélastique et croît avec la concentration de la solution PAAm pour des valeurs fixées de ces nombres adimensionnels. La structure du champ de vitesses autour d'une sphère (angle θ ou la longueur du sillage) peuvent de ce fait être estimés à partir de ces nombres adimensionnels

Par ailleurs, un autre phénomène a été constaté à partir des mesures PIV après le passage de la sphère. En effet, les mesures de champ de vitesses obtenues au dessus de la zone du sillage négatif ont montré un déplacement vertical oscillant du fluide après le passage de la sphère. Ce phénomène, qui se traduit par plusieurs changements simultanés et brefs du sens de déplacement du fluide, peut être expliqué par une réponse du fluide à travers son élasticité, à la déformation créée lors du passage de la sphère dans cette zone de la colonne pour retrouver son équilibre.

Un modèle basé sur un oscillateur mécanique « masse-ressort-amortisseur » permet de reproduire, avec une bonne précision, les oscillations observées après le passage de la sphère. Les effets élastiques (ressort) et visqueux (amortisseur) sont très bien représentés par ce modèle, ce qui est en accord avec le modèle de Kelvin-Voigt permettant de décrire la viscoélasticité de ces fluides. Ainsi le ressort peut être lié à l'élasticité et l'amortisseur à la viscosité du fluide.

Chapitre V :
Conclusions et Perspectives

Conclusion Générale

L'objectif de ce travail était d'améliorer la compréhension des phénomènes interfaciaux des écoulements polyphasiques gaz-liquide, liquide-liquide ou solide-liquide en milieu newtonien et non newtonien. Pour ce faire, de nouvelles techniques de mesures de pointe ont été utilisées, telles que la visualisation par caméra rapide, la vélocimétrie par images de particules ainsi que la micro-vélocimétrie par images de particules.

La caractérisation des écoulements autour d'une bulle et d'une goutte en formation dans des fluides newtoniens a fait l'objet des chapitres II.1 et III.1. Les champs de vitesses obtenus par PIV nous ont permis de mettre en évidence la structure de l'écoulement lors de cette formation. Cette structure montre l'apparition de zones de recirculation latérales. Plusieurs paramètres (propriétés physico-chimiques des deux phases, débit de la phase gazeuse, diamètre de l'orifice) ont pu être testés sur des orifices de type capillaire et plat. Cependant, malgré la quantité importante d'études sur le sujet dans la littérature, aucune corrélation existante ne permet de représenter correctement nos résultats. Ceci peut être dû au mouillage et à la forme des buses qui ne semble pas être pris en compte correctement dans la littérature. Aussi nous avons proposé un modèle simple, basé sur l'approche de quasi-équilibre avec un terme correctif qui permet, tant pour les gouttes que pour les bulles, de corréler nos résultats avec précision pour des buses de type capillaire. Ces travaux devraient cependant se poursuivre. Au-delà de l'aspect simulation numérique, il s'agit de mesures systématiques à effectuer aussi soigneusement que possible, en limitant le nombre de points expérimentaux mais en surveillant leur cohérence.

L'ajout d'un cisaillement latéral à la formation d'une bulle ou d'une goutte permet d'obtenir des inclusions (bulles ou gouttes) de plus petite taille qu'en absence d'écoulement orthogonal (§ II.2 et III.2). De plus, la taille des inclusions est d'autant plus faible que la vitesse de cisaillement est importante. La forme, la taille et l'angle de déflexion des inclusions ont pu être mesurés à l'aide de la caméra rapide. Même si, en raison de l'importance du champ de cisaillement latéral, la technique PIV ne nous a pas permis de visualiser l'hydrodynamique de la formation des gouttes et des bulles, elle nous aura néanmoins permis de mesurer localement

et avec précision la valeur de cet écoulement. Dans le cas des bulles, une corrélation permettant d'estimer l'évolution de leur taille a été proposée à partir d'un bilan de forces. Concernant la taille des gouttes, bien que la corrélation proposée soit empirique, elle présente le mérite de mettre en évidence les influences que nous avons pu observer dans le domaine expérimental exploré. Cette étude pourra être complétée par des expériences de formation de gouttes et de bulles dans d'autres phases continues afin de tester la validité des corrélations proposées.

Afin d'améliorer la compréhension de l'effet du cisaillement sur le comportement des gouttes, une étude de déformation de gouttes newtoniennes et non-newtoniennes a été entreprise dans une cellule de type Couette. Concernant les fluides newtoniens, on retient que le cisaillement induit une elongation azimutale de la goutte engendrant un amincissement de celle-ci dans le sens du cisaillement. Pour les fluides non-newtoniens, nous avons observé des phénomènes totalement différents. Aux faibles viscoélasticités, l'elongation est azimutale, alors que pour les viscoélasticités les plus fortes, l'elongation est d'abord radiale puis azimutale. Ces résultats peuvent s'expliquer par les contraintes normales non nulles dans ces solutions polymériques. L'ensemble de ces résultats nous aura donc permis de comprendre un peu mieux le phénomène de cisaillement et de l'isoler pour visualiser et analyser les déformations de gouttes jusqu'à leur rupture.

La visualisation des bulles en interaction par caméra rapide (§ II.3), combinée aux mesures de champs de vitesse par PIV ont permis de constater de nouveaux scénarios de coalescence dans un train de bulles. Ces scénarios montrent des coalescences entre bulles en ligne selon deux critères basés sur la distance entre deux bulles consécutives. La première distance caractérise le début des interactions entre bulles qui ne peuvent alors plus être considérées comme isolées, tandis que la seconde correspond au début de la coalescence. L'étude PIV combinée aux mesures de vitesses de bulles a permis de montrer que les sillages primaires et secondaires des bulles étaient responsables de ces deux distances caractéristiques. En effet, dès lors que la bulle rentre dans le sillage secondaire de la bulle précédente, on observe une augmentation de la vitesse, et dès que celle-ci rentre dans le sillage primaire, cela conduit à la coalescence des deux bulles. Cette étude a donc permis de mettre en évidence des paramètres qui gouvernent les interactions entre bulles dans plusieurs fluides non-newtoniens.

Dans le paragraphe III.2, la traversée d'une interface liquide-liquide par une bulle ou une sphère rigide a été étudiée pour différents couples de liquides. Une description du phénomène a été réalisée par visualisation en utilisant la caméra rapide. Par ailleurs, les principales caractéristiques de la traversée de l'interface ont été dégagées, en particulier, le temps de passage à l'interface, la longueur d'étirement de cette dernière ainsi que la symétrie du phénomène. L'étude des variations du temps de passage à l'interface et de l'étirement de l'interface réalisée à partir des différents résultats expérimentaux a montré une évolution de ces deux paramètres selon des lois de puissance, avec un nombre adimensionnel défini à partir des nombres de Reynolds et de Morton ainsi que des propriétés physiques du couple de liquides utilisé. Une corrélation permettant de regrouper les résultats obtenus avec des sphères et des bulles a finalement été proposée. Les mesures de champs de vitesses déterminées par la technique PIV autour de la bulle et de la sphère avant, pendant et après la traversée de l'interface ont permis de mettre en évidence le rôle de frontière joué par l'interface, ainsi que le mécanisme d'amincissement du film de liquide entraîné par l'inclusion

La déformation des interfaces liquide/liquide demeurant la difficulté majeure dans la modélisation des phénomènes polyphasiques, nous nous sommes aussi intéressés à la déformation d'une interface liquide-liquide par un écoulement circulaire imposé par une tige tournante dans les deux liquides ayant un comportement newtonien ou non-newtonien, et ce tant à l'échelle mésoscopique que microscopiques (Chapitre III.3). Les différentes études réalisées à la fois sur l'effet Weissenberg classique et l'effet amplifié ont permis de vérifier et de confirmer certains résultats présents dans la littérature à l'échelle mésoscopique. L'étude PIV a permis de mettre en évidence les causes de l'amplification en visualisant les instabilités d'écoulement, même s'il n'a pas été possible, à cette échelle, de visualiser le déplacement du fluide dans la partie ascendante le long de l'axe de rotation. La réalisation d'une interface horizontale à l'échelle millimétrique nous a permis d'obtenir et de visualiser des effets micro-Weissenberg horizontaux. Les déplacements d'interfaces, de l'ordre de quelques millimètres de longueur et de centaines de micromètres de largeur ont pu être visualisés et le système μ -PIV nous a permis d'obtenir des champs de vitesses qui n'auraient pu être mesurés avec précision par PIV à l'échelle mésoscopique avec précision. Ainsi cette étude réalisée à l'échelle microscopique a permis de visualiser et de comprendre le sens de l'écoulement des fluides ainsi que la localisation des instabilités à la base de la partie du fluide qui se déplace le long de l'axe. Plusieurs corrélations ont finalement été proposées pour évaluer le déplacement

de l'interface constituée par des fluides newtoniens et non-newtoniens aux deux échelles étudiées.

Les phénomènes interfaciaux étudiés dans ce travail, en particulier la coalescence de bulles dans les fluides newtoniens et non newtoniens, la déformation des gouttes soumises à un écoulement extérieur ou encore le passage d'une bulle à travers une interface liquide–liquide font tous intervenir une caractéristique commune : la rupture du film liquide. La compréhension du mécanisme de ces phénomènes passe donc forcément par celle de la rupture de ce film liquide à son échelle réelle à savoir microscopique voire moléculaire. Ceci devrait être possible compte tenu des récents progrès des techniques de mesures qui ont permis de développer la technique PIV et de l'étendre à la version μ -PIV permettant d'obtenir des champs de vitesses à une échelle de 1 à quelques centaines de microns. Le paragraphe §II.4 était consacré à l'étude d'écoulements gaz-liquide dans des micro–mélangeurs de géométries de type T,Y ou *flow focusing*, en considérant notamment l'influence de l'échelle du dispositif et de sa géométrie, la nature ainsi que les débits des fluides utilisés. Cette étude a permis de quantifier l'influence des différentes forces intervenant lors de la formation de bulles, notamment à travers les corrélations proposées qui ont montré de fortes influences du rapport des débits entre les phases gazeuses et liquides et de la taille des canaux. Il est intéressant de noter que le cisaillement n'est pas un paramètre majeur de la formation de bulle, celle-ci étant dominée par une compétition entre les différentes forces agissant sur la bulle et notamment celui de la tension superficielle. Enfin, cette étude a permis de quantifier l'influence de la géométrie du micro-mélangeur qui apparaît encore plus grande dans les micro-mélangeurs de type « T et Y » que dans ceux de type « *flow-focusing* », donc des effets de parois.

La caractérisation des écoulements autour d'une sphère rigide dans des fluides non newtoniens a fait l'objet du chapitre IV. Les champs de vitesses obtenus par PIV nous ont permis de mettre en évidence la structure de l'écoulement autour d'une sphère. L'influence des caractéristiques viscoélastiques du fluide sur l'angle d'ouverture du cône creux θ a été mise en évidence tant pour une bulle en ascension que pour une sphère rigide en sédimentation. Ainsi, l'angle θ décroît avec les nombres de Reynolds, de Deborah et de Mach viscoélastique pour une solution donnée, et croît avec la concentration de la solution polymérique PAAM pour des valeurs fixées de ces nombres adimensionnels. Le phénomène de relaxation du fluide après le

passage de la sphère a pu être confirmé et approfondi. Les oscillations mesurées suivent un modèle simple de type « masse-ressort-amortisseur » qui traduit convenablement les propriétés visqueuses et élastiques de ces solutions polymériques.

Nous avons pu, en utilisant plusieurs techniques de mesures de pointe, à savoir la μ -PIV, PIV et la caméra rapide, étudier des écoulements polyphasiques, dans des fluides newtoniens et non newtoniens. La combinaison de ces techniques de mesure était parfois nécessaire pour l'étude de certains phénomènes, notamment à diverses échelles. Cette étude multi-échelle nous a ainsi permis de lever le voile sur l'existence et la compréhension des phénomènes tels que : la formation de la bulle multi-échelle ; la rupture liquide-liquide ; la déformation de gouttes, l'effet Weissenberg amplifié et microscopique, le passage d'une bulle à l'interface ou encore le phénomène de relaxation dans les fluides viscoélastiques. L'évolution de ces techniques expérimentales de mesures dans les écoulements polyphasiques à dispersion, a permis de passer de mesures globales aux mesures locales, avec une très bonne précision.

Perspectives

Dans ce mémoire, nous avons présenté des résultats expérimentaux relatifs aux écoulements polyphasiques à multi échelle en milieu newtonien et non newtonien, mettant en évidence certains phénomènes interfaciaux très intéressants.

Nous présenterons dans ce qui suit, diverses perspectives de recherches permettant d'envisager de nouvelles voies ou de compléter les travaux réalisés dans cette étude afin d'améliorer la compréhension des phénomènes interfaciaux, tant sur le plan de la recherche expérimentale à caractère fondamental que sur le plan de la simulation numérique.

En raison de la forte contribution que permettent de porter les mesures de champs de vitesses à l'étude des phénomènes physiques, il est important de poursuivre les études expérimentales abordées dans ce travail de thèse, par les expériences suivantes qui constituent donc les perspectives de ce travail.

L'étude des bulles et de leurs interactions en milieu newtonien pourrait être complétée, en utilisant des fluides moins visqueux tels que l'eau. L'étude pourrait également être envisagée en utilisant des fluides non newtoniens. Une comparaison des vitesses ascensionnelles des bulles en interaction pourrait conduire à un modèle de prédiction de coalescence des bulles dans ces milieux non newtoniens. L'évolution des champs de vitesses autour des bulles durant leur coalescence permettra d'accéder au changement de structure globale de l'écoulement du liquide entourant ces bulles, avec notamment le suivi spatio-temporel du phénomène. Deux caractéristiques importantes de l'ascension des bulles en milieu non newtonien pourront notamment être examinées :

- l'influence du sillage négatif sur la bulle suivante (illustré sur la figure V.01), en effet il semblerait que pour des angles du cône creux inférieurs à 20° , on observe un non alignement du train de bulles.
- l'influence des oscillations du fluide (effet de relaxation) sur les interactions entre les bulles.

En plus de ces interactions de bulles dans un train unique, l'interaction entre deux trains de bulles pourrait également être étudiée compte tenu du manque de données expérimentales à ce sujet. Nous avons démarré dans ce travail une étude basée sur la visualisation par caméra rapide des interactions entre deux trains de bulles ; ces résultats pourront ainsi être complétés par la suite.

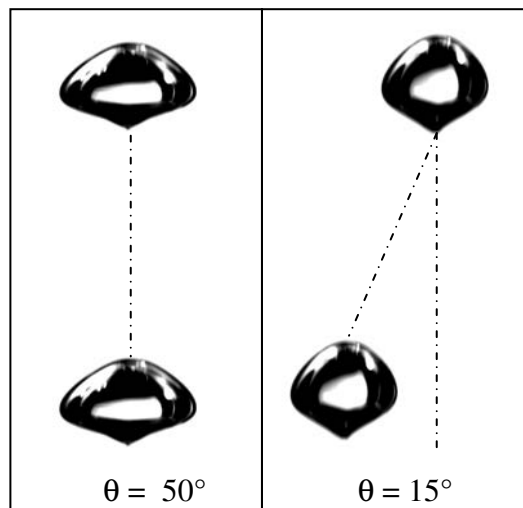


Figure V.01. Influence du cône du sillage négatif sur les interactions en ligne des bulles en milieu non newtonien.

Par ailleurs, le phénomène de traversée d'une interface liquide-liquide ou encore la déformation d'une goutte sous un champ de cisaillement sont loin d'être compris ou modélisés. Les perspectives envisagées dans ce domaine consisteraient à multiplier les expériences avec plusieurs tailles de gouttes afin d'affiner les lois de variations des différents paramètres tels que l'étirement et la rupture des interfaces liquide-liquide. De plus l'étude sur des instabilités interfaciales obtenues dans le sillage de la sphère traversant une interface liquide-liquide devrait être élargie aux gammes supérieures de nombres de Reynolds non étudiés dans ce travail.

L'étude préliminaire présentée dans le paragraphe II.4 sur la nucléation des bulles à l'échelle microscopique a permis de montrer qu'il était possible de mesurer des champs de vitesse autour des bulles. Dans l'avenir il serait ainsi intéressant de mesurer des champs de vitesse autour de bulles de biogaz en nucléation sur un grain de boue (Fig. V.02.a) ou encore de mesurer les phénomène de croissance des bulles à des échelles encore plus petites que dans cette étude (fig. V.02.b).

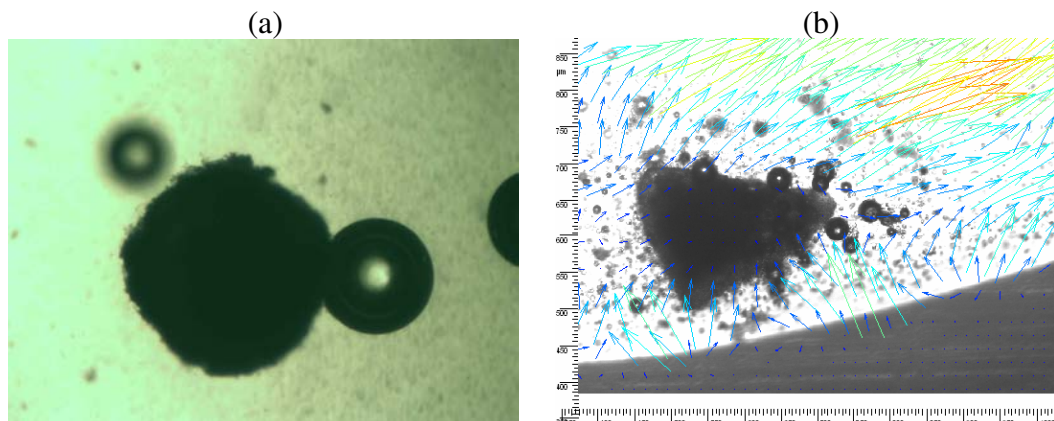


Figure V.02. (a) Formation d'une bulle de biogaz sur un grain de boue (Wu, 2007) (b) Champs de vitesse mesuré par μ -PIV lors de la nucléation de bulles sur un grain d'aspirine effervescent.

Les perspectives de recherches concernant les micro-écoulements polyphasiques porteront essentiellement sur :

- la poursuite de l'étude de formation de bulles dans différents micro-mélangeurs en étudiant particulièrement la formation de bulles en milieux non newtoniens,
- la comparaison entre les résultats gaz-liquide et liquide-liquide à l'échelle microscopique pourrait être effectuée afin de généraliser et de déterminer les forces prépondérantes à cette échelle.

- enfin l'étude de la coalescence entre deux micro-bulles ou deux gouttelettes dans un canal contenant un liquide newtonien ou non newtonien à l'aide de la micro-PIV, ce qui permettrait d'obtenir des champs de vitesses constituant une base de compréhension de la coalescence au niveau des champs de vitesses et de contraintes.

Concernant ce dernier point, des tests préliminaires ont déjà été réalisés dans ce travail, comme le montrent les figures V.03 et V.04. Dans un micro-mélangeur en T de 500 μm , les écoulements gaz-liquide de chacune des deux branches se croisent afin de favoriser des phénomènes de coalescence. Pour ce faire, deux configurations différentes sont étudiées. Dans la première, les courants arrivent orthogonalement, tandis que dans la seconde, les écoulements gaz-liquide sont dans le sens opposés. Dans cette étude préliminaire, malgré l'ajout de tensioactif pour abaisser la tension superficielle, il n'a jamais été possible de visualiser le moindre phénomène de coalescence entre les bulles, les bulles se contournaient et se scindaient sous le contact de l'autre bulle.



Figure V.03. Etude de la coalescence de bulles dans de l'eau + 3% SDS dans un micro-mélangeur en T de 500 μm . Les courants d'entrées sont perpendiculaires.

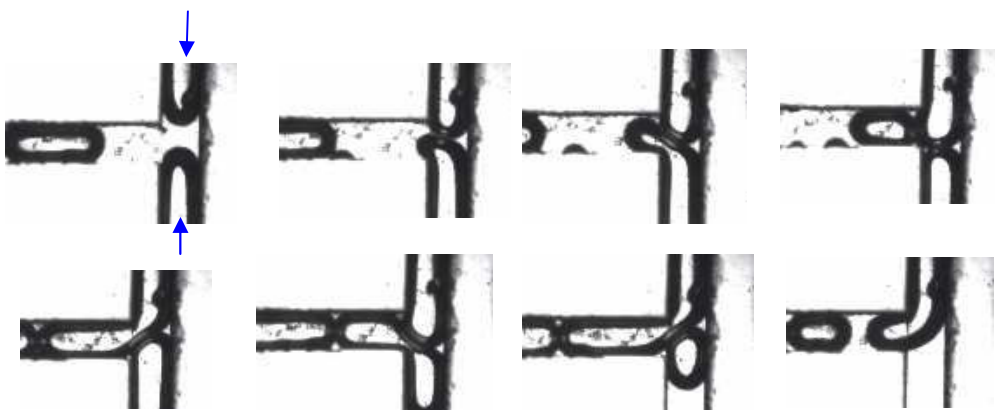


Figure V.04. Etude de la coalescence de bulles dans de l'eau + 3% SDS dans un micro-mélangeur en T de 500 μm . Les courants d'entrées sont opposés.

Afin d'étudier ce phénomène, il faudra d'abord travailler à de faibles débits pour augmenter le temps de contact entre deux bulles nécessaire au drainage du film entre deux bulles avant leur coalescence et utiliser une géométrie permettant l'arrivée latérale des deux bulles. Pour ce faire, les bulles pourraient par exemple subir une rupture préalable dans un mélangeur à l'aide d'une chicane puis positionnées latéralement dans un long canal. Il serait également possible d'étudier des réactions chimiques gaz-liquide ou liquide-liquide dans de tels dispositifs.

L'essor des micro-bulles est important, comme l'ont rapporté les travaux de Prakash *et al.* (2007), il serait ainsi possible d'utiliser les écoulements polyphasiques microscopiques afin de représenter les bulles dans les micro-canaux comme des informations (*bit*), afin de construire des circuits qui reproduiraient les opérateurs booléens (et ; ou ; faux) tout en combinant de nombreux autres arrangements (oscillations, inversions, etc..). Car contrairement à l'électronique, une bulle/bit d'information peut également porter une charge chimique, ce qui permettra de manipuler des matériaux et de l'information en même temps. Tout ceci démontre la puissance du système diphasique microfluidique qui laisse la possibilité d'imaginer de futurs systèmes « intelligents » développant de véritables ordinateurs à bulles. De plus il serait possible d'utiliser des tensioactifs photosensibles (Smith *et al.*, 2003 et 2006) qui permettent de modifier la tension superficielle selon l'intensité de la source UV et par conséquent une autorégulation du « laboratoire sur puce » et une amélioration du contrôle du procédé dans le but d'imaginer des unités de production intelligentes et autonomes.

Du côté biophysique, les micro-bulles permettent d'obtenir des échographies de bien meilleure qualité et pourraient bientôt être utilisées pour libérer les médicaments directement dans les cellules malades (Fuerstman *et al.*, 2007). De plus les cellules cancéreuses communiquent avec d'autres cellules saines ou moins malignes, en émettant des microbulles (qui contiennent des protéines causant le cancer) déclenchent des mécanismes à l'intérieur des cellules saines ou moins malignes avec lesquelles elles finissent par fusionner. La connaissance de leur comportement pourra aussi mener à des innovations cliniques majeures (Rak *et al.*, 2008).

Enfin, les résultats contenus dans ce mémoire constituent une bonne base de données qui pourra être utilisées pour valider les différentes simulations développées au laboratoire. L'approche Lattice Boltzmann développée dans notre équipe présente une bonne alternative au code de calcul VOF, en particulier pour sa capacité à prendre en compte la rhéologie complexe des fluides souvent utilisés dans ce travail. Des simulations pourront ainsi être réalisées en utilisant cette approche pour les différents thèmes abordés dans ce travail, et notamment les interactions entre bulles ou sphères rigides dans les fluides non newtoniens, la traversée de l'interface liquide–liquide par une bulle ou une sphère.

Références bibliographiques

Références bibliographiques

Abcha N., N. Latrache, L. Nana, A. Ezersky⁴ & I. Mutabazi (2007). Dynamique des défauts spatiotemporels dans un motif de spirales de Taylor. 18ème congrès français de mécanique, Grenoble, 27-31 août 2007.

Abraham F.F. (1974). Homogeneous Nucleation Theory, Academic Press, New York.

Acharya A. et Ulbrecht J. (1978). Note on Influence of Viscoelasticity on Coalescence Rate of Bubbles and Drops. *AIChE J.*, 24, 2, 348.

Acharya, A. et Ulbrecht, J. (1978). Note on the influence of viscoelasticity on the coalescence rate of bubbles and drops. *AIChE Journal*, 24, 384-351.

Acharya, A., Mashelkar, R.A. et Ulbrecht, J. (1977). Mechanism of bubble motion and deformation in non-newtonian media. *Chemical Engineering Science*, 32, 863-872.

Amon M. et Denson C.D. (1984). A study of the dynamics of foam growth: analysis of the growth of closely spaced spherical bubbles. *Polymer Engineering and Science*, 24, pp. 1026–1034.

Andereck C.D., Liu S.S. et Swinney H.L. (1986). Flow regimes in a circular Couette system with independently rotating cylinders. *J. Fluid Mech*, 164-155-183

Anna, S.L., Bontoux, N., et Stone, H.A. (2003). Formation of dispersions using “flow focusing” in microchannels. *Applied Physics Letters*, 82, 364-366.

Arigo, M. T. et McKinley G. H. (1997). The effects of viscoelasticity on the transient motion of a sphere in a shear-thinning fluid. *Journal of Rheology*, 41(1), 103-128.

Arigo, M. T. et McKinley G. H. (1998). An experimental investigation of negative wakes behind spheres settling in a shear-thinning viscoelastic fluid. *Rheologica Acta*, 37, 307-327.

Arigo, M.T., Rajagopalan, D., Shapley, N. et McKinley, G.H. (1995). The sedimentation of a sphere through an elastic fluid: Part 1. Steady motion. *Journal of Fluid Mechanics*, 60, 225-257.

Badam V. K., Buwa, V. et Durst F., 2007. Experimental investigations on regimes of bubble formation on submerged orifices under constant flow conditions. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 85, 257-267.

Barhate R.S., Ganapathi Patil, N.D. Srinivas et K.S.M.S. Raghavarao (2004). Drop formation in aqueous two-phase systems. *Journal of Chromatography A*, 1023, 197–206.

Barker G.S., B. Jefferson and S.J. Judd. (2002). The control of bubble size in carbonated beverages. *Chemical Engineering Science*, 57, 565–573.

Barraud R. (1998). Rapport de DEA. Nucléation et croissance des bulles en milieu rhéologiquement complexe, INPL, Nancy, France.

Bashforth F. et Adams J. (1883). An Attempt to Test the Theories of Capillary Action Cambridge Press, Cambridge.

Bataille, J., Lance, M. et Marie, J. L. (1991). Some Aspect of the Modelling of Bubbly Flows. In Phase-Interface Phenomena in Multiphase Flow, ed. G.F., Hewitt, F., Mayinger, J.R., Riznic, pp. 179-193.

Beavers G.S., Joseph D.D. (1979). Experiments on free surface phenomena. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 5, 323-352.

Becker, L., McKinley, G. H., Rasmussen, H. K. et Hassager O. (1994). The unsteady motion of a sphere in a viscoelastic fluid. *Journal of Rheology*, 38, 2, 377-403.

Becker, L.E., McKinley, G.H. et Stone, H.A. (1996). Sedimentation of a sphere near a plane wall: weak non-Newtonian and inertial effects. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 63, 201-233.

Betata, S. (1998). Les écoulements polyphasiques aux abords des puits dans les gisements d'hydrocarbures = multiphase flow in the vicinity of wells in the hydrocarbons fields. Ph. D. thesis, Université de Paris 6, Paris, France.

Bhaga, D. et Weber, M.E. (1980). In-line interaction of a pair of bubbles in a viscous liquid. *Chemical Engineering Science*, 35, 2467-2474.

Bhavaraju S.M., T.W.F. Russel et Blanch H.W. (1978), The design of gas sparged devices for viscous liquid systems, *AIChE J.*, 24, 454-466.

Biesheuvel, A. et van Wijngaarden, L. (1982). The motion of pairs of gas bubbles in perfect liquid. *J. Engng. Math*, 16, 349–365.

Bird, R. B., Armstrong, R. C. et Hassager, O. (1987). Dynamics of polymeric liquids. 2nd edition, Volume 1: Fluid Mechanics, John Wiley & Sons. New York.

Bisgaard, C. (1983). Velocity fields around spheres and bubbles investigated by Laser-Doppler Anemometry. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 12, 283-302.

Blander M. (1975). Bubble nucleation in liquids. *A.I.Ch.E. Journal*, 21, 833–848.

Bodart, C. et Crochet, M.J. (1994). The time-dependent flow of a viscoelastic fluid around a sphere. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 54, 303-329.

Boger D. V. and K. Walters (1993). Rheological Phenomena in Focus, Elsevier.

Bohr T., T.R.N. Jansson, M.P. Haspang, K.H. Jensen, P. Hersen (2006). Polygons on a Rotating Fluid Surface. *Phys. Rev. Lett.* 96, 174502 (2006)

Bonn D., Kobylko M., Bohn S., Meunier J., Morozov A. and van Saarloos W. (2004). Rod-Climbing Effect in Newtonian Fluids. *Phy. Rev. Lett.*, 93 214503.

Bot, E.T.G., Hulsen, M.A. et van den Brule, B.H.A.A. (1998). The motion of two spheres falling along their line of centres in a Boger fluid. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 79, 191-212.

Brown, R., 1928. A brief account of microscopical observations made in the months of June, July, and August, 1827, on the particles contained in the pollen of plants; and on the general existence of active molecules in organic and inorganic bodies. Edinburgh New Phil. J.

Burkhalter J. E. and Koschmieder E. L., (1973). Steady supercritical Taylor vortex flow. *J. Fluid Mech.*, 58 , 547-560.

Burns, M.A., Johnson, B.N., Brahmasetra, S.N., James K.H., Webster, R., Krishnan, M., Sammarco, T.S, Man, P.M., Jones, D., Heldsinger, D., Mastrangelo, C.H., et Burke, D.T. (1998). An Integrated Nanoliter DNA Analysis Device. *Science*, 282, 484-487.

Bush, J. W. M. et Eames I. (1997). Fluid displacement by high Reynolds number bubble motion in a thin gap. *International Journal of Multiphase Flow*, 24 , 411-430.

Chambers, R.D., Holling, D., Spink, R.C.H., Setford, G. (2001), Elemental fluorine - Part 13. Gas-liquid thin film micro-mixers for selective direct fluorination. *Lab on Chip*, 1, 132-137.

Chan W.K. et C. Yang (2005). Surface-tension driven liquid-liquid displacement in a capillary. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 15, 1722-1728.

Chao-Tai Chen, Jer-Ru Maa, Yu-Min Yang et Chien-Hsiang Chang (2001). Drop formation from flat tip nozzles in liquid-liquid system. *Int. Comm. in Heat and Mass Transfer*, 28, 5, 681-692. *Chemical Engineering Science*, 35, 2467-2474.

Chen, J. D., Hahn, P. S. et Slattery, J. C. (1984). Coalescence time for a small drop or bubble at a fluid-fluid interface. *AIChE Journal*, 30 , 622-630.

Chhabra R.P. (1992). Bubbles, Drops & Particles in Non-Newtonian Fluids, CRC Press, Boca Raton, FL.

Chhabra R.P., Tiu C., Uhlherr P.H.T. (1981). Creeping motion of spheres through Ellis model fluids. *Rheol. Acta*, 20, 346-351.

Chhabra, R.P. (1993). Bubbles, drops and particles in non-Newtonian fluids. CRC press. Boca Raton.

Chhabra, R.P. et Uhlherr, P. H. T. (1980). Sphere motion through non-Newtonian fluids at high Reynolds number. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 58, 124-128

Chi, B.K. et Leal, L.G. (1989). A theoretical study of the motion of a viscous drop toward a fluid interface at low Reynolds number. *Journal of Fluid Mechanics*, 201, 123-146.

Chilcott, M.D. et Rallison, J.M. (1988). Creeping flow of dilute polymer solutions past cylinders and spheres. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 29, 381-432.

Cho, Y. I., Hartnett, J. P. et Lee, W. Y. (1984). Non-Newtonian viscosity measurements in the intermediate shear rate range with the falling-ball viscosimeter. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 15, 61-74.

Clift, R., Grace, J. R. et Weber, M. E. (1978). Bubbles, Drops and Particles. Academic press, New- York, USA.

Crabtree, J.R. et Bridgwater, J. (1969). Chain bubbling in viscous liquids. *Chem. Eng. Sci*, 24, 1755-1768.

Coles, D. (1965). Transitions in circulaire Couette flow. *J.Fluid.Mech*, 21, 3, 385-425.

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

Cubaud, T., Tatineni, M., Zhong, X. et Ho, C.-M., (2005). Bubble dispenser in microfluidic devices. *Physical Review E*, 27, 037302.

Dallon, D.S. (1967). Drag coefficient correlation for spheres settling in Ellis fluids. PhD Thesis, University of Utah.

Danov K. D., Gurkov T. D., Raszillier H. et Durst F. (1998). Stokes flow caused by the motion of a rigid sphere close to a viscous interface. *Chemical Engineering Science*, 53, 3413-3434.

Darwin, C. (1953). A note on hydrodynamics. *Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, 49, 342-354.

Davidson J.F. et Harrison H. (1963). Fluidized particles. Cambridge university press.

Davidson J.F. et Schuler B.O.G. (1960a). Bubble formation at an orifice in a viscous liquid. *Trans. Instn Chem. Engrs*, 38, 144-154.

Davidson J.F. et Schuler B.O.G. (1960b). Bubble formation at an orifice in an inviscid liquid. *Trans. Instn Chem. Engrs*, 38, 335-342.

De Chazal, L.E.M. et J.T.Ryan, (1971). Formation of organic drops in water. *AIChE J.*, 17, 1226-1229.

De Kee, D. et Chhabra, R.P. (2002). Transport processes in bubbles, drops and particles. 2nd Ed. Francis & Taylor Publishing, New York.

De Nevers, N. et Wu, J.-L. (1971). Coalescence in viscous fluids. *AIChE Journal*, 17, 1, 182-186.

De Vries, A. W. G., Beisheuvel, A. et van Wijngaarden, L. (2002). Notes on the path and wake of a gas rising bubble in pure water. *International Journal of Multiphase Flow*, 28, 1823-1835.

Dittrich, P.S., Manz, A. (2006). Lab-on-a-chip: microfluidics in drug discovery. *Nature Reviews Drug Discovery*, 5, 210–218.

Eames, I. et Duursma G. (1997). Displacement of horizontal layers by bubbles injected into fluidised beds. *Chemical Engineering Science*, 52 , 2697-2705.

Einstein, A., (1905). *Ann. d. Physik* 17, 549-560 (également démontré par Sutherlet, W., (1905). *Phil. Mag.* 9, 781).

Ellingsen, K. (1998). Hydrodynamique des écoulements pilotées par l'ascension de bulles d'air virevoltantes. Thesis 1474, INP Toulouse, France.

Fan, L.S. et Tsuchiya, K. (1990). Bubble wake and liquid-solid suspensions. Butterworth Heinmann Series in Chemical Engineering.

Fan, L.S., Yu, Z., Hemminger, O. (2007). Experiment and lattice Boltzmann simulation of two phase gas-liquid flows in microchannels. *Chemical Engineering Science*, 62, 7505-7514.

Favelukis M., Tadmor Z., Semiat R. (1999). Bubble Growth in a Viscous Liquid in a Simple Shear Flow. *AIChE. J.*, 45-691.

Frank X., Funfschilling D., Midoux N. & Li H.Z. (2006). Bubbles in a viscous liquid: Lattice Boltzmann simulation and experimental validation. *J. Fluid Mech.*, 546, 113-122.

Frank, X. (2005). Approche multiéchelle de la dynamique des bulles en fluide non newtonien. Ph.D. thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL), Nancy, France.

Frank, X. et Li, H.Z. (2005). Complex flow around a bubble rising in a non-Newtonian fluid. *Physical Review E*, 71, 036309.

Fries, D.M., Waelchli, S., Rudolf von Rohr, P. (2007). Gas-liquid two-phase flow in metering microchannels. *Chemical Engineering Journal*, 135, S37-45.

Fuerstman M.J., P. Garstecki, and G.M. Whitesides (2007). Coding/Decoding and Reversibility of Droplet Trains in Microfluidic Networks. *Science*, 315, 828-832.

Funfschilling, D. (1999). Dynamique de bulles dans des fluides rhéologiquement complexes. Ph. D. thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL), Nancy, France.

Funfschilling, D. et Li, H. Z. (2001). Flow of non-Newtonian fluids around bubbles: PIV measurements and birefringence visualisation. *Chemical Engineering Science*, 56, 3, 1137-1141.

Gaddis E. et Vogelpohl A. (1986). Bubble formation in quiescent liquids under constant flow conditions. *Chem. Eng. Sci.*, 41(1), 97.

- Gañán-Calvo, A.M. (1998). Generation of steady liquid microthreads and micron-sized monodisperse sprays in gas streams. *Physical Review Letters*, 80, 285-288.
- Ganan-Calvo, A.M., Gordillo, J.M. (2001). Perfectly monodisperse microbubbling by capillary flow focusing. *Physical Review Letters*, 87, 274501.
- Ganatos, P. Pfeffer, R. et Weinbaum, S. (1978). A numerical-solution technique for three-dimensional Stokes flows, with application to the motion of strongly interacting spheres in a plane. *J. Fluid Mech*, 84, 79-111.
- Garstecki, P., Fuerstman, M.J., Stone, H.A., Whitesides, G.M. (2006). Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction – scaling and mechanism of break up. *Lab on chip*, 6, 437-446.
- Garstecki, P., Stone, H.A., Whitesides, G.M. (2005). Mechanism for flowrate controlled breakup in confined geometries. *Phys. Rev. Lett*, 94, 164501.
- Geller A.S., Lee S.H., Leal L.G. (1986). The creeping motion of a spherical particle normal to a deformable interface. *J. Fluid Mech.*, 169, 27-69.
- Gera, D. et Gautam, M. (1995). Effect of bubble coalescence on through flow velocity in a 2-D fluidized bed. *Powder Technology*, 83, 49-53.
- Gheissary, G. et van den Brule, B.H.A.A. (1996). Unexpected phenomena observed in particle settling in non-Newtonian media. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 67, 1-18.
- Ghosh, A.K. et Ulbrecht, J.J. (1989). Bubble formation from a spurger in polymer solutions.
- Godfrey J.C. et C. Hanson (1982). Liquid-Liquid Systems. *Hetbook of Multiphase Systems*, Ed. G. Hestroni, Hemisphere.
- Graaf, S. van der; Nisisako, T.; Schroën, C.G.P.H.; Sman, R.G.M. van der; Boom, R.M. (2005). Droplet formation in a T-shaped microchannel. *Langmuir*, 22,9, 4144-4152.
- Grace, J., Wairegi, T. et Nguyen, T.H. (1976). Shape and velocities of single drops and bubbles moving freely through immiscible liquids. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, 54, 167-173.
- Greene, G.A., Chen, J.C., Conlin, M.T. (1988). Onset of entrainment between immiscible liquid layers due to rising gas bubbles. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 31, 6, 1309-1317.
- Greene, G.A., Chen, J.C., Conlin, M.T. (1991). Bubble induced entrainment between stratified liquid layers. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 31, 6, 149-157.
- Guillot, P., Colin, A., (2005). Stability of parallel flows in a microchannel after a T-junction. *Physical Review E*, 72 (066301).

Happel, J. et Pfeffer, R. (1960). The motion of two spheres following each other in a viscous fluid. *AIChE J.*, 6, 129–133.

Harkins W.D. et F.E. Brown (1919). Determination of surface tension and the weight of falling drops: The surface tension of water and benzene by the capillary height method. *J. Am. Chem. Soc.*, 41, 499.

Harlen, O. G. (2002). The negative wake behind a sphere sedimenting through a viscoelastic fluid. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 108, 411-430.

Harper, J.F. (1970). On bubbles rising in line at large Reynolds number. *J. Fluid Mech*, 41, 751–758.

Harper, J.F. (1983). Axisymmetric Stokes flow images in spherical free surfaces with applications to rising bubbles. *J. Austral. Math. Soc. Ser B*, 25, 217-231.

Harper, J.F. (1997). Bubbles rising in line: why is the first approximation so bad?. *J. Fluid Mech*, 351, 289–300.

Harrison G.M., Lawson N.J., Boger D.V., (2001), The measurement of the flow around a sphere settling in a rectangular box using 3-dimensional particle image velocimetry, *Chem. Eng. Commun.*, 188, 143-178.

Hartland S. (1970). The profile of the draining film between a fluid drop and deformable fluid-liquid interface. *Chem. Engng J.* 1 , 61

Hassager O. (1979). Negative wake behind bubbles in non-Newtonian liquids. *Nature*, 279, 402- 403.

Haverkamp, V., Hessel, V., Lowe, H., Menges, G., Warnier, M. J. F., Rebrov, E. V., de Croon, M. H. J. M., Schouten, J. C., Liauw, M. A. (2006). Hydrodynamics and mixer-induced bubble formation in micro bubble columns with single and multiple-channels. *Chemical Engineering Technology*, 29, 1015-1026.

Hayworth, C.B., & Treybal, R.E. (1950). Drop formation in two liquid phase systems. *Ind. & Eng. Chem.*, 42, 1174-1181.

Heertjes P.M. et L.H. de Nie (1971). Mass Transfer to Drops, in *Recent Advances in Liquid-Liquid Extractions*, 637-406, Ed. C. Hanson, Oxford.

Helfinstine, R.A. et Dalton, C. (1974). Unsteady potential flow past a group of spheres. *Comput. Fluids*, 2, 99–112.

Hinch, E.J. et Acrivos A. (1980). Long slender drops in a simple shear flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 98, 2, 305-328.

Hori T. et Sakakibara J. (2004). High-speed scanning stereoscopic PIV for 3D vorticity measurement in liquids. *Meas. Sci. Technol.* 15, 1067–1078.

Humphrey J.A.C. (1980). Note on drop formation at low velocity in quiescent liquids. *Chem.*

Eng. Sci., 35, 1452-1454.

Issenmann B., A. Nicolas, R. Wunenburger, S. Manneville and J.-P. Delville (2008). Deformation of acoustically transparent fluid interfaces by the acoustic radiation pressure. *EPL*, 83 34002 .

Jähnisch K., M. Baerns, V. Hessel, W. Ehrfeld, V. Haverkamp, H. Löwe, Ch. Wille and A. Guber (2000). Direct fluorination of toluene using elemental fluorine in gas/liquid microreactors. *Journal of Fluorine Chemistry*, 105, 117–128

Jamialahmadi, M., M.R. Zehtaban, H.M. Steinhagen, A. Sarrafi et J.M. Smith (2001). Study of Bubble Formation under Constant Flow Conditions. *Trans IChemE*, 79 A, 523-532

Jones A.F., Wilson S.D.R. (1978). The film drainage problem in droplet coalescence. *J. of Fluid Mech.*, 87, 263-288.

Jones S.F., G.M. Evans and K.P. Galvin (1999). Bubble nucleation from gas cavities—a review. *Advances in Colloid and Interface Science*, 80, 27–51.

Kagan S.Z., Y.N. Kovalev et A.P. Zakharychev (1973). *Theor. Osn. Chem. Eng. (Moscow)*, 7, 514.

Kemiha M., Olmos E., Fei W., Poncin S. et Li H. Z. (2007), Passage of a gas bubble through a liquid-liquid interface. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 46, 6099-6104.

Kemiha, M. (2006). Etude expérimentale des écoulements polyphasiques : Phénomènes interfaciaux. Ph. D. thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL), Nancy, France.

King, M. J. et Waters, N. D. (1972). The unsteady motion of a sphere in an elastic-viscous liquid. *Journal of Physics D: Appl. Phys.* 5, 141- 150.

Kirk-Othmer (1993). *Encyclopedia of chemical technology*, 4th edition, Volume 8, JohnWiley & Sons, New York

Kobayashi, J., Mori, Y., Okamoto, K., Akiyama, R., Ueno, M., Kitamori, T., Kobayashi, S., (2004). A Microfluidic Device for Conducting Gas-Liquid-Solid Hydrogenation Reactions. *Science*, 304, 1305-1308.

Kok, J.B.W.(1993a). Dynamics of a pair of gas bubbles moving through liquid. Part I: Theory. *Eur. J. Mech*, B12, 515–540.

Kok, J.B.W.(1993b). Dynamics of a pair of gas bubbles moving through liquid. Part II: Experiment. *Eur. J. Mech*, B12, 41–560.

Krevelen van D.W. et Hoftijzer P.J. (1950). Studies of gas bubbles formation. *Chem Eng. Prog.*, 46, 1, 1950.

Kulkarni A.A. et J. B. Joshi (2005). Bubble Formation and Bubble Rise Velocity in Gas-Liquid Systems: A Review. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 44, 5873-5931.

Kumar R. et Kuloor N.R. (1970). The formation of bubbles and drops. Adv. Chem. Eng., Academic Press, N.Y.

Kumaran, V. et Koch, D.L. (1993a). The effect of hydrodynamic interactions on the average properties of a bidisperse suspension of high Reynolds number, low Weber number bubbles. *Phys. Fluids A*, 5, 1123–1134.

Kumaran, V. et Koch, D.L. (1993b). The rate of coalescence in a suspension of high Reynolds number, low Weber number bubbles. *Phys. Fluids A*, 5, 1135–1140.

Lamb, H. (1932). Hydrodynamics Cambridge University Press, Cambridge.

Lambole J. (2008), ascension de bulles, communication personnelle.

Lapuerta C. (2006). Echanges de masse et de chaleur entre deux phases liquides stratifiées dans un écoulement à bulles. Thèse de Mathématiques. Université Aix-Marseille I.

Leal, L. G. et Lee S. H. (1982), Particle motion near a deformable fluid interface. *Advances in Colloid and Interface Science*, 17 , 61-81.

Lee, K.C. (1979). Aerodynamic interaction between two spheres at Reynolds number around 104. *Aeronaut. Q*30, 371–385.

Leichtberg, S. Pfeffer, R. et Weinbaum, R. (1976b). Stokes flow past finite coaxial clusters of spheres in a circular cylinder. *Int. J. Multiphase Flow* 3, 147–169.

Leichtberg, S. Pfeffer, R. et Weinbaum, S. (1976a). A study of unsteady forces at low Reynolds number: a strong interaction theory for the coaxial settling of three or more spheres. *Phil. Trans. Roy. Soc.*, A282, 585–610.

Lerner, L. et Harper, J.F. (1991). Stokes flow past a pair of stagnant-cap bubbles. *J. Fluid Mech*, 232, pp. 167–190.

Li H. Z., Frank, X. et Funfschilling, D. (2001). Towards the understating of bubble interactions and coalescence in non newtonian fluids: a cognitive approach. *Chemical Engineering Science*, 56, 6419-6425.

Li, H.Z. (1999). Bubbles in non-Newtonian fluids: Formation, interactions and coalescence. *Chemical Engineering Science*, 54, 2247–2254.

Li, H.Z. Mouline, Y. Choplin, L. et Midoux, N. (1997). Rheological simulation of in-line bubble interactions. *AIChE J*, 43, 265–267.

Liger-Belair G., M. Vignes-Adler, C. Voisin, B. Robillard and P. Jeandet (2002). Kinetics of gas discharging in a glass of champagne: the role of nucleation sites. *Langmuir*, 18, 1294–1301.

Lighthill M.J. (1956).Drift. *J Fluid Mech*, 1, 31–53.

- Lin, C. Y. et Slattery, J. C. (1982). Thinning of a liquid film as a small drop or bubble approaches a fluid-fluid interface. *AIChE Journal*, 28, 798-792.
- Lindken, R., Westerweel, J., Wieneke, B. (2006). Stereoscopic micro particle image velocimetry. *Experiments in Fluids*, 11, 161-171.
- Liu Z. et Zheng Y. (2006). PIV study of bubble rising behavior. *Powder Technology*, 168, 1, 2006.
- Loubière K. et Hébrard G. (2003). Bubble formation from a flexible hole submerged in an inviscid liquid. *Chemical Engineering Science*, 58, 135–148.
- Lunsmann, W.J., Genieser, L., Brown, R.A. et Armstrong, R.C. (1993). Finite element analysis of steady viscoelastic flow around a sphere: Calculations with constant viscosity models. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 48, 63-99.
- M. Prakash et N. Gershenfeld (2007). Microfluidic Bubble Logic. *Science*, 315, 832-835.
- Maalouf, A. et Sigli, D. (1984). Effects of body shape and viscoelasticity on the slow flow around an obstacle, *Rheologica Acta*, 23, 497-507
- Manga, M. et Stone H. A. (1994). Interactions between bubbles in magmas and lavas: effects of bubble deformation. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 63 , 267-279.
- Manga, M. et Stone, H.A. (1993). Buoyancy-driven interactions between two deformable viscous drops. *Journal of Fluid Mechanics*, 256, 647-683.
- Manga, M. et Stone, H.A. (1995). Low Reynolds number motion of bubbles, drops and rigid spheres through fluid-fluid interfaces. *Journal of Fluid Mechanics*, 287, 279-298.
- Marks, C.H. (1973). Measurement of the terminal velocity of bubbles rising in a chain. *J. Fluid Eng*, 2, 17–22.
- Marmur A. (2004). Adhesion and Wetting in an Aqueous Environment: Theoretical Assessment of Sensitivity to the Solid Surface Energy. *Langmuir*, 20, 1317-1320.
- Martin, W.W. et Chetler, G.M. (1982). The local measurements of the size and velocity of bubbles rising in liquids. *Appl. Sci. Res*, 38, 239–246.
- Maru H.C., Wasan D.T., Kintner R.C. (1971). Behavior of a rigid sphere at a liquid-liquid interface. *Chemical Engineering Science*, 26, 1615-1628.
- McKinley, G.H., R.C. Armstrong and R.A. Brown (1993). The wake instability in viscoelastic flow past confined circular cylinders, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series A* 344 , pp. 265–304.
- Mendelson, H.D., (1967). The prediction of bubble terminal velocities from wave theory. *American Institute of Chemical Engineers Journal*, 13, 250–253.
- Meneveau, C. et Katz, J. (1996). Wake-induced relative motion of bubbles rising in line. *Int. J. Multiphase Flow*, 22, 39–258.

- Midoux N. (2008), Formation de bulles et de gouttes, communication personnelle.
- Mohamed-Kassim, Z. et Longmir E.K. (2004), Drop coalescence through a liquid/liquid interface. *Physics of Fluids*, 16 , 2170-2181.
- Morrison, F.A. (1973). Breakup of a bubble chain. *Chem. Eng. Sci*, 28, 1115–1116.
- Narasinga Rao E.V., R. Kumar et N.R. Kuloor (1966). Drop Formation Studies in Liquid-Liquid Systems. *Chem. Eng. Sci.*, 21, 867-880.
- Narayanan, S., Goossens, L.H.J. et Kossen, N.W.F. (1974). Coalescence of two bubbles rising in line at low reynolds numbers. *Chemical Engineering Science*, 29, 2071-2082.
- Nisisako, T., Torii, T., Higuchi, T., (2002). Droplet formation in a microchannel network. *Lab on a Chip*, 2, 24-26.
- Null H.R. et H.F. Johnson (1958). Drop Formation in Liquid-Liquid Systems from Single Nozzles. *AIChE J.*, 4, 273-281.
- Oguz H.N. et Prosperetti A. (1993). Dynamics of bubble growth and detachment from a needle. *J. Fluid Mech.*, 257, 111-145.
- Omran, N.M. et Foster, P.J. (1977). The terminal velocity of a chain of drops or bubbles in a liquid. *Trans. Instn. Chem. Eng.*, 55, 171–177.
- Patel R.D. (1980). Bubble growth in a viscous Newtonian liquid. *Chemical Engineering Science*, 35, 2352–2356.
- Peng, X F, Wang, B X. Christopher, D M. (2000). Some Fundamentals of Boiling in Microgravity. Heat Transfer Science and Technology 2000 - Fifth International Symposium on Heat Transfer. Beijing: High Education Press, 60–76.
- Pitois O., Moucheront P., Weill C., (1999). Franchissement d'interface et enrobage d'une sphère. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IIB - Mechanics-Physics-Astronomy*, 327, 605-611.
- Poutanen, A.A. et Johnson, A.I. (1959). Studies of bubble formation and rise. *Can. J. Chem. Eng* 37, 93–101.
- Prosperetti, A. et Yuan, H. (1994). On the in-line motion of two spherical bubbles in a viscous fluid. *J. Fluid Mech* ,278, 325–349.
- Pruppacher, H.R. et Klett, J.D. (1978). *Microphysics of Clouds and Precipitation* Reidel, Dordrecht.
- Qu, W., Mudawar, I. (2002). Experimental and numerical study of pressure drop and heat transfer in a single-phase micro-channel heat sink. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 45, 2549-2565.

- Rajagopalan, D., Arigo, M.T. et McKinley, G.H. (1996). The sedimentation of a sphere through an elastic fluid: Part 2. Transient motion. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 65, 17-46.
- Rak, J., K.Al-Nedawi, B. Meehan, J. Micallef, V. Lhotak, L. May, A.Guha (2008). Intercellular transfer of the oncogenic receptor EGFRvIII by microvesicles derived from tumour cells. *Nature Cell Biology*, 10, 619-624.
- Rallison, J. M. (1984). The deformation of small viscous drops and bubbles in shear flows. *Ann. Rev. Fluid Mech*, 16, 45-66.
- Reiter G. and K. Schwerdtfeger (1992a). Characteristics of entrainment at liquid/liquid interfaces due to rising bubbles. *ISIJ International*, 32(1):57-65.
- Reiter G. and K. Schwerdtfeger (1992b). Observation of physical phenomena occurring during passage of bubbles through liquid/liquid interfaces. *ISIJ International*, 32(1):50-56.
- Renouf S., (2001) Etude d'un procédé d'émulsification et suivi rhéologique in situ dans un rhéo-émulseur et formation de gouttes primaires dans un champ d'écoulement. Ph. D. thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL), Nancy, France.
- Rice D.K., Yen, B.K.H., Gunther, A., Schmidt, M.A., Jensen, K.F. (2005). A microfabricated gas-liquid segmented flow reactor for high-temperature synthesis: The case of CdSe quantum dots. *Angewette Chemie International*, 44, 5447-5451.
- Rushton, E. et Davies, G.A. (1978). The slow motion of two spherical particles along their line of centres. *Int. J. Multiphase Flow*, 4, 357-381.
- Rust, A.C. et Manga, M. (2002). Bubble Shapes and Orientations in Low Re Simple Shear Flow. *J. Colloid Interface Science*, 249, 476-480.
- Satrape, J.V. et Crochet, M.J. (1994). Numerical simulation of the motion of a sphere in a Boger fluid. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 55, 91-111.
- Saville, D. A. & Thompson, D. W. (1969). Secondary Flows Associated with Weissenberg Effect. *Nature*, 223, 391.
- Scarano F., Riethmuller M.L (1997) Iterative multigrid approach in PIV image processing with discrete window offset. *Experiments in Fluids*, 26, 513-523.
- Scheele G. et B. Meister (1968). Drop formation at low velocities in liquid-liquid systems, Part I: Prediction of drop volume. *AIChE J.*, 14, 9-15.
- Schiller, L. & Neumann, A. (1933). Über die grundlegenden Berechnungen bei der Schwerkraftaufbereitung. *Ver. Deutt. Ing.*, 77, 318.
- Shafi M.A. et R.W. Flumerfelt (1997). Initial bubble growth in polymer foam processes. *Chemical Engineering Science*, 52, 627-633.

- Shopov, P.J., Minev P.D, (1991) Unsteady interaction of two deformable drops. *Mechanics Research Communications*, 18 , 311-317.
- Sibillo V, Pasquariello G, Simeone M, Cristini V, Guido S (2006). Drop deformation in microconfined shear flow. *Phys Rev Lett*. 97:054502.
- Sigli, D. et Coutanceau, M. (1977). Effect of finite boundaries on the slow laminar isothermal flow of a viscoelastic fluid around a spherical obstacle. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 2,1-21.
- Sirignano, W.A. (1993). Fluid dynamics of sprays. *J. Fluids Eng*, 115, 345–378.
- Smith D. (2004). Notes on the Rayleigh-Taylor Instability. University of Texas at Austin, USA, Research Report.
- Smith, K.A., B.A. Cicciarelli, T.A. Hatton (2007). Dynamic Surface Tension Behavior in a Photoresponsive Surfactant System. *Langmuir*, 23, 4753-4764.
- Smith, K.A., T. Shang and T.A. Hatton (2003). Photoresponsive Surfactants Exhibiting Unusually Large, Reversible Surface Tension Changes under Varying Illumination Conditions. *Langmuir*, 19, 10764-10773.
- Smolianski, A. (2001). Numerical Modeling of Two-Fluid Interfacial Flows. PhD thesis, University of Jyväskylä, Finland.
- Snabre P. et F. Magnifotcham (1998). I. Formation and rise of a bubble stream in a viscous liquid. *Eur. Phys. J. B.*, 4, 369-377
- Song, H., Lyon, A. D., Ismagilov, R. F. (2003). Formation of droplets and mixing in multiphase microfluidics at low values of the Reynolds and the capillary number. *Langmuir*, 19, 9127-9133.
- Starrs, L. et Bartlett, P. (2003). Colloidal dynamics in polymer solutions: Optical two-point microrheology measurements. *Faraday Discussions*, 123, 323-334.
- Stone H.A. (1994) Dynamics of drop deformation and breakup in viscous fluids. *Ann Rev Fluid Mech*, 26:65
- Street J.R., A.L. Fricke and L.P. Reiss (1971). Dynamics of phase growth in viscous non-Newtonian liquids. *Industrial Engineering Chemical Fundamentals*, 10, 54–64.
- Stuart, J. T. (1958). On the nonlinear mechanics of hydrodynamic stability. *J. Fluid Mech*, 4, 1-21.
- Sundararaj U., Y. Dori et C.W. Macosko (1994), SPE ANTEC Tech Papers 52, 2448–2451.
- Tan R.B.H., Chen W.B et Tan K.H. (2000). A non-spherical model for bubble formation with liquid cross-flow. *Chemical Engineering Science*, 55, 6259–6267.

- Tate, T. (1864). On the magnitude of a drop of liquid formed under different circumstances. *The London, Edinburgh, and Dublin philosophical magazine and journal of science*, Series 4, 27, 176–180.
- Tatum J.A., Finniss M.V., Lawsons N.J., Harrison G.M., (2005), 3D particle image velocimetry of the flow field around a sphere sedimenting near a wall Part 1. Effects of Weissenberg number. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 141, 99-115.
- Taylor, G.I. (1923). Stability of a viscous liquid contained between two rotating cylinders, *Phil.Roy.Soc.London*, Série A 223.
- Temkin, S. et Ecker, G.Z. (1989). Droplet pair interactions in a shock-wave flow field. *J. Fluid Mech*, 202, 467–497.
- Terasaka, K. et Tsuge, H. (1991). Mass transfer in highly viscous liquids in a bubble column with constant-flow nozzles. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 24, 4, 424-429.
- Thorsen, T., Roberts, W. R., Arnold, F. H., Quake, S. R. (2001). Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device. *Physical Review Letters*, 86, 4163-4166.
- Thulasidas, T.C., Abraham, M.A., Cerro, R.L. (1997). Flow patterns in liquid slugs during bubble train flow in capillaries. *Chemical Engineering Science*, 52, 2947-2962.
- Tsuge, H. (1986). Hydrodynamics of Bubble Formation from Submerged Orifices. *Encyclopedia of Fluid Mechanics*, Vol. 3, Gulf Publishing, Houston, p. 191.
- Tsuji, Y. Morikawa, Y. et Terashima, K. (1982). Fluid-dynamic interaction between two spheres. *Int. J. Multiphase Flow*, 8, 71–82.
- Umbanhowar P., Prasad V., Weitz D. (2000). Monodisperse emulsion generation via drop break off in a coflowing stream. *Langmuir*, 16, 347-351.
- Utada A.S., E. Lorenceau, D.R. Link, P.D. Kaplan, H.A. Stone, D.A. Weitz (2005). Monodisperse double emulsions generated from a microcapillary device. *Science*, 308, 537-541.
- van der Graaf, S., Nisisako, T., Schroe, C.G.P.H., van der Sman, R.G.M., Boom, R. M., (2006). Lattice Boltzmann simulations of droplet formation in a T-shaped microchannel. *Langmuir*, 22, 4144-4152.
- van Steijn, V., Kreutzer, M.T., Kleijn C.R. (2007). μ -PIV study of the formation of segmented flow in microfluidic T-junctions. *Chemical Engineering Science*, 62, 7505-7514.
- van Wijngaarden, L. (1993). The mean rise velocity of pairwise-interacting bubbles in liquid. *J. Fluid Mech*, 251, 55–78.
- Völtz, C., Pesch, W. et Rehberg, I. (2001). Rayleigh-Taylor instability in a sedimenting suspension. *Physical Review E*, 65, 011404.

- Waelchli, S., von Rohr, R. (2006). Two-phase flow characteristics in gas-liquid micro reactors. *International Journal of Multiphase Flow*, 32, 791-806.
- Wang, H. et Skalak, R. (1969). Viscous flow in a cylindrical tube containing a line of spherical particles. *J. Fluid Mech*, 38, 75–96.
- Weber, M. E. et Bhaga, D. (1982). Fluid drift caused by a rising bubble. *Chemical Engineering Science*, 37, 1, 113-116.
- Weissenberg K. (1947). A continuum theory of rheological phenomena. *Nature*, 159, 310.
- Wienecke M., Luke A., Gorenflo D. et Span R. (2005). Flow boiling of highly viscous fluids in a vertical annular tube. *Transactions of IChemE*, 83A 1044–1051.
- Wraith A.E. (1971). Two-stage bubble growth at a submerged plate orifice. *Chem. Eng. Sci.*, 26, 1659.
- Wu J. (2007), Nucléation de bulle sur des grains de boue, communication personnelle.
- Wu, J., Lu, Z.Y., Hu, J.C., Feng, L., Huang, J.D., Gu, X.S. (2006). Disruption of granules by hydrodynamic force in internal circulation anaerobic reactors. *Water Science and Technology*, 54, 9-16.
- Xiong, R., Bai, M., Chung, J.N. (2007). Formation of bubbles in a simple co-flowing micro-channel. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 17, 1002-1011.
- Xu D., R. Pop-Iliev, C.B. Park et R.G. Fenton (2005). Fundamental study of CBA-blown bubble growth and collapse under atmospheric pressure. *Journal of Cellular Plastics*, 41, 519–538.
- Xu, J.H., Li, S.W., Wang, Y.J., Luo, G.S. (2006). Controllable gas-liquid phase flow patterns and monodisperse microbubbles in a microfluidic T-junction device. *Applied Physics Letters*, 88, 133506.
- Yang C.T, Smith T.G. et Bigio D.I (1997). Polymer trace devolatilisation, *A.I.Ch.E. Journal*, 43, pp. 1861–1883.
- Yeong, K.K., Gavrilidis, A., Zapf, R. and Hessel, V., (2003). Catalyst preparation and deactivation issues for nitrobenzene hydrogenation in a microstructured falling film reactor. *Catalysis Today*, 81, pp. 641–651.
- Zhang, H., Tumarkin, E., Peerani, R., Nie, Z., Sullan, R. M. A., Walker, G.C., Kumacheva, E. (2006). Microfluidic production of biopolymer microcapsules with controlled morphology. *Journal of the American Chemical Society*, 128, 12205-12210.
- Zhen, R. et Phan-Thien, N. (1992). A boundary element simulation of the unsteady motion of a sphere in a cylindrical tube containing a viscoelastic fluid. *Rheologica Acta*, 31, 323-332.
- Zhu, C. Liang, S.C. et Fan, L.S. (1994). Particle wake effects on the drag force of an interactive particle. *Int. J. Multiphase Flow*, 20, 117–129.

Annexes

Annexes du chapitre II

A1- Formation de bulles sous un champ de cisaillement

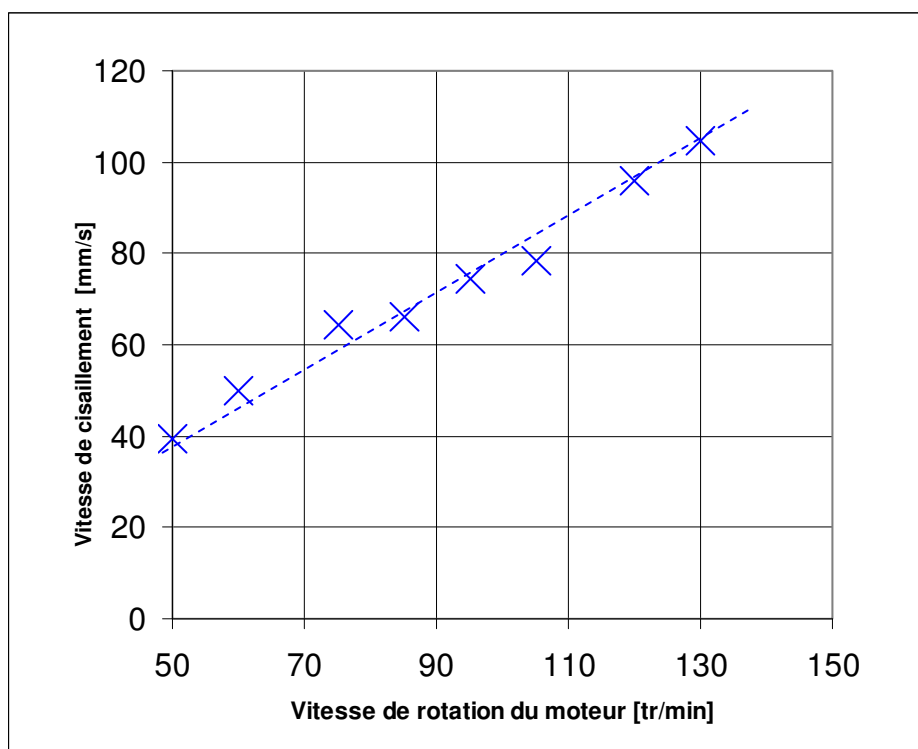


Figure A1-01. Evolution de la vitesse de l'écoulement orthogonale dans l'eau mesurée par PIV en fonction de la vitesse de rotation du moteur.

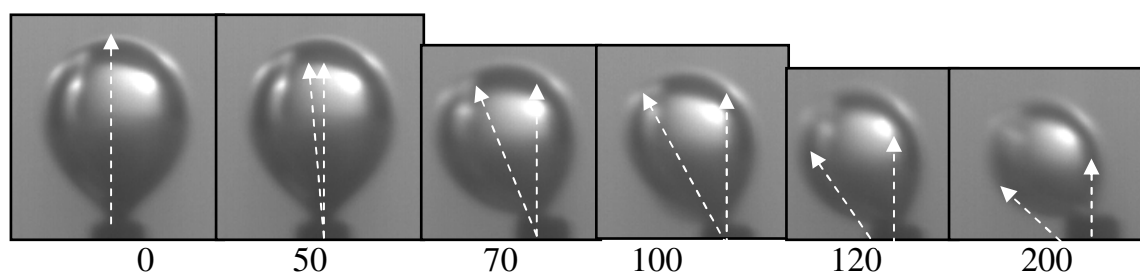


Figure A1-02. Formation d'une bulle d'air dans l'eau sous un champs de cisaillement – La vitesse est exprimée en tr/min. Orifice de diamètre interne 0,5 mm et diamètre externe 0,9 mm. $Q_g = 0,1$ mg/s.

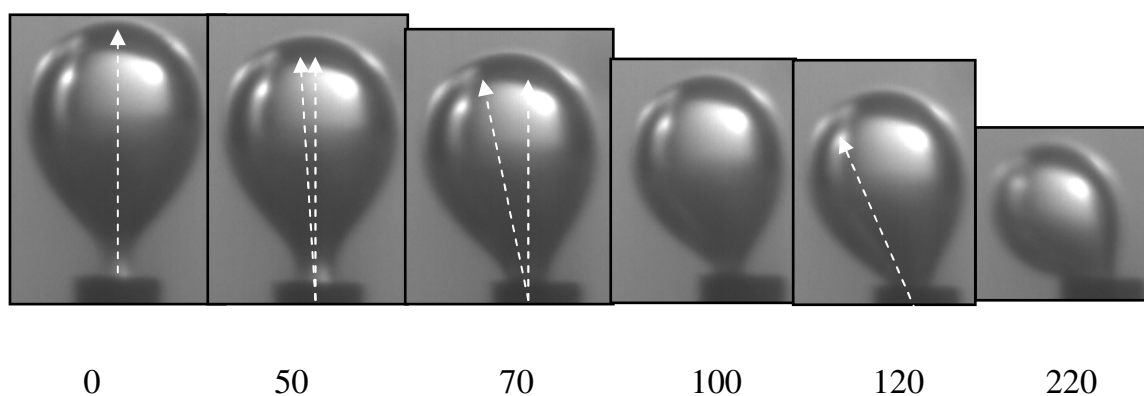


Figure A1-03. Formation d'une bulle d'air dans l'eau sous un champs de cisaillement – La vitesse est exprimée en tr/min. Orifice de diamètre interne 1 mm et diamètre externe 1,4 mm. $Q_g = 0,1$ mg/s.

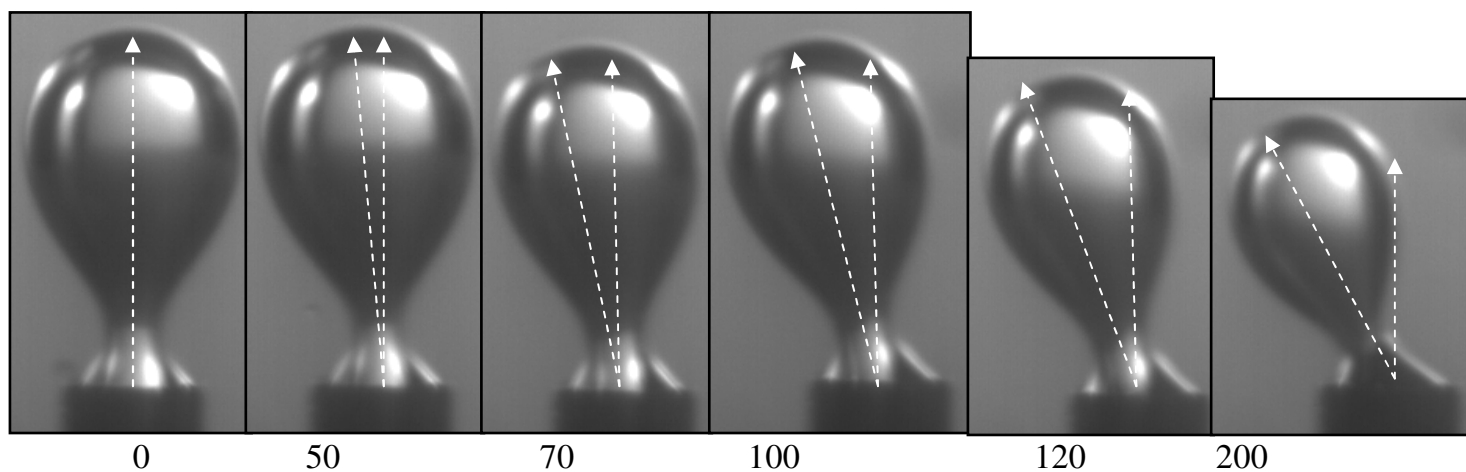


Figure A1-04. Formation d'une bulle d'air dans l'eau sous un champs de cisaillement – La vitesse est exprimée en tr/min. Orifice de diamètre interne 2 mm et diamètre externe 2,4 mm. $Q_g = 0,1$ mg/s.

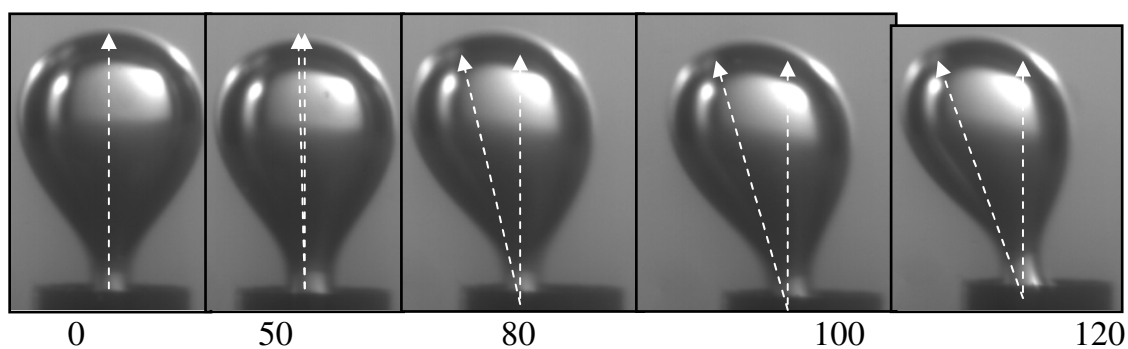


Figure A1-05. Formation d'une bulle d'air dans l'eau sous un champs de cisaillement – La

vitesse est exprimée en tr/min. Orifice de diamètre interne 4 mm et diamètre externe 4,4 mm.

$Q_g = 0,1 \text{ mg/s}$.

Annexes du chapitre III

A2- Formation de gouttes sous un champ de cisaillement

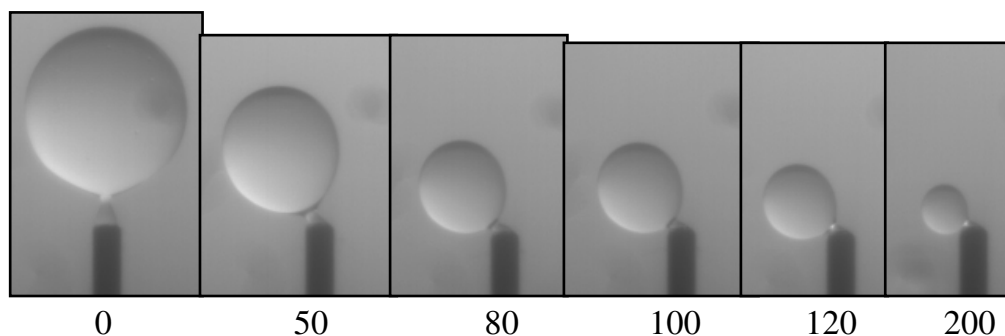


Figure A2-01. Formation d'une goutte de silicone 50 dans l'eau sous un champ de cisaillement – La vitesse est exprimée en tr/min. Orifice de diamètre interne 0,5 mm et diamètre externe 0,9 mm. $Q_g = 0,1$ g/s.

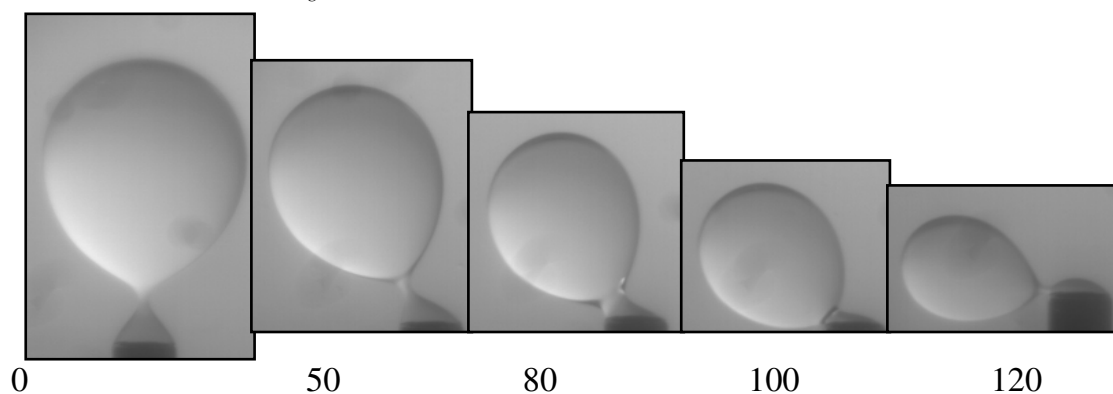


Figure A2-02. Formation d'une goutte de silicone 50 dans l'eau sous un champ de cisaillement – La vitesse est exprimée en tr/min. Orifice de diamètre interne 2 mm et diamètre externe 0,9 mm. $Q_g = 0,1$ g/s.

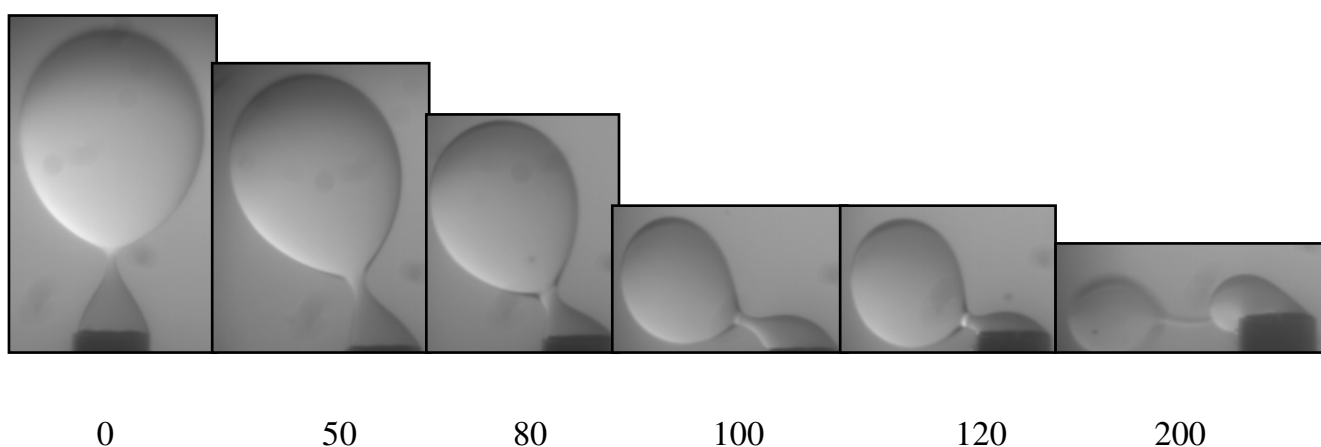


Figure A2-03. Formation d'une goutte de silicone 50 dans l'eau sous un champ de cisaillement – La vitesse est exprimée en tr/min. Orifice de diamètre interne 4 mm et diamètre externe 0,9 mm. $Q_g = 0,1$ g/s.

Annexes du chapitre III

A3- Déformation de gouttes

La goutte à cisailier est placée au moyen d'une seringue à travers un septum dans l'entrefer des deux plaques parallèles qui est immergé par une phase organique (cf. figure C1.06), le champ de cisaillement est imposé par la rotation du disque supérieur. Pour évaluer la vitesse de cisaillement, on entreprend donc une étude par PIV et on mesure, comme le montre la figure ci-dessous, le champ de vecteurs vitesses au voisinage de l'axe de rotation pour différentes vitesses de rotation du moteur.

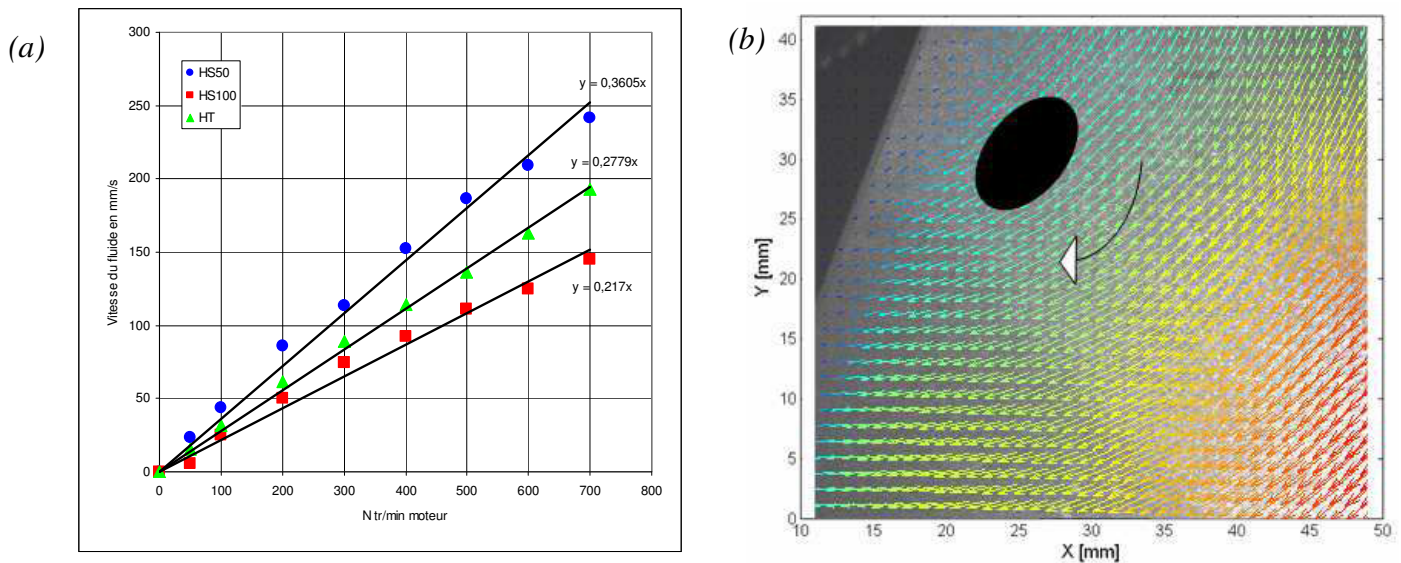


Figure A3-1. (a) Mesure PIV de la vitesse de la phase continue dans la cellule de cisaillement de Couette en fonction de la vitesse de rotation du moteur pour les trois phases continues différentes (HS50, HT et HS100). (b) Champs de vecteur vitesses obtenu par PIV dans la cellule Couette contenant de l'huile de silicone HS100 .N=50 tr/min.

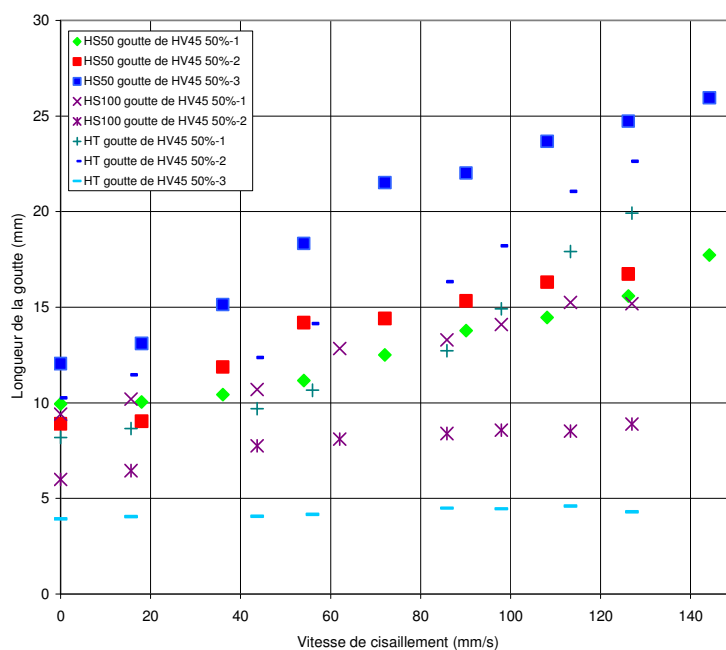


Figure A3-2. Evolution de la longueur d'une goutte en fonction de la vitesse de cisaillement pour les différents systèmes étudiés avec le HV45 50%.

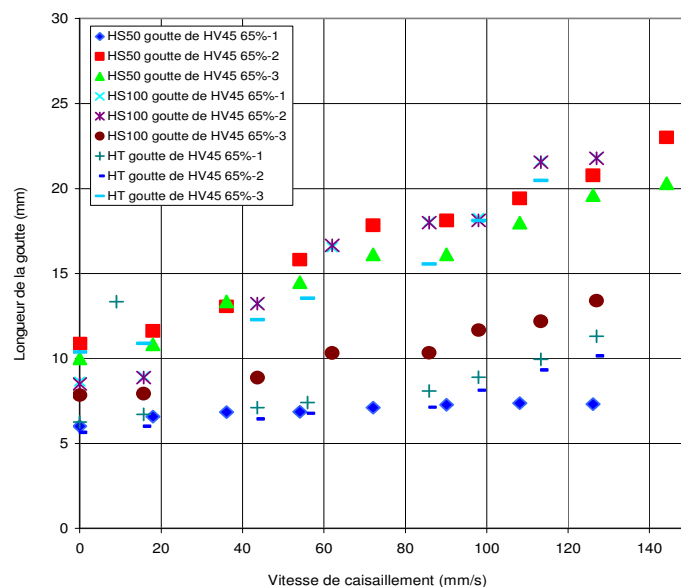


Figure A3-3. Evolution de la longueur d'une goutte de HV45 65% en fonction de la vitesse de cisaillement pour les différents systèmes étudiés.

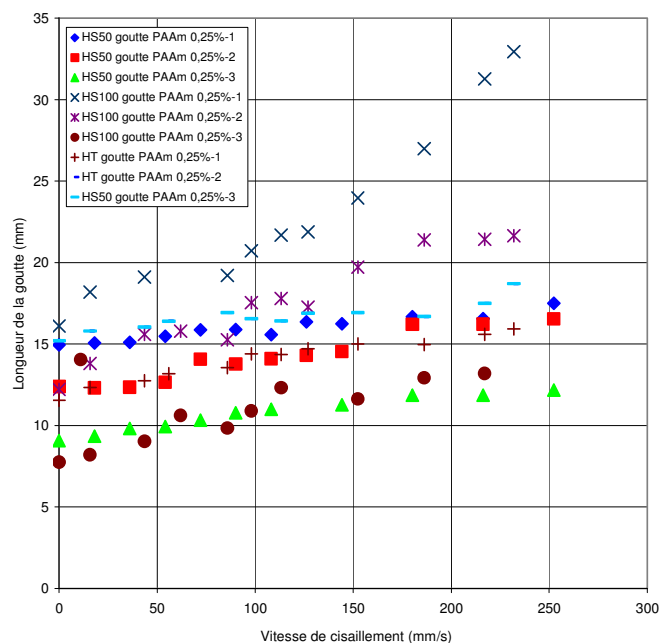


Figure A3-4. Evolution de la longueur d'une goutte de PAAm 0,25% en fonction de la vitesse de cisaillement pour les différents systèmes étudiés.

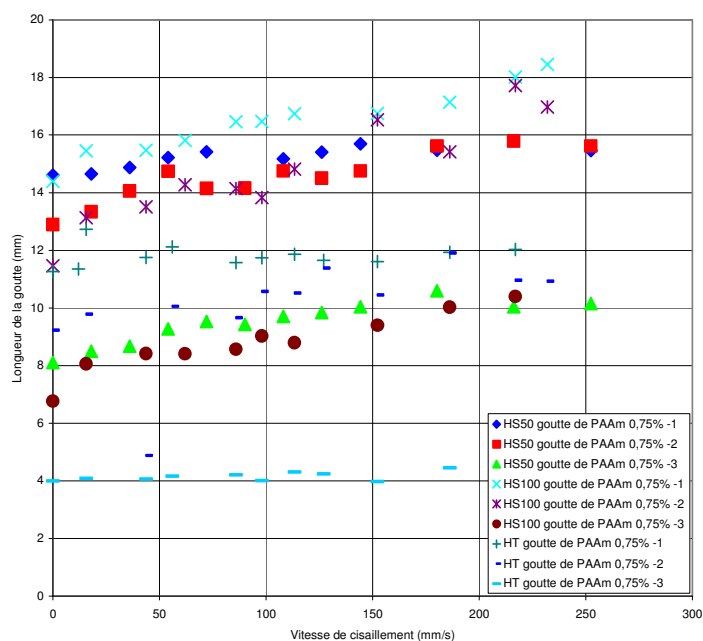


Figure A3-4. Evolution de la longueur d'une goutte de PAAm 0,75% en fonction de la vitesse de cisaillement pour les différents systèmes étudiés.

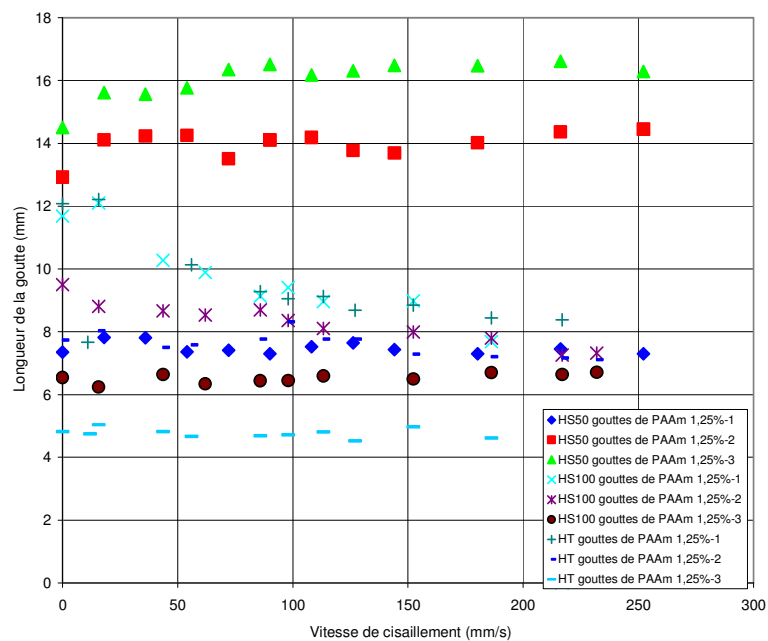


Figure A3-5. Evolution de la longueur d'une goutte de PAAm 1,25% en fonction de la vitesse de cisaillement pour les différents systèmes étudiés.

*Annexes du chapitre III**A4- Traversée d'interfaces*

L'ascension de la bulle a été filmée avant, pendant et après le passage à l'interface liquide–liquide. Les observations de ces films nous ont permis de décrire la traversée de la bulle à l'interface.

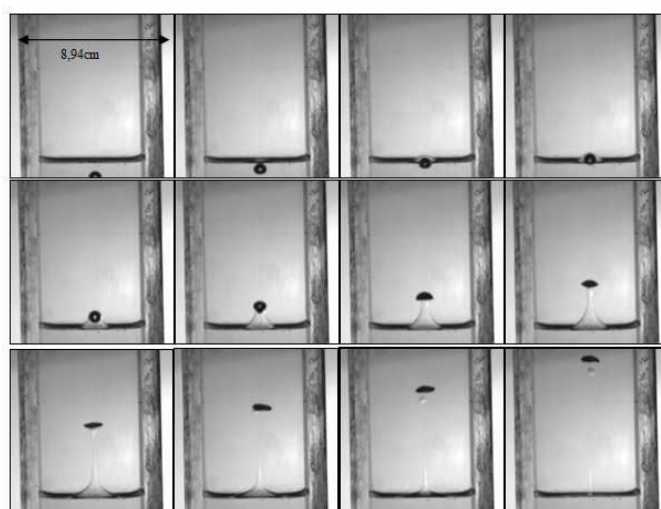


Figure A4.1. Franchissement de l'interface Emkarox 50% massique / huile de silicone par une bulle de 6 mm de diamètre équivalent en ascension. Images obtenues par caméra rapide numérique

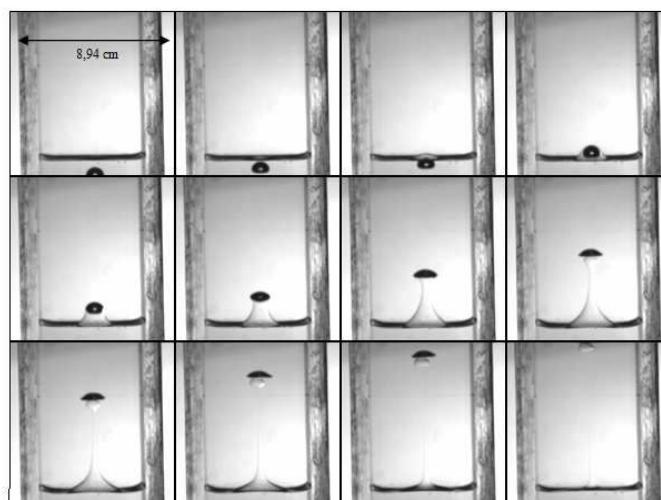
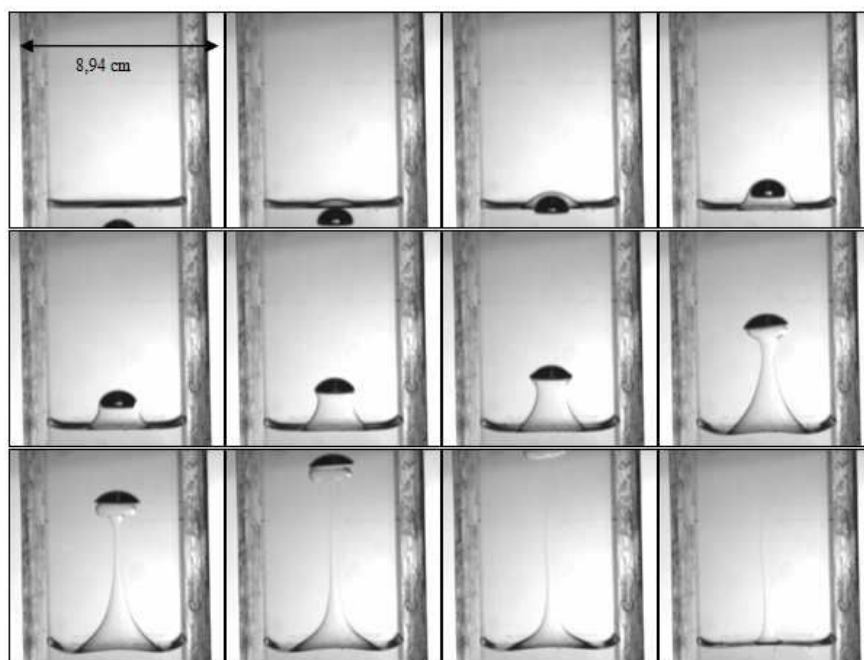


Figure A4.2. Franchissement de l'interface Emkarox 50% massique / huile de silicone 100 par une bulle de 7,5 mm de diamètre équivalent en ascension. Images obtenues par caméra



rapide numérique

Figure A4.3. Franchissement de l'interface Emkarox 50% massique / huile de silicone 100 par une bulle de 10,9 mm de diamètre équivalent en ascension. Images obtenues par caméra rapide numérique

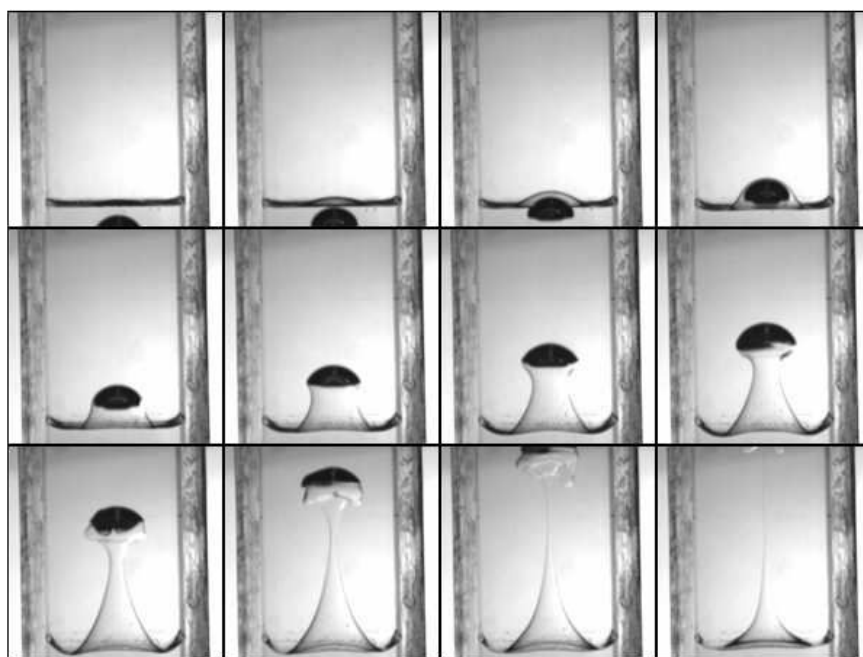


Figure A4.4. Franchissement de l'interface Emkarox 50% massique / huile de silicone 50 par une bulle de 14,4 mm de diamètre équivalent en ascension. Images obtenues par caméra rapide numérique



Figure A4.5. Franchissement de l'interface Emkarox 50% massique / huile de silicone 50 par une bulle de 6,4 mm de diamètre équivalent en ascension. Images obtenues par caméra rapide numérique

4 mm

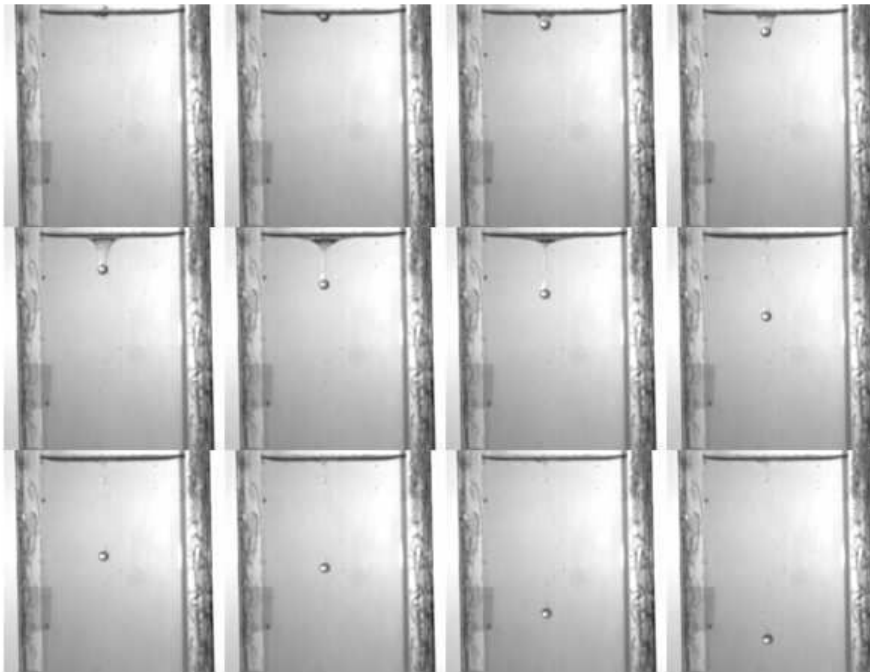


Figure A4.6. Franchissement de l'interface Emkarox 50% massique / huile de silicone 100 par une sphère 4 mm de diamètre en sédimentation. Images obtenues par caméra rapide numérique



Figure A4.7. Franchissement de l'interface Emkarox 50% massique / huile de silicone 100 par une sphère 6 mm de diamètre en sédimentation. Images obtenues par caméra rapide numérique

La mesure des champs de vitesses détaillés lors du passage d'une bulle est illustrée sur les figures A4.8, A4.9 et A4.10.

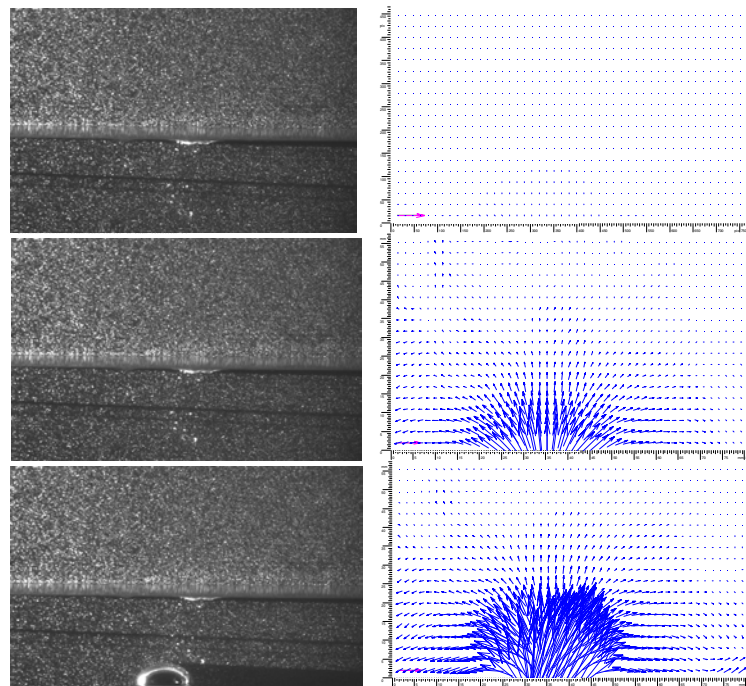
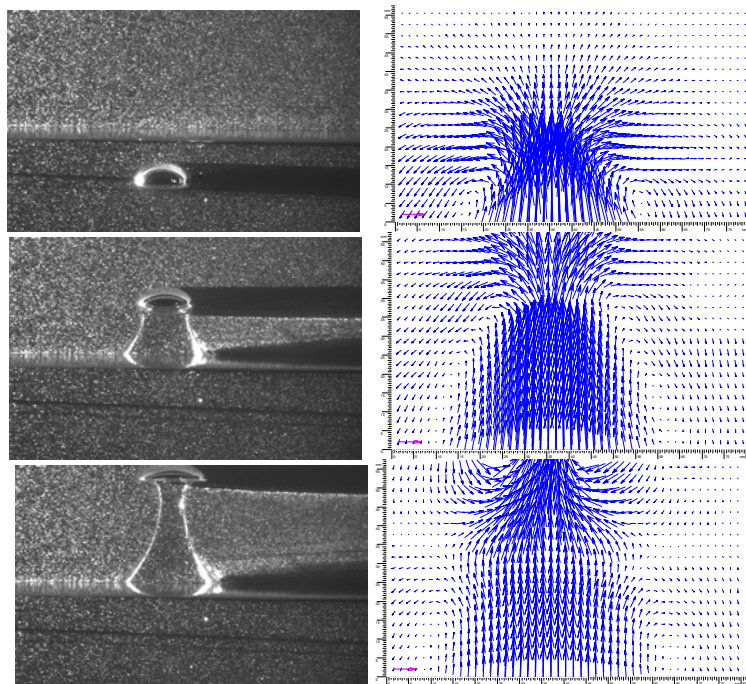


Figure A4.8. Mesure de champs de vitesse lors du passage d'une bulle de 9 mm de diamètre équivalent sur une interface composée de HV45 65% massique/huile de silicone 100. Le traceur utilisé est des particules argentées de 15 μm de diamètre moyen. Le temps entre deux images consécutives est de 66 ms.



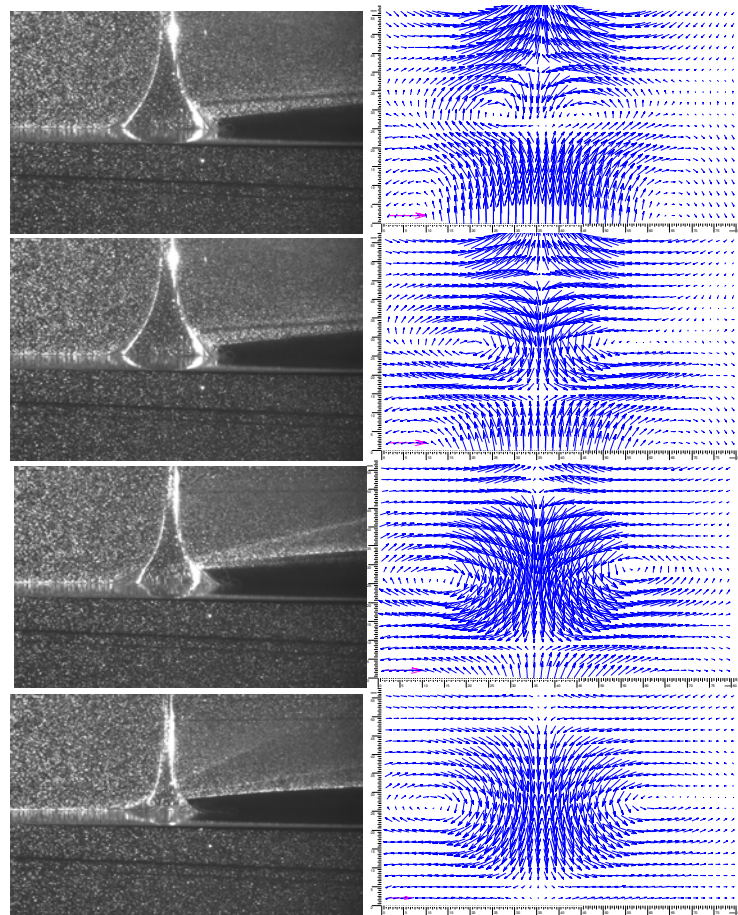
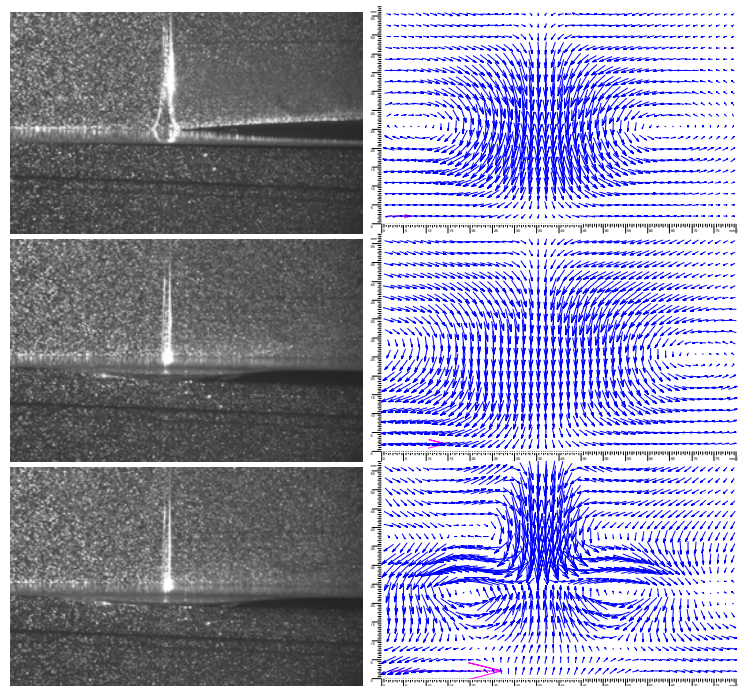


Figure A4.9. Mesure de champs de vitesse lors du passage d'une bulle de 9 mm de diamètre équivalent sur une interface composée de HV45 65% massique/huile de silicone 100. Le traceur utilisé est des particules argentées de 15 μm de diamètre moyen. Le temps entre deux images consécutives est de 66 ms.



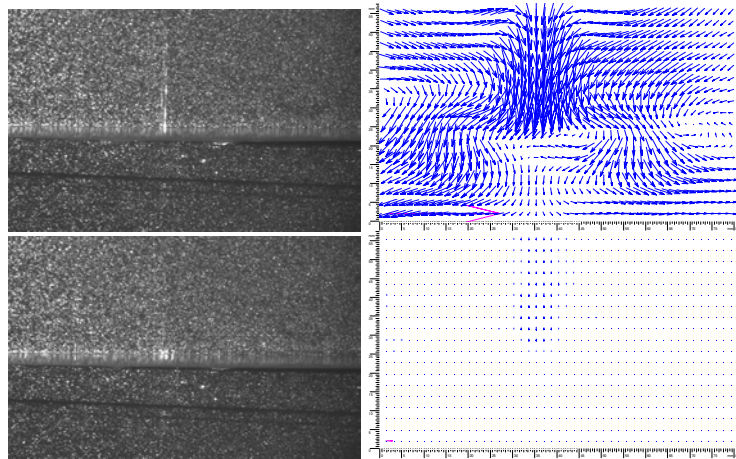


Figure A4.10. *Mesure de champs de vitesse lors du passage d'une bulle de 9 mm de diamètre équivalent sur une interface composée de HV45 65% massique/huile de silicone 100. Le traceur utilisé est des particules argentées de 15 μm de diamètre moyen. Le temps entre deux images consécutives est de 66 ms.*

Annexes du chapitre III

A5- Etude de l'effet Weissenberg

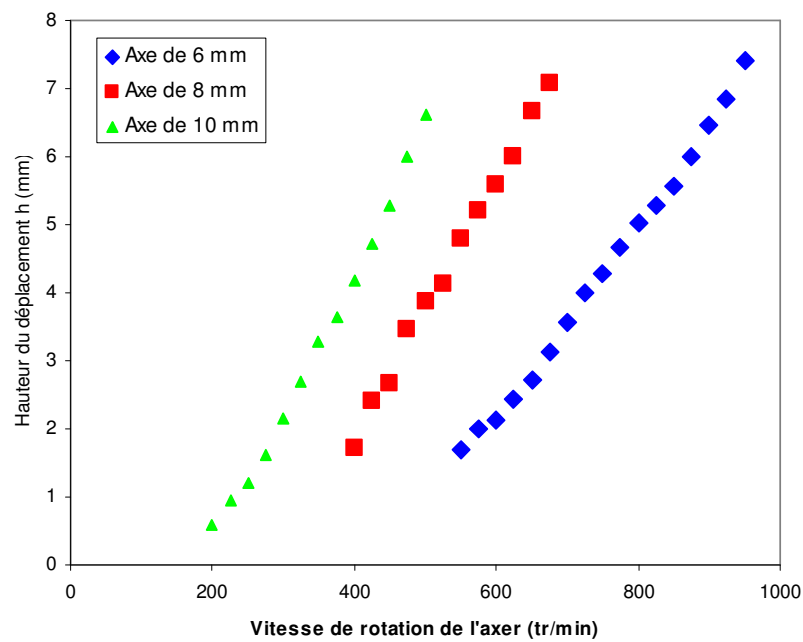


Figure A5.1. Influence de la taille de l'axe de rotation sur la hauteur du déplacement sur une interface composée de HV45 et d'huile de silicone.

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur Laurent LIMAT, Directeur de Recherche, ESPCI, Université Paris VII, Paris

Monsieur Daniel SCHWEICH, Directeur de Recherche, LGPC, CPE, Villeurbanne

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur DIETRICH Nicolas

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

"Etude locale et expérimentale des phénomènes interfaciaux"

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 54501
VANDŒUVRE CEDEX

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « **Génie des Procédés et des Produits** »

Fait à Vandoeuvre, le 29 octobre 2008

Le Président de l'IN.P.L.,

F. LAURENT

