



THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PSL

Préparée à l'ESPCI - Ecole supérieure de physique et de chimie
industrielles de la ville de Paris

**Dynamique de goutte en microfluidique dans un
système confiné**

Soutenue par

Alexandre MANSUR

Le 24 octobre 2019

Ecole doctorale n° 391

**Sciences mécanique,
acoustique, électronique et
robotique**

Spécialité

Mécanique

Composition du jury :

José Maria, FULLANA Professeur des universités, SU	<i>Président du jury</i>
Emmanuelle, RIO Maître de conférence, UPS-11	<i>Rapporteur</i>
Hugues, BODIGUEL Professeur des universités, Grenoble INP	<i>Rapporteur</i>
Isabelle, CANTAT Professeur des universités, IPR	<i>Examineur</i>
Nicolas, BREMOND Maître de conférences, ESPCI Paris	<i>Examineur</i>
Marie-Caroline, JULLIEN Directeur de recherche CNRS, IPR	<i>Directeur de thèse</i>

“Everybody has a plan, until they get punch in the face”
- Mike TYSON 1997

Table des matières

Table des matières	1
Introduction	5
1 État de l'art	7
1 Rappels généraux	7
1.1 Mécanique des fluides	8
1.2 Microfluidique	9
1.3 La tension superficielle	10
1.4 Les tensioactifs	10
1.5 Effet Marangoni	16
1.6 Systèmes confinés	17
2 Contexte historique du travail de thèse	18
3 Objectif de la thèse	21
2 Partie théorique	23
1 Rappels théoriques - LLD, Bretherton, Mazouchi <i>et al.</i>	24
1.1 Approche Landau-Levich-Derjaguin (LLD)	24
1.2 Bretherton	36
1.3 Mazouchi <i>et al.</i>	38
2 Régime mixte	42
2.1 Conservation du volume	44
2.2 Détermination de $\frac{h_\infty}{R}$	45
2.3 Expression de $\frac{U_d}{U_f}$	52
2.4 Expression de $U_d = f_1(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x})$ et $h_\infty = f_2(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x})$	57
3 Conclusion	58
3.1 Bretherton	58
3.2 Thermocapillaire	58
3.3 Régime mixte	59
3 Partie expérimentale	61

1	Dispositif expérimental	62
1.1	Canal d'étude	62
1.2	Tensioactif utilisé	72
1.3	Fluides utilisés	72
1.4	Génération de gouttes	77
1.5	Connectiques de raccordement	79
1.6	Contrôle en pression des fluides	80
1.7	Gradient thermique	81
2	Traitement des données	85
2.1	Mesure de débit de la phase externe	85
2.2	Mesure de vitesse de goutte	87
3	Résultats	89
4	Conclusion	94
4	Conclusion	97
5	Annexes	101
1	Matériaux utilisés	102
1.1	PDMS	102
1.2	NOA	103
2	Procédé de softlithographie	103
2.1	Calibration de la hauteur de résine par spin coating	103
2.2	Réticulation par insolation U.V.	104
3	Fabrication d'un moule en PDMS	104
4	Puce microfluidique en PDMS	104
5	Puce microfluidique en NOA	105
6	Adimensionnalisation	106
6.1	Adimensionnalisation de la vitesse	106
6.2	Adimensionnalisation de l'équation différentielle	107
7	La théorie de Landau-Levich-Derjaguin (LLD) - 1942	108
7.1	Conditions aux limites	108
7.2	Profil du ménisque statique	110
7.3	Profil du ménisque dynamique	113
7.4	Loi de Landau-Levich-Derjaguin	118
8	Détail de l'intégration du champ de vitesse dans le film de lubrification	120
9	Résolution numérique de l'équation de lubrification	121
9.1	Détermination de la fonction $\epsilon(x)$	121
10	Méthode des incertitudes aléatoires	123
10.1	Présentation d'un résultat expérimental	123

10.2	Analyse statistique d'une série de mesures	123
10.3	Propagation des incertitudes	123
Bibliographie		125

LA SCIENCE est un outil permettant de modéliser et de représenter des faits observables qui ne rendent compte que partiellement de ce que nous appelons la réalité. Avant de s'attaquer à la science, il me semble important de définir ce qu'est un modèle et en quoi consiste une modélisation à travers trois citations.

“L’homme a naturellement la passion de connaître ; et la preuve que ce penchant existe en nous tous, c’est le plaisir que nous prenons aux perceptions des sens.”

— ARISTOTE, *Métaphysique*

Modèle

“ Dés que l’on dépasse la description pour aborder l’analyse des processus, celle-ci implique une référence à un modèle, dont la définition doit être d’autant plus précise que les raisonnements qu’on lui applique sont plus élaborés. Le modèle est une représentation schématique d’un objet ou d’un processus qui permet de substituer un système plus simple au système naturel.”

— J. GOGUEL, *Encyclopédia Universalis*

Modélisation

“La modélisation consiste à construire et à utiliser un modèle qui est une représentation simplifiée de la réalité pour montrer les aspects importants du système étudié.”

— Office québécois de la langue française, 2005

Introduction

LA MICROFLUIDIQUE, est la science des écoulements à l'échelle micrométrique, mais c'est aussi une technologie bien aboutie que l'on retrouve déjà dans beaucoup d'applications de la vie courante, comme les liseuses électroniques, les imprimantes jet d'encre ou encore les laboratoires sur puce (une invention qui a permis de faire tenir plusieurs appareils de recherche sur quelques centimètres carrés), mais on trouve aussi beaucoup d'exemples de systèmes microfluidique dans la nature comme la montée de la sève dans les arbres, la circulation dans les capillaires sanguins ou bien le tissage des toiles d'araignées.

Ce manuscrit est consacré à l'étude de l'écoulement de gouttes confinées dans des canaux microfluidiques. En couplant une mise en mouvement volumique (par gradient de pression) et surfacique (par gradient de température), nous avons pu étudier l'influence des contraintes interfaciales sur la dynamique de goutte, de manière expérimentale et théorique.

Les applications industrielles associées vont des laboratoires sur puce (le diagnostic clinique, la recherche pharmaceutique ou la lutte contre le bioterrorisme) aux écoulements de fluides diphasiques dans les milieux poreux (études initiées par les besoins industriels dans les domaines de la récupération assistée du pétrole, les réacteurs chimiques ou les processus électriques dans les électrodes poreux). La question posée dans ce manuscrit est la suivante :

“ Quelle est la vitesse d'une goutte confinée dans un microcanal à section circulaire ? ”

C'est un vieux problème qui date de Bretherton (1960), auquel on a la réponse seulement dans quelques cas très particuliers (sans tensioactifs, *c.f.* CHAPITRE 1, SECTION 1.2). En effet, les vitesses théoriques de bulles et de gouttes ne sont pas en accord avec les modèles. La question posée est l'effet des tensioactifs sur la dynamique de gouttes confinées afin de raffiner les modèles actuels. Et plus particulièrement la modélisation des contraintes interfaciales sur la vitesse des gouttes.

Dans le premier CHAPITRE, nous rappellerons les concepts principaux d'hydrodynamique et de physico-chimie ainsi qu'un état de l'art sur les différents modèles théoriques existant de la dynamique de goutte confinée, avant d'énoncer clairement les objectifs de ce travail de

thèse. Au deuxième CHAPITRE, un modèle de la dynamique de goutte prenant en compte l'effet des contraintes interfaciales sera développé. Le troisième CHAPITRE sera consacré au protocole de fabrication du système microfluidique permettant d'observer le modèle mis en place au deuxième CHAPITRE et de confronter les résultats théoriques et expérimentaux. Enfin le quatrième CHAPITRE récapitulera les travaux effectués et ouvrira sur des propositions d'études pour continuer le travail de ce manuscrit.

Dans notre approche, il s'agit d'étudier un système modèle pour lequel les contraintes interfaciales sont issues d'un gradient de température qui est le paramètre que l'on peut contrôler et faire varier.

État de l'art

LA MÉCANIQUE DES FLUIDES est la science qui étudie les fluides lorsqu'ils sont en état d'équilibre (statique des fluides) et en mouvement (dynamique des fluides). Elle comprend l'étude des gaz et des liquides, ainsi que l'étude de l'interaction de ces derniers avec les corps solides.

1	Rappels généraux	7
1.1	Mécanique des fluides	8
1.2	Microfluidique	9
1.3	La tension superficielle	10
1.4	Les tensioactifs	10
1.5	Effet Marangoni	16
1.6	Systèmes confinés	17
2	Contexte historique du travail de thèse	18
3	Objectif de la thèse	21

1 Rappels généraux

Ici, nous introduisons les notions de base et tous les outils nécessaires à la bonne compréhension des phénomènes que nous allons décrire dans la suite. Mais avant cela, il me semblait important d'introduire la mécanique des fluides à travers quelques questions.

1.1 Mécanique des fluides

Pourquoi les bulles remontent à la surface de l'eau ? Comment les arbres répartissent la sève de leurs racines jusqu'à leurs feuilles ? Pourquoi est-il plus rapide de faire des glaçons avec de l'eau chaude ?

La mécanique des fluides permet de répondre à ces questions. Elle permet par exemple d'expliquer des phénomènes naturels, mais aussi d'exploiter des fluides à des fins pratiques [92, 38, 61].

Archimède (287-212 av JC) a observé et modélisé ce que l'on appelle aujourd'hui la poussée d'Archimède : " Tout corps plongé dans un fluide reçoit une poussée verticale, dirigée vers le haut, égale au poids du fluide déplacé". Pascal (1623-1662) a défini la notion de pression en prouvant que la pression atmosphérique est due au poids de l'atmosphère.

Une bulle dans de l'eau est soumise à deux forces, son poids et la poussée d'Archimède (qui est le gradient de pression dû au poids de l'eau). La masse volumique de l'air étant plus faible que celle de l'eau, la bulle remonte à la surface.

James Jurin (1684-1750) observe et modélise en 1717 la montée capillaire d'un liquide dans un tube capillaire de rayon inférieur à la longueur capillaire, c'est la loi de Jurin. Thomas Young (1773-1829) décrit en 1804 la force qui attire un fluide vers le centre de courbure d'une surface et la relie à la somme des courbures selon deux directions orthogonales. Laplace (1749-1827) reprend les observations de Young et présente en 1805 une analyse mathématique de la courbure moyenne d'une surface. Ainsi la loi de Laplace (ou équation de Laplace-Young) permet de relier la courbure locale de l'interface (séparant deux milieux), à la différence de pression entre ces deux milieux.

On peut expliquer avec un modèle simple la montée de la sève dans les racines de l'arbre. La sève de l'arbre est soumise à deux forces, la pression capillaire (ou pression de Laplace) qui dépend de la courbure du tube capillaire la tirant vers le haut, et son propre poids. Ainsi elle parcourt différents capillaires allant des racines aux pointes des feuilles.

Erasto Bartholomeo Mpemba (né en 1950) observe en 1963 que l'eau chaude gèle plus rapidement que l'eau froide (dans des conditions de refroidissement similaires) c'est l'effet Mpemba. Il n'y a toujours pas d'explication claire et unanimement validée par la communauté scientifique pour l'effet Mpemba. C'est un domaine de recherche actuel.

Le travail de recherche exploré dans ce manuscrit concerne la mécanique des fluides à l'échelle micrométrique. Lorsque l'on descend à ces échelles, les propriétés physiques des écoulements sont modifiées. Ce domaine de recherche est appelé la microfluidique [86, 81, 96, 13].

1.2 Microfluidique

Pourquoi les propriétés physiques des écoulements seraient modifiées à cause de la taille des systèmes étudiés ?

Pour répondre à cette question, il faut parler de loi d'échelle. Établir une loi d'échelle, c'est dire de façon très générale comment varie une grandeur physique en fonction de la taille du système considéré. Ce ne sont plus les mêmes forces qui dominent les écoulements à l'échelle micrométrique. Ce sont les forces surfaciques qui sont prépondérantes devant les forces volumiques. En effet, le rapport surface sur volume augmente lorsque l'on descend dans les échelles d'étude, par exemple pour une sphère, on a :

$$\frac{\text{Surface}}{\text{Volume}} = \frac{4\pi R^2}{\frac{4}{3}\pi R^3} = \frac{3}{R} \quad \text{avec : } R \text{ le rayon de la sphère}$$

Aux échelles micrométriques, la gravité et les forces inertielles deviennent négligeables devant la diffusion thermique et les forces capillaires. On observe alors :

- des écoulement laminaires (pas de turbulences) ;
- des échanges thermiques quasi-instantanés (inférieurs à la seconde) ;
- des effets dus aux propriétés physico-chimiques des surfaces (capillarité, mouillage, tensioactifs).

La microfluidique est à la fois une science, étudiant le comportement des fluides à des échelles micrométriques avec des **applications de recherche fondamentales** (étude des problèmes de physique des interfaces [5], de nucléation/croissance de nanoparticules [41], de dynamique de gouttes confinées [6]), mais aussi une technologie qui permet la fabrication de systèmes manipulant d'infimes quantités de liquide (du picolitre au nanolitre) avec des **applications biologiques** [8, 93] (comme la culture cellulaire en parallèle pour des tests à haut débit de médicaments [46], la fabrication de micro-organes artificiels pour le criblage de nouveaux médicaments [33, 9] ou le diagnostic médical à partir d'urine ou de goutte de sang [83, 82]), ou des **applications industrielles** (comme la fabrication de double émulsions pour la cosmétique [76, 39], des micropompes pour l'injection de produits dans le corps humain [29], l'étude des tensioactifs pour les mousses ou émulsions agroalimentaires [80, 72] ou les têtes d'imprimante à jet d'encre [1], *c.f.* FIGURE 1.1).

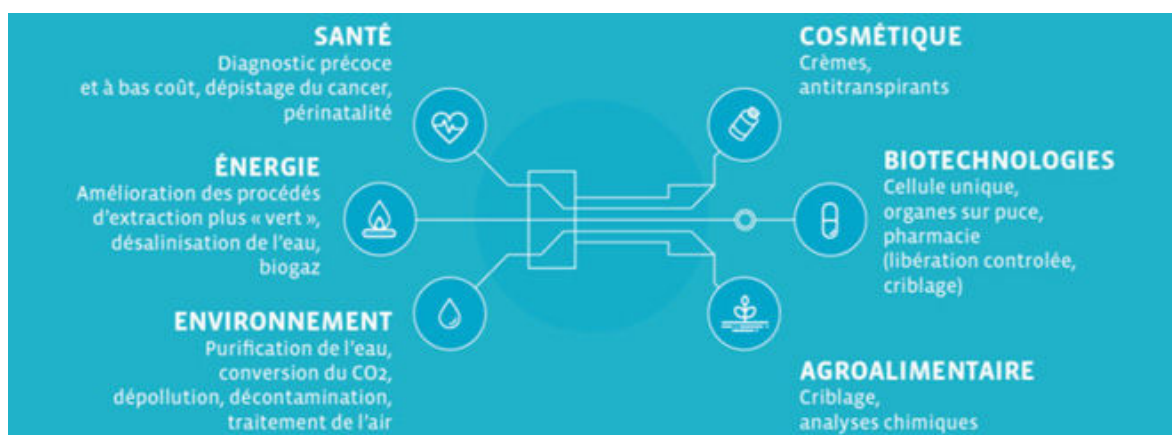


FIGURE 1.1: Applications industrielles liées à la microfluidique (image tirée du site https://www.institut-pgg.fr/Comprendre-la-microfluidique_65.html).

Une des branches de la microfluidique (dans laquelle notre travail s'inscrit) est la microfluidique de gouttes, qui génère, utilise et étudie les gouttes dans des systèmes microfluidiques. Afin de stabiliser ces gouttes on utilise des tensioactifs [89], ils ont pour effet de modifier la tension superficielle à l'interface entre les fluides.

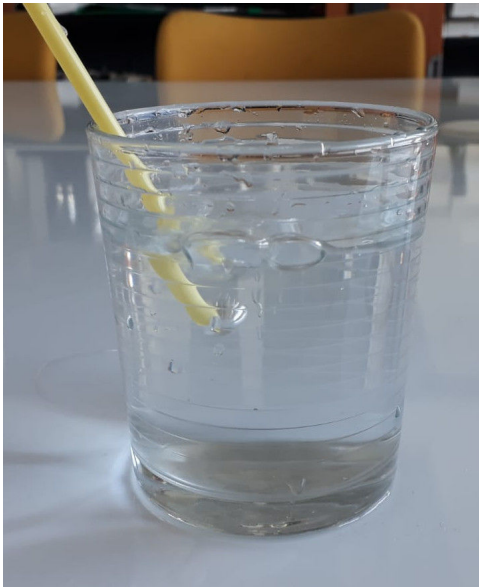
1.3 La tension superficielle

Une interface est la région séparant deux phases distinctes (comme par exemple un liquide et un gaz). La tension superficielle (ou tension de surface), notée γ est une propriété physico-chimique de l'interface qui quantifie le coût énergétique de création d'une interface. Cette grandeur est homogène à une énergie par unité de surface (c'est-à-dire à une force par unité de longueur) habituellement exprimée en mN/m.

1.4 Les tensioactifs

L'effet des tensioactifs est observable en réalisant une expérience toute simple. Prenons un verre d'eau et une paille. Si nous soufflons dans la paille, des bulles sont formées à son extrémité, remontent à la surface et disparaissent en moins d'une seconde (*c.f.* FIGURE 1.2a). Alors que si nous ajoutons quelques gouttes de tensioactif (ici du liquide vaisselle), les bulles d'air ont une durée de vie de plus de deux minutes, soit plus de cent fois plus importante (*c.f.* FIGURE 1.2b).

Les tensioactifs ont une affinité pour les interfaces gazeuses-liquides (ou aqueuses-huileuses) qui est due aux parties hydrophiles et hydrophobes de la molécule (*c.f.* FIGURE 1.3a). On dit que la molécule est amphiphile. Ces tensioactifs ont pour effet de stabiliser les films situés entre les bulles adjacentes (*c.f.* FIGURE 1.3).

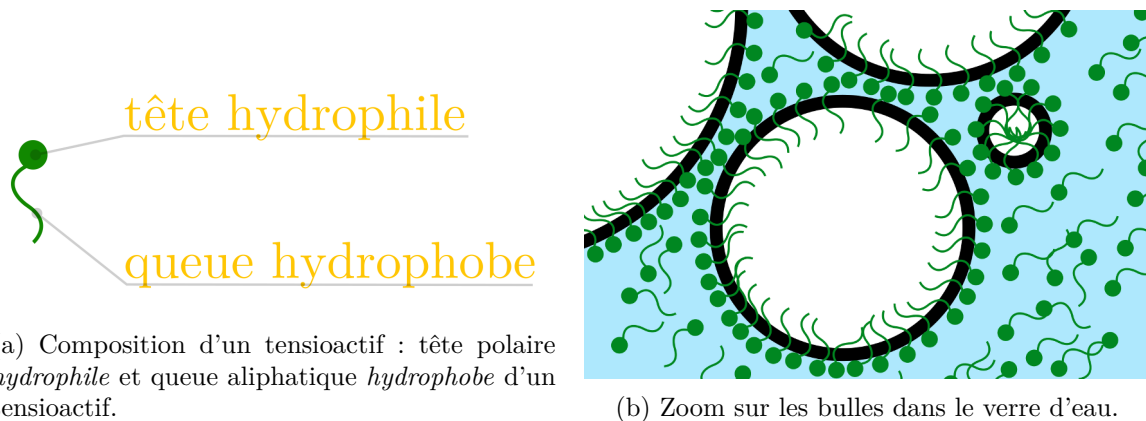


(a) Sans tensioactifs.



(b) Avec tensioactifs.

FIGURE 1.2: Effet des tensioactifs sur le temps de vie des bulles à la surface d'un verre d'eau

(a) Composition d'un tensioactif : tête polaire *hydrophile* et queue aliphatique *hydrophobe* d'un tensioactif.

(b) Zoom sur les bulles dans le verre d'eau.

FIGURE 1.3: Affinité des tensioactifs à l'interface.

Tensioactifs solubles et insolubles

Les tensioactifs peuvent avoir un comportement soluble ou insoluble [67, 15] (*c.f.* FIGURE 1.5). Le peuplement de l'interface par les tensioactifs n'est pas instantané. L'évolution du nombre de tensioactifs à l'interface (de concentration Γ) est contrôlée par la diffusion des molécules vers l'interface ainsi que par leur cinétique d'adsorption et de désorption (de temps caractéristiques $t_{\text{adsorption}}$ et $t_{\text{désorption}}$, *c.f.* FIGURE 1.4).

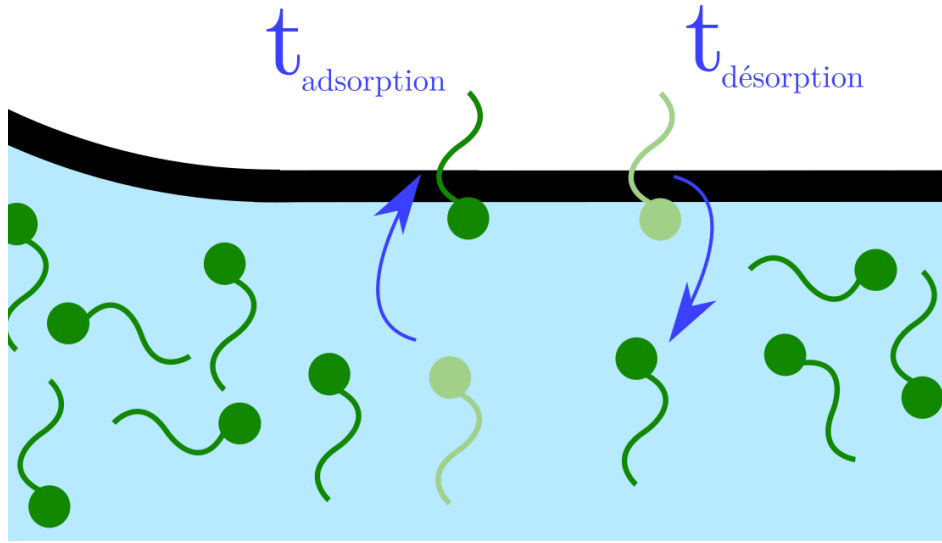


FIGURE 1.4: Temps d'adsorption et de désorption d'un tensioactif.

On peut catégoriser les tensioactifs selon trois cas (de manière schématique, sans prendre en compte la notion de sous-surface) :

- $t_{\text{adsorption}} \ll t_{\text{desorption}}$, le tensioactif est considéré comme insoluble ;
- $t_{\text{adsorption}} \simeq t_{\text{desorption}}$, le tensioactif est considéré comme soluble ;
- $t_{\text{adsorption}} \gg t_{\text{desorption}}$, la molécule n'a pas d'effet tensioactive (elle n'abaisse pas la tension superficielle car à l'équilibre, elle n'est pas présente à l'interface).

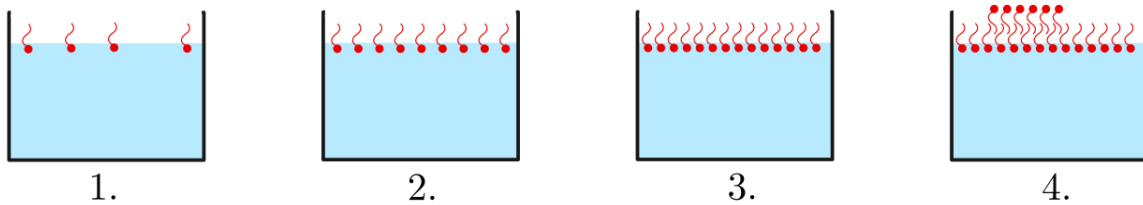
Un tensioactif **insoluble** a un temps d'adsorption négligeable devant le temps de désorption, à l'équilibre thermodynamique, il va donc se situer à l'interface. Le nombre de tensioactifs à l'interface est conservé au cours d'une déformation, générant ainsi un gradient de tensioactif induisant une contrainte interfaciale appelée contrainte de Marangoni (détaillée en CHAPITRE 1, SECTION 1.5). On introduit alors l'élasticité de Gibbs-Marangoni E qui quantifie la compressibilité de l'interface [26], définie par :

$$E = -\Gamma \frac{\partial \gamma}{\partial \Gamma}$$

avec : Γ la concentration de tensioactif à l'interface, γ la tension superficielle entre l'air et le liquide.

Un tensioactif **soluble** a un temps d'adsorption du même ordre de grandeur que le temps de désorption. A l'équilibre thermodynamique, on peut le trouver soit dans la phase liquide, soit à l'interface. La vitesse de dilatation/compression d'une interface ou la création d'une interface peut générer un gradient de tensioactif à l'interface (et donc une contrainte interfaciale, *c.f.* l'effet Marangoni en CHAPITRE 1, SECTION 1.5) si le temps caractéristique de sollicitation de l'interface est plus court que le temps caractéristique d'adsorption/désorption des tensioactifs à l'interface. Ce mécanisme peut conférer aux tensioactifs solubles des propriétés analogues à celles des tensioactifs insolubles.

~• : tensioactif insoluble



~• : tensioactif soluble

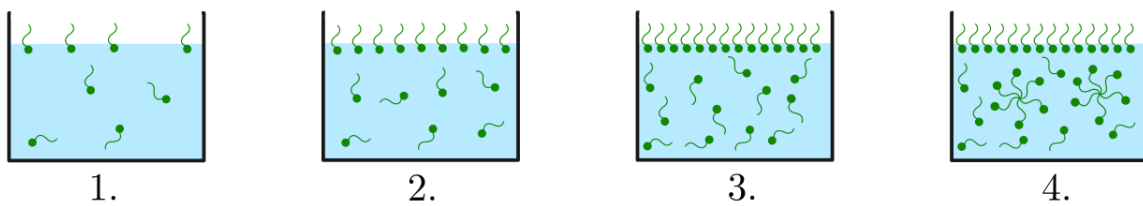


FIGURE 1.5: Schéma de solubilité d'un tensioactif. On a représenté quatre concentrations en tensioactifs pour le cas de tensioactifs insolubles (en rouge) et solubles (en vert). Les concentrations augmentent du schéma 1. au 4.. À forte concentration, on observe l'apparition d'une bi-couche de tensioactifs pour les tensioactifs insolubles, et l'apparition de micelles pour les tensioactifs solubles [49].

Qu'il soit soluble ou insoluble, le tensioactif présente une affinité particulière pour les interfaces. La présence de telles molécules à une interface, affecte la valeur de la tension de surface (d'où le nom de "tensioactif"). C'est cette modification des propriétés des interfaces par les tensioactifs que nous allons présenter dans la SOUS SECTION suivante.

Tensioactifs aux interfaces

L'ajout de tensioactifs en volume fait diminuer la tension superficielle, en effet les tensioactifs ont une affinité avec les interfaces et vont s'adsorber et se désorber avec un temps caractéristique. Lorsque la concentration en tensioactif dans la solution a atteint une concentration critique (appelée concentration micellaire critique, ou CMC), au-delà de laquelle la tension de surface sature, l'interface est complètement couverte de tensioactifs et la tension superficielle est minimale.

L'ajout de tensioactifs au delà de la CMC amène à la formation de structures énergétiquement favorables appelées micelles (dans le cas de tensioactifs solubles, *c.f.* FIGURE 1.6) ou d'une bi-couche de tensioactifs à l'interface (dans le cas de tensioactifs insolubles) [49].

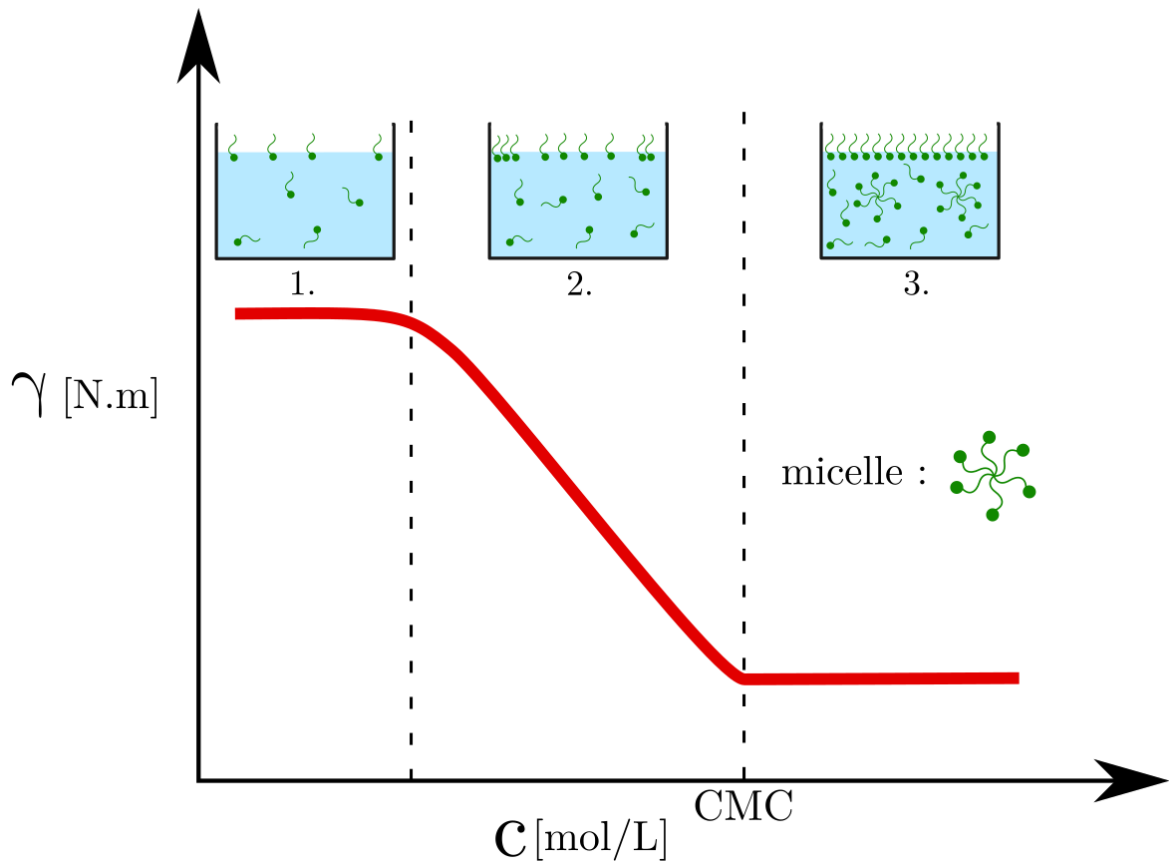


FIGURE 1.6: Définition de la concentration micellaire critique pour un tensioactif soluble. À mesure que la concentration en tensioactif c augmente, la tension superficielle γ diminue (1. et 2.), jusqu'à obtenir une tension superficielle minimale à la CMC et au-delà (3.).

Dynamique d'adsorption et de désorption des tensioactifs solubles

Pour les tensioactifs solubles, leur affinité pour les interfaces est régie dynamiquement par leur cinétique d'adsorption et désorption (caractérisé par les temps d'adsorption et désorption des tensioactifs). Si la surface n'est pas en mouvement et que l'on est à l'équilibre thermodynamique, la concentration en tensioactif est constante, même si les tensioactifs sont en perpétuel mouvement (il y a des échanges en permanence entre la surface et la sous-surface). Cependant, si la surface est en mouvement (avec un temps caractéristique de déplacement de l'interface $t_{\text{interface}}$) on peut distinguer deux cas :

- $t_{\text{tensioactif}} \ll t_{\text{interface}}$: le tensioactif est dit "soluble"
- $t_{\text{tensioactif}} \gg t_{\text{interface}}$: le tensioactif est dit "peu soluble" (comportement insoluble)

L'état "soluble" ou "peu soluble" du tensioactif ne dépend pas uniquement du tensioactif, mais de la comparaison du temps caractéristique d'adsorption/désorption du tensioactif $t_{\text{tensioactif}}$ avec le temps caractéristique de déplacement de l'interface $t_{\text{interface}}$ (*c.f.* FIGURE 1.7).

On dit d'un tensioactif qu'il est **soluble**, lorsqu'il va s'adsorber et se désorber de l'interface avec un temps caractéristique plus faible que le temps caractéristique de déplacement de l'interface. La tension superficielle peut être considérée comme uniforme et constante le long de l'interface.

Le tensioactif est dit peu soluble, voire **insoluble**, lorsque la cinétique d'adsorption/désorption du tensioactif est plus lente que les temps de sollicitation de l'interface (compression, dilatation, écoulement). On obtient alors un gradient de tension superficielle au niveau de l'interface, cela génère des contraintes interfaciales appelées également contraintes de Marangoni.

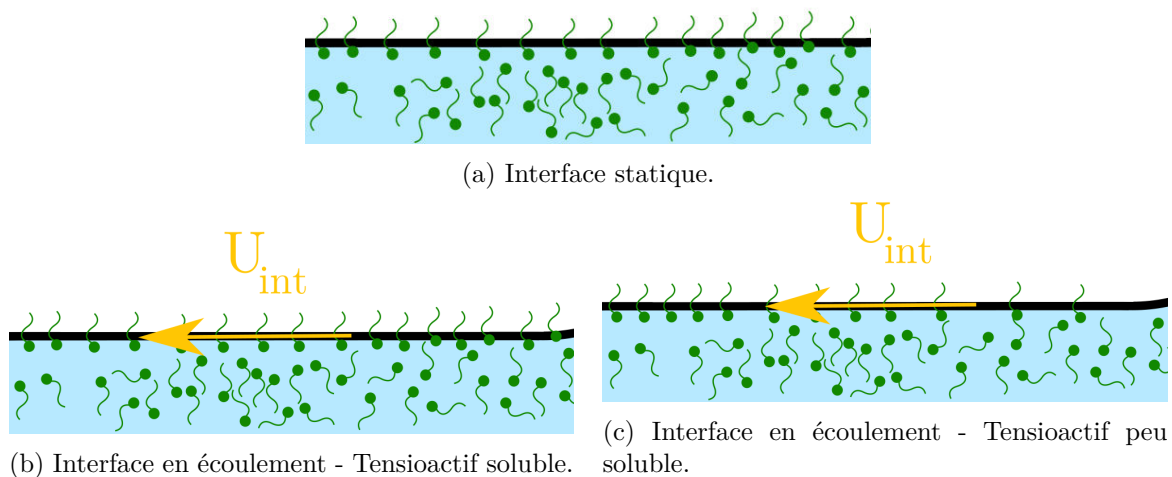


FIGURE 1.7: Définition de la solubilité d'un tensioactif. Les tensioactifs sont représentés en vert.

1.5 Effet Marangoni

L'effet Marangoni est une contrainte interfaciale de tenseur $\overline{\overline{\sigma_{Ma}}}$ résultant d'un gradient de tension superficielle $\mathbf{grad}(\gamma)$ avec γ la tension superficielle. Soit la relation $\overline{\overline{\sigma_{Ma}}} = \mathbf{grad}(\gamma)$ [85]. Cette contrainte qui tend à abaisser la tension superficielle du système (et donc son énergie de surface) génère un écoulement de surface qui induit un écoulement volumique par transfert de quantité de mouvement.

Plaçons nous selon une direction x , l'équation devient $\mathbf{x} \cdot \overline{\overline{\sigma_{Ma}}} \cdot \mathbf{x} = \frac{\partial \gamma}{\partial x}$.

On a vu que la tension superficielle variait avec des tensioactifs considérés comme faiblement solubles, voire insolubles, mais la tension superficielle dépend également de la température. Ainsi deux phénomènes génèrent des contraintes à l'interface, l'effet solutocapillaire (tensioactifs insolubles ou peu solubles) et l'effet thermocapillaire (avec un gradient de température au niveau de l'interface). Soit $\gamma(\Gamma, T)$ avec Γ la concentration de tensioactif à l'interface et T la température de l'interface (*c.f.* FIGURE 1.8).

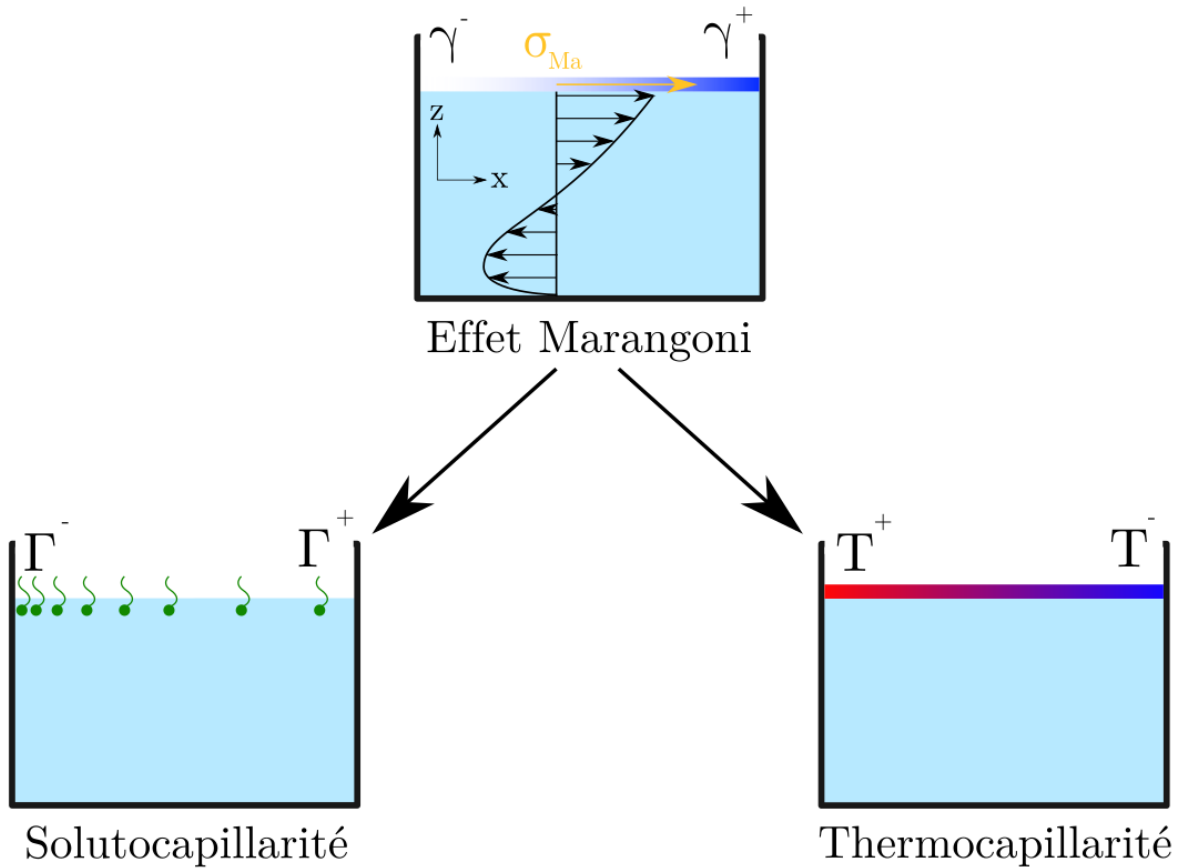


FIGURE 1.8: Origines de l'effet Marangoni.

L'effet **solutocapillaire** provient d'un gradient de concentration des tensioactifs (insoluble ou peu soluble) à l'interface. Γ dépend de la concentration en solution de tensioactifs et de la vitesse de déplacement de l'interface U_{int} . La contrainte interfaciale (que l'on appelle également contrainte de Gibbs-Marangoni) peut s'écrire :

$$\mathbf{x} \cdot \overline{\overline{\sigma_{\text{Ma}}}} \cdot \mathbf{x} = \frac{\partial \gamma}{\partial \Gamma} \cdot \frac{\partial \Gamma}{\partial x}$$

L'effet **thermocapillaire** provient d'un gradient de température à l'interface. La contrainte interfaciale peut s'écrire :

$$\mathbf{x} \cdot \overline{\overline{\sigma_{\text{Ma}}}} \cdot \mathbf{x} = \frac{\partial \gamma}{\partial T} \cdot \frac{\partial T}{\partial x}$$

L'effet solutocapillaire dépend de la répartition en surface Γ des tensioactifs et ne peut être contrôlé, contrairement à l'effet thermocapillaire qui lui peut être contrôlé par un gradient de température imposé. À cette élasticité de surface, des viscosités de surface peuvent intervenir [67], mais elle seront négligées dans le manuscrit [55].

1.6 Systèmes confinés

Lorsqu'une bulle ou une goutte est confinée aux échelles de la dizaine ou centaine de microns, le film de lubrification peut atteindre des épaisseurs si faibles (quelques dizaines de nanomètres), que les interactions moléculaires entrent en jeu [31]. C'est ce que l'on appelle la pression de disjonction Π_{disj} [20].

Pression de disjonction

La théorie dite de DLVO (Derjaguin, Landau, Verwey et Overbeek) propose trois contributions à la pression de disjonction [19, 94, 2] :

- Π_{elec} , un terme électrostatique ;
- Π_{vdW} , un terme lié aux interactions de van der Waals ;
- Π_{steric} , un terme stérique.

$$\Pi_{\text{disj}} = \Pi_{\text{elec}} + \Pi_{\text{vdW}} + \Pi_{\text{steric}}$$

C'est cette pression de disjonction qui nous donne un critère limitant théoriquement les épaisseurs de films fins (ici on prendra comme limite de confinement une épaisseur d'environ 70 nm [32]).

2 Contexte historique du travail de thèse

Au début du 20ème siècle, la mesure de débit en mécanique des fluides était réalisée en mesurant la vitesse d'une bulle confinée dans un tube capillaire. En 1935, Fairbrother & Stubbs ont remarqué que la bulle se déplaçait plus vite que la vitesse moyenne du liquide dans le tube capillaire. Afin d'améliorer la justesse des mesures de débit, Fairbrother & Stubbs s'intéressent en premier à la vitesse d'une bulle confinée dans un tube capillaire à section circulaire, lorsque l'on applique un gradient de pression dans le canal.

Ils montrent de manière théorique, dans leur papier de 1935 [22] que la bulle ne se comporte pas comme un piston hermétique. Et que si le rayon du tube est assez petit pour négliger la gravité (plus petit que la longueur capillaire), alors un film de lubrification relie le front avant au front arrière de la bulle avec une épaisseur h_∞ . Ce film de lubrification est dans une zone où la pression est uniforme, avec aucune contrainte tangentielle à l'interface (aussi appelé condition stress-free) et par conséquent au repos.

En 1967, Goldsmith & Mason [27] ont montré expérimentalement la présence d'un film de lubrification. Le volume balayé par la bulle lorsqu'elle se déplace à une vitesse U_d doit être égal à la vitesse moyenne du liquide à l'avant et à l'arrière de la bulle, avec une mobilité $\frac{U_d}{U_f}$ (avec U_d la vitesse de la bulle et U_f la vitesse moyenne du liquide de la phase externe) exprimée par l'équation (2.12) dont les paramètres sont définis en FIGURE 1.9 :

$$\frac{U_d}{U_f} \simeq 1 + 2 \frac{h_\infty}{R}$$

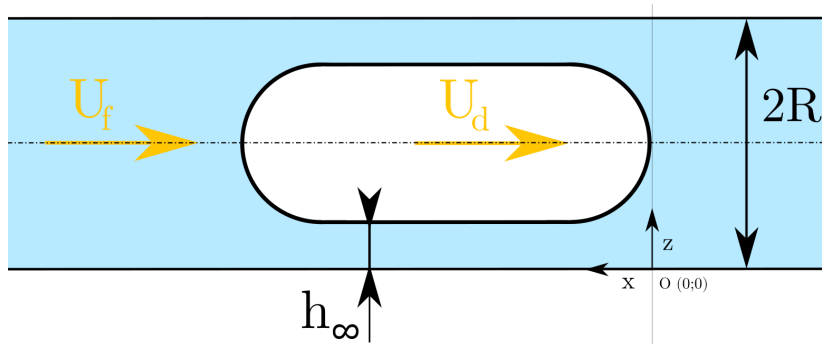


FIGURE 1.9: Définition des paramètres du modèle. Avec U_f la vitesse moyenne du fluide de la phase externe, U_d la vitesse moyenne de la bulle, R le rayon du capillaire et h_∞ l'épaisseur du film de lubrification.

La mesure de film de lubrification h_∞ permet donc de mesurer indirectement la mobilité de la bulle $\frac{U_d}{U_f}$ et d'obtenir une mesure juste de la vitesse moyenne du liquide dans le tube capillaire. Pour des cellules de Hele-Shaw, des mesures interférentielles permettent de déterminer cette épaisseur h_∞ [91, 3].

En 1961 Bretherton [12] donne une relation permettant de relier théoriquement l'épaisseur du film de lubrification h_∞ au nombre capillaire Ca (qui est un nombre sans dimension représentant le rapport entre les forces visqueuses et la tension superficielle). On le définit par la relation : $Ca = \frac{\mu U}{\gamma}$, pour plus de détails, se référer au CHAPITRE 2, SECTION 1.1) caractérisant le mouvement de la bulle. Il s'inspire de la méthode de résolution développée par Landau, Levich et Derjaguin (où ils relient l'épaisseur de film déposé h_∞ au nombre capillaire Ca . Lorsque l'on tire une plaque initialement immergée dans de l'eau, hors de l'eau avec une vitesse U , *c.f.* CHAPITRE 2, SECTION 1.1). Cependant ses mesures expérimentales, ne permettent pas de rendre compte de son modèle.

La théorie de Bretherton est difficile à valider expérimentalement car elle ne tient pas compte de la présence de tensioactifs insolubles ou peu solubles. Que ce soit pour des quantités très faibles [63] (gradients de concentration en volume) ou pour des solutions concentrées [84] (les transferts de masse sont contrôlés par les cinétiques d'adsorption/désorption), les films de lubrification sont plus épais en présence de tensioactifs que la prédiction de Bretherton. Les tensioactifs peuvent modifier la rhéologie interfaciale et ainsi les conditions limites à l'interface (c'est l'effet solutocapillaire) [77, 14]. Comme expliqué par Teletzke *et al.* [90], les effets Marangoni résultant d'une concentration plus élevée aux extrémités de la goutte peuvent engendrer des écoulements qui épaississent le film de lubrification [63, 18, 70, 48].

Des variations de concentration de tensioactifs à l'interface et des vitesses interfaciales génèrent des épaississements locaux du film de lubrification, expliquant les écarts entre la théorie de Bretherton (ne prenant pas en compte l'effet des tensioactifs) et les mesures expérimentales. Des gradients de concentrations de tensioactifs ont été observés à l'arrière des bulles (au niveau du point de stagnation) générant un épaississement local du film de lubrification et rendant l'interface localement incompressible [17, 65].

Les tensioactifs peuvent créer des gradients de tension superficielle à l'interface qui génère une contrainte interfaciale. Cette contrainte interfaciale peut également être obtenue sans tensioactifs, en générant un gradient de température à l'interface (c'est l'effet thermocapillaire [40]).

En 2000, Mazouchi & Homsy ont modélisé la dynamique de bulles confinées dans un tube capillaire à section cylindrique par gradient thermique (sans gradient de pression). À ce jour aucune mesure expérimentale ne rend compte de cette modélisation. En 2002, Lajeunesse & Homsy ont réalisé des expériences de vitesse de bulle confinée dans un tube capillaire à section rectangulaire mise en mouvement par un gradient thermique [47]. Cette approche permet de modéliser plus fidèlement le comportement de bulle dans des cavités poreuses (avec une application industrielle liée à la récupération assistée du pétrole [97, 98]).

Nous supposons un système modèle basé sur l'effet thermocapillaire pour analyser expérimentalement l'effet d'une contrainte interfaciale contrôlée (effet Marangoni, *c.f.* CHAPITRE 1, SECTION 1.5), via la température, sur la dynamique de goutte. Notamment sur l'aspect local ou global d'une contrainte sur la dynamique d'une goutte.

Il est important de souligner le fait que la théorie développée dans ce travail est un modèle de bulle, cependant les expériences ont été réalisées avec des gouttes, qui dans nos conditions expérimentales sont assimilées et ont le même comportement que des bulles (*c.f.* CHAPITRE 3, SECTION 1, SOUS SECTION 1.3, **Influence de la viscosité de la phase dispersée**).

3 Objectif de la thèse

Notre étude a été menée avec une approche de recherche fondamentale (dynamique de gouttes confinées [88, 87, 45]) mais touche également des applications industrielles (récupération assistée du pétrole dans les forages pétroliers [62, 51]).

Quelle est la vitesse d'une bulle d'air confinée dans un tube capillaire à section circulaire lorsque l'on applique un gradient de pression dans le canal ?

Bretherton a répondu à cette question, de manière théorique. Cependant expérimentalement, les observations ne correspondent pas à la théorie (les vitesses de bulles observées sont plus faibles que celles prédites par la théorie). Cela est dû au fait qu'il est très difficile d'obtenir des bulles confinées dans un microcanal sans tensioactifs. Le modèle de Bretherton ne prend pas en compte la présence de ces derniers, qui influe sur la dynamique de déplacement de la bulle. Afin de comprendre l'influence de ces contraintes interfaciales, Mazouchi *et al.* ont mis au point une expérience mettant en mouvement une bulle confinée dans un tube capillaire en verre par contrainte thermocapillaire seulement (il n'y a pas de gradient de pression). Théorie observée et validée expérimentalement (dans le cas de tubes capillaires à section rectangulaire) par Lajeunesse.

Notre objectif est de comprendre l'effet des tensioactifs sur la dynamique de bulle confinée en présence de tensioactifs en le modélisant par un gradient de tension superficielle constant et global. Pour ce faire, nous avons décidé de mettre en place un système expérimental modèle basé sur l'effet thermocapillaire, et non solutocapillaire. En effet, la contrainte interfaciale de Marangoni peut être générée par un gradient de concentration de tensioactifs à l'interface ou par un gradient de température à l'interface (des techniques de chauffage à profil de température contrôlé ont été développés). L'avantage de l'effet thermocapillaire, est que l'on peut contrôler et réguler cette contrainte.

Synthèse

CHAPITRE 1 - ÉTAT DE L'ART

- La microfluidique est un domaine de la mécanique des fluides pour lequel, les forces surfaciques prédominent sur les forces volumiques, contrairement à l'échelle macroscopique ;
- La présence de tensioactifs peut engendrer des contraintes interfaciales (effet Marangoni) pour des tensioactifs insolubles ou peu solubles ;
- L'effet Marangoni peut être solutocapillaire ou thermocapillaire ;
- Les interactions moléculaires, que l'on modélise par la pression de disjonction peuvent intervenir et jouer un rôle significatif pour des bulles ou gouttes confinés aux échelles micrométriques ;
- L'objectif est de fournir un système modèle permettant d'étudier l'influence d'une contrainte de Marangoni contrôlée (via un profil de température), sur la dynamique de gouttes dans un tube capillaire.

Partie théorique

CE CHAPITRE est consacré à la modélisation d'une bulle d'air dans un liquide porteur visqueux en mouvement dans un canal cylindrique. La mise en mouvement de cette bulle peut se faire par une action volumique (gradient de pression), une action surfacique (gradient de tension superficielle) ou la combinaison de ces deux actions. La mise en mouvement d'une bulle dans un liquide visqueux par gradient de pression a été théorisé par Bretherton en 1960 et par gradient de tension superficielle par Mazouchi *et al.* en 2000.

Nous avons amené une nouvelle adimensionnalisation pour le cas de Mazouchi *et al.* permettant d'obtenir un profil adimensionné unique rendant compte de tous les cas à différents nombres capillaires. De plus nous avons développé un modèle dit de "régime mixte" combinant les contraintes de mises en mouvement volumique (cas Bretherton) et surfacique (cas Mazouchi *et al.*).

1	Rappels théoriques - LLD, Bretherton, Mazouchi <i>et al.</i>	24
1.1	Approche Landau-Levich-Derjaguin (LLD)	24
1.2	Bretherton	36
1.3	Mazouchi <i>et al.</i>	38
2	Régime mixte	42
2.1	Conservation du volume	44
2.2	Détermination de $\frac{h_\infty}{R}$	45
2.3	Expression de $\frac{U_d}{U_f}$	52
2.4	Expression de $U_d = f_1(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x})$ et $h_\infty = f_2(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x})$	57
3	Conclusion	58
3.1	Bretherton	58
3.2	Thermocapillaire	58
3.3	Régime mixte	59

1 Rappels théoriques - LLD, Bretherton, Mazouchi *et al.*

1.1 Approche Landau-Levich-Derjaguin (LLD)

Quelle est l'épaisseur de peinture h_∞ déposée sur un mur lorsqu'on le peint avec un pinceau ? Quelle est l'épaisseur de liquide déposée h_∞ sur une lame de verre lorsqu'elle est partiellement immergée et tirée hors d'un liquide à une vitesse U ?

C'est à ces questions qu'ont répondu Landau & Levich (1942) et Derjaguin (1943) [4, 21], liant l'épaisseur de film déposé au nombre capillaire Ca caractérisant l'expérience. Le nombre capillaire est un nombre adimensionné qui compare les forces visqueuses des forces normales de tension superficielle.

$$Ca = \frac{F_{\text{visqueuses}}}{F_{\text{tension superficielle}}^{\text{normale}}} = \frac{\mu UL}{\gamma L}$$

$$Ca = \frac{\mu U}{\gamma}$$

avec : μ [kg.m⁻¹.s⁻¹] la viscosité dynamique du fluide, U [m.s⁻¹] la vitesse caractéristique de l'étude, L [m] la longueur caractéristique de l'étude et γ [kg.s⁻²] la tension superficielle entre le liquide étudié et le milieu extérieur.

La relation obtenue est connue comme l'équation LLD (détaillé en ANNEXE 7) :

$$h_\infty = 0.94 \times l_c \times Ca^{2/3}$$

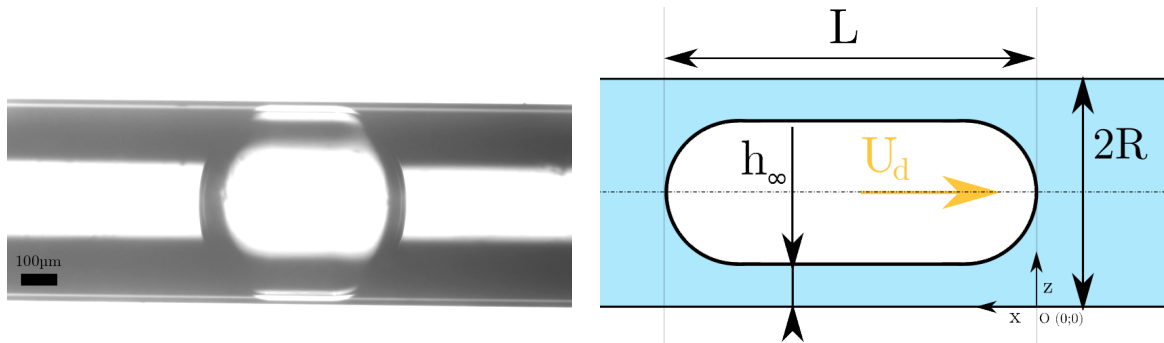
avec : h_∞ [m] l'épaisseur du film déposé et l_c [m] la longueur capillaire (où $l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}}$).

On observe un écoulement local proche des parois qui est similaire que ce soit dans le cas d'une plaque tirée hors d'un bain liquide, d'une fibre tirée hors d'un bain liquide, d'une goutte qui s'étale sur un substrat possédant une fine couche de liquide étalée d'épaisseur constante ou d'une bulle se déplaçant dans un tube capillaire [14].

C'est cette dernière configuration qui va nous intéresser plus particulièrement dans la suite de ce CHAPITRE. Et nous allons reprendre la méthode de résolution LLD pour étudier ce système.

1.1.1 Modélisation de l'expérience

On se place dans la configuration de Bretherton (*c.f.* FIGURE 2.1). Une bulle confinée dans un capillaire en verre se déplace à une vitesse U_d (et non plus U qui était la vitesse de tirage de la plaque dans le cas LLD, ici nous avons une bulle) par un gradient de pression.



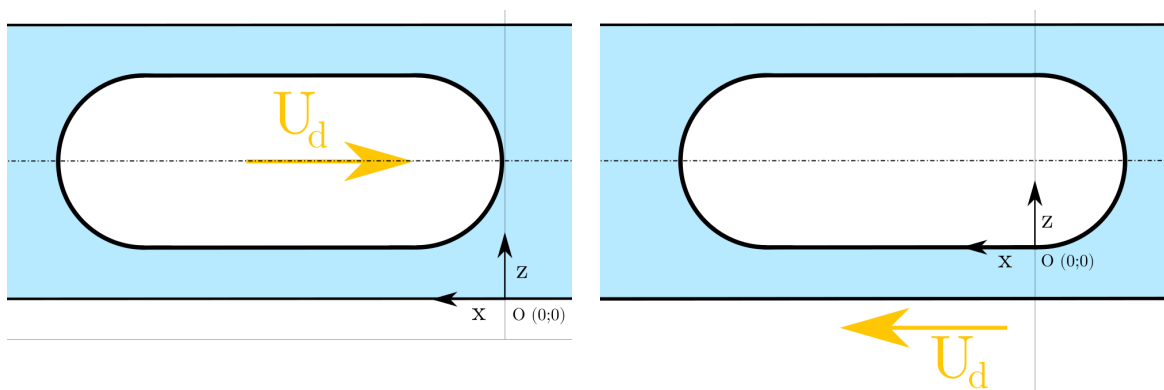
(a) Image d'une goutte d'huile fluorée FC-72 dans de l'eau distillée avec 2 CMC de tensioactif SDS, confinée dans un capillaire en verre de $400 \mu\text{m}$ de diamètre interne.

(b) Schéma 2D axisymétrique d'une bulle d'air dans de l'eau de longueur L , se déplaçant à une vitesse U_d dans un capillaire en verre de diamètre $2R$ ayant un film de lubrification h_∞ .

FIGURE 2.1: Modélisation de l'expérience.

Repères d'étude

Le repère usuel est le repère du laboratoire (*c.f.* FIGURE 2.2a), dans lequel la bulle est en mouvement avec une vitesse $\mathbf{U}_d = U_d \mathbf{x}$ (avec U_d étant une valeur algébrique, et non absolue). Cependant il peut être utile de changer de repère et de passer dans un repère lié à la bulle (*c.f.* FIGURE 2.2b) pour s'intéresser au profil stationnaire de la bulle en régime permanent.



(a) Repère du laboratoire.

(b) Repère de la bulle.

FIGURE 2.2: Changement de repère d'étude.

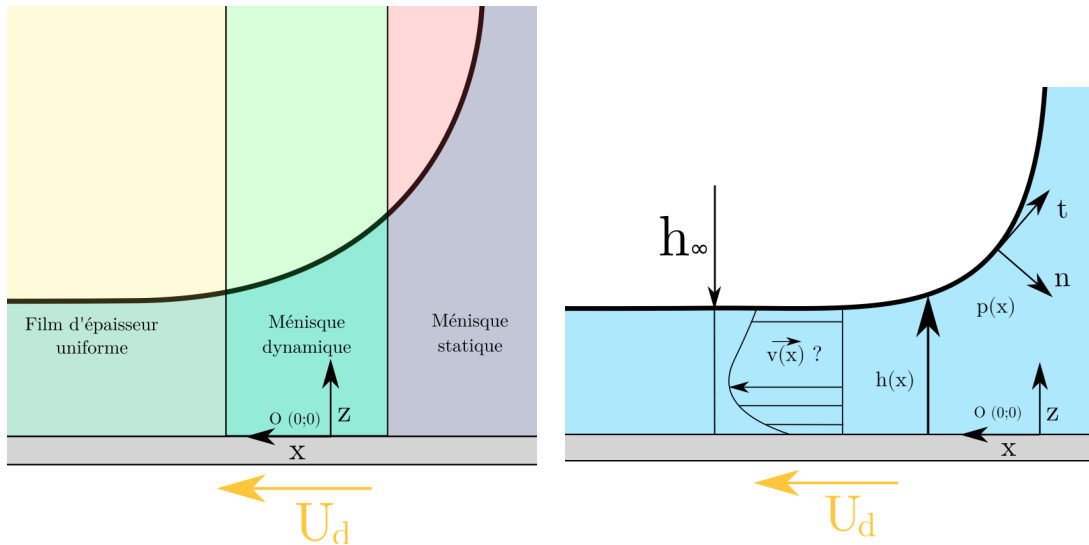
Définition des termes utilisés

Dans le repère de la bulle, le système peut être comparé à la modélisation LLD. On définit trois zones (*c.f.* FIGURE 2.3a) qui sont la zone où le film de lubrification entre la bulle et la paroi a une épaisseur constante (de courbure nulle), la zone du ménisque dynamique (qui relie le film plat de courbure nulle au ménisque statique de courbure $\kappa = \frac{2}{R-h_\infty} \simeq \frac{2}{R}$) et la zone du ménisque statique (où la courbure de l'interface est constante et vaut $\kappa = \frac{2}{R}$, avec R le rayon interne du tube capillaire en verre).

Les informations que l'on a sur le profil du film de lubrification sont pour les zones :

- du film d'épaisseur uniforme : $h'(x) = 0$ et $h''(x) = 0$;
- et du ménisque statique : $h''(x) = \frac{2}{R}$.

L'objectif est d'obtenir le profil du film de lubrification $h(x)$ dans la zone du ménisque dynamique (*c.f.* FIGURE 2.3). On raccorde l'épaisseur du film de lubrification de la zone du ménisque statique, à la zone du film d'épaisseur uniforme, d'où $h(x \rightarrow \infty) = h_\infty$. Il faut également raccorder la courbure de la zone du ménisque dynamique à la courbure de la zone du ménisque statique, d'où $\frac{\partial^2 h}{\partial x^2}(x \rightarrow -\infty) = \frac{\partial^2 h}{\partial x^2}|_{-\infty} = \frac{2}{R}$.



(a) Définition des zones du raisonnement LLD.

(b) Définition des paramètres d'étude.

FIGURE 2.3: Schéma 2D d'un ménisque liquide sur un solide se déplaçant à une vitesse U_d selon x (dans le repère de la bulle). Cette FIGURE est un schéma, le champs des vitesses a été tracé de manière à montrer que nous ne le connaissons pas (ce sera soit un cisaillement, soit un profil bouchon).

1.1.2 Hydrodynamique d'écoulements biphases

Dans cette partie, nous allons détailler les équations de la mécanique des fluides qui permettent de modéliser le comportement de notre goutte confinée. Elle se décompose en une partie modélisant les comportements volumiques et une seconde les conditions aux limites surfaciques. Les équations seront exprimées dans la phase liquide, au besoin nous définirons un indice précisant s'il s'agit d'une valeur dans la phase liquide ou la phase gazeuse.

Comportement volumique - conservation de la quantité de mouvement

Nous appliquons la relation fondamentale de la dynamique à un volume de liquide en écrivant l'égalité entre la variation temporelle de sa quantité de mouvement et l'ensemble des forces (de volume et de surface) exercée sur notre volume de liquide.

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \rho (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = \rho \mathbf{f} + \text{div}(\bar{\bar{\sigma}})$$

avec : ρ la masse volumique, \mathbf{u} le champ de vitesse, \mathbf{f} la force en volume par unité de masse appliquée à l'unité de masse du fluide, $\bar{\bar{\sigma}}$ le tenseur des contraintes dans le fluide considéré.

Comportement surfacique - conditions aux limites

La détermination complète du mouvement d'un fluide (champ de vitesse \mathbf{u}) nécessite, d'une part l'intégration de l'équation du mouvement des particules de fluide, d'autre part la donnée des conditions aux limites, c'est-à-dire la valeur des champs de vitesse et de contraintes à la frontière du domaine qui limite le fluide [15, 67, 11, 36]. C'est le domaine de la rhéologie interfaciale, elle dépend des propriétés physico-chimiques des solutions mais aussi des conditions de déformation et/ou d'écoulement des interfaces.

$$\text{Contrainte normale : } \mathbf{n} \cdot \bar{\bar{\sigma}} \cdot \mathbf{n} = \gamma \kappa + \mathbf{n} \cdot \nabla_s \cdot \bar{\bar{\sigma}}_s$$

$$\text{Contrainte tangentielle : } \mathbf{t} \cdot \bar{\bar{\sigma}} \cdot \mathbf{n} = \mathbf{t} \cdot \nabla_s \gamma + \mathbf{t} \cdot \nabla_s \cdot \bar{\bar{\sigma}}_s$$

avec : \mathbf{n} la normale à l'interface (orientée de la phase liquide vers la phase gazeuse), $\bar{\bar{\sigma}}$ le tenseur des contraintes, κ la courbure de l'interface, ∇_s l'opérateur gradient de surface et $\bar{\bar{\sigma}}_s$ le tenseur des contraintes interfaciales et \mathbf{t} une tangente à l'interface.

On a : $\bar{\bar{\sigma}}_s = \bar{\bar{\sigma}}_{visq} + \bar{\bar{\sigma}}_{élast}$ où $\bar{\bar{\sigma}}_{visq}$ et $\bar{\bar{\sigma}}_{élast}$ sont les lois constitutives reliant les réponses visqueuse et élastique respectivement au taux de déformation et à la déformation de l'interface.

avec : $\bar{\bar{\sigma}}_{visq} = \left(\mu_s^{\text{dilatationnelle}} - \mu_s^{\text{cisaillement}} \right) \left(\text{tr} \bar{\bar{D}}_s \right) \bar{\bar{I}}_s + 2 \mu_s^{\text{cisaillement}} \bar{\bar{D}}_s$, provenant de la forme du tenseur de Boussinesq-Scriven [10, 73] pour des fluides newtoniens, où apparaissent la

viscosité de surface dilatationnelle $\mu_s^{\text{dilatationnelle}}$, la viscosité de surface de cisaillement $\mu_s^{\text{cisaillement}}$ (supposées constantes) et le tenseur des taux de déformation en surface $\overline{\overline{D}}_s$, relié à la vitesse interfaciale \mathbf{u}_s par la relation $\overline{\overline{D}}_s \equiv \frac{1}{2} [(\nabla_s \otimes \mathbf{u}_s) \cdot \overline{\overline{I}}_s + \overline{\overline{I}}_s \cdot (\nabla_s \otimes \mathbf{u}_s)^T]$, où $\overline{\overline{I}}_s$ est l'opérateur de projection sur l'interface.

$\overline{\overline{\sigma}}_{\text{élast}} = (G_s^{\text{dilatationnelle}} - G_s^{\text{cisaillement}}) (\text{tr} \overline{\overline{E}}_s) \overline{\overline{I}}_s + 2G_s^{\text{cisaillement}} \overline{\overline{E}}_s$, provenant de l'analogie en deux dimensions de la loi de Hooke [60], où apparaissent l'élasticité dilatationnelle $G_s^{\text{dilatationnelle}}$, l'élasticité de cisaillement $G_s^{\text{cisaillement}}$ et le tenseur des déformations en surface $\overline{\overline{E}}_s$, relié au champ de déformation (ou des gradients de vitesse) interfaciale ξ_s par la relation $\overline{\overline{E}}_s \equiv \frac{1}{2} [(\nabla_s \otimes \xi_s) \cdot \overline{\overline{I}}_s + \overline{\overline{I}}_s \cdot (\nabla_s \otimes \xi_s)^T]$

1.1.3 Hypothèses

Les équations de Navier-Stokes font partie des problèmes du prix du millénaire de l'institut de mathématiques Clay. Pour les résoudre, il faut donc établir des hypothèses qui permettent de simplifier l'étude afin de trouver une solution.

H1 - Viscosités de surface négligées

Le tensioactif utilisé lors des expériences est du SDS (Dodécyle Sulfate de Sodium). Des expériences précédentes ont montré que sous nos conditions expérimentales, les viscosités de surface de ce tensioactif peuvent être négligées [67, 78].

$$\overline{\overline{\sigma}}_{\text{visq}} \equiv 0$$

H2 - Élasticités de surface négligées

De plus pour nos conditions expérimentales, aucune élasticité de surface n'a été observée [24, 56].

$$\overline{\overline{\sigma}}_{\text{élast}} \equiv 0$$

Finalement, on a $\overline{\overline{\sigma}}_s \equiv 0$. Le SDS n'a pas de contribution à la rhéologie interfaciale de notre bulle. L'équation de conditions aux limites pour la contrainte normale devient alors :

$$\mathbf{n} \cdot \overline{\overline{\sigma}} \cdot \mathbf{n} = \gamma \kappa$$

H3 - Milieu continu

On considère que les fluides étudiés sont homogènes et isotropes.

H4 - Écoulement axi-symétrique

On simplifie le problème en considérant un problème 2D-axisymétrique.

H5 - Faibles nombres capillaires

La prédiction théorique de la forme d'un film fin est effectuée dans la limite de faibles nombres capillaires ($Ca = \frac{\mu U}{\gamma}$). Le nombre capillaire est un nombre adimensionné, étant le rapport entre les forces visqueuses et la composante normale des forces liées à la tension superficielle. Dans nos conditions expérimentales, on travaille avec $Ca = [10^{-9}; 10^{-5}]$, ce qui permet de négliger les forces visqueuses devant la composante normale des forces liées à la tension superficielle.

H6 - Fluide incompressible

L'interface peut être compressible, mais le volume du liquide étudié, est lui, considéré comme incompressible, d'où : $\text{div } \mathbf{u} = 0$

H7 - Hypothèse de lubrification

L'hypothèse de lubrification (on considère des variations faibles de l'épaisseur selon la direction de l'écoulement \mathbf{x}) [7] permet de simplifier l'expression de la vitesse dans le film mince de lubrification. En effet, elle est dirigée parallèlement au plan en mouvement et varie perpendiculairement à ce plan. $L_z \ll L_x$, avec L_z et L_x les dimensions caractéristiques dans les directions z et x

$$\mathbf{u} = \begin{pmatrix} u_x(x, z) \\ u_z(x, z) \end{pmatrix}_{(\mathbf{x}, \mathbf{z})} \Rightarrow \mathbf{u} = \begin{pmatrix} u_x(h(x)) \\ 0 \end{pmatrix}_{(\mathbf{x}, \mathbf{z})}$$

H8 - Décomposition du tenseur des contraintes

On peut extraire du tenseur des contraintes la partie qui correspond aux contraintes de pressions, qui sont les seules présentes en l'absence de gradient de vitesse. Cette composante est purement diagonale (contraintes exclusivement normales) et isotrope (les coefficients diagonaux ont la même valeur); on décompose le tenseur sous la forme :

$$\overline{\overline{\sigma}} = -p\overline{\overline{\mathbf{I}}} + \overline{\overline{\sigma'}}$$

Le signe négatif apparaissant devant la pression du fluide p [$\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-2}$] traduit le fait que le fluide au repos est généralement en compression : la contrainte est donc de sens opposé au vecteur \mathbf{n} normal à la surface, qui pointe vers l'extérieur. $\overline{\overline{\sigma'}}$ est le tenseur des contraintes de viscosité (qui contient à la fois les contraintes tangentielles, et les contraintes normales qui peuvent intervenir au cours du mouvement d'un fluide compressible ou élastique). Ce tenseur est symétrique. L'équation de conditions aux limites pour la contrainte normale devient alors :

$$p_{\text{gaz}} - p_{\text{liquide}} + \mathbf{n} \cdot \overline{\overline{\sigma'}} \cdot \mathbf{n} = \gamma \kappa$$

avec : p_{gaz} et p_{liquide} les pressions dans les phases gazeuse et liquide.

H9 - Fluide newtonien

Pour le cas d'un fluide newtonien, on peut montrer que :

$$\overline{\sigma'} = 2\mu\overline{D}$$

avec : $\overline{D} = [(\nabla \otimes \mathbf{u}) + (\nabla \otimes \mathbf{u})^T]$

L'équation de conservation de la quantité de mouvement devient alors l'équation de Navier-Stokes :

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \rho (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = \rho \mathbf{f} - \nabla p + \mu \Delta \mathbf{u}$$

De plus $\mathbf{n} \cdot \overline{\sigma'} \cdot \mathbf{n} = 0$, l'équation de conditions aux limites pour la contrainte normale devient alors l'équation de Laplace :

$$p_{\text{gaz}}(x, z = h(x)) - p_{\text{liquide}}(x, z = h(x)) = \gamma \kappa$$

H10 - Régime laminaire

On se place à faibles vitesses [0 - 500 $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$] et nous sommes à l'échelle micrométrique [10 nm - 100 μm] (le film de lubrification est de l'ordre de 10 nm et la longueur de la bulle de l'ordre de 100 μm). Le nombre de Reynolds (qui représente le rapport des forces d'inertie et des forces visqueuses) est alors petit devant 1 pour des viscosités typiques allant de l'air 10^{-5} [Pa.s] à l'huile 1 [Pa.s] et des masses volumiques allant de l'air 1,225 [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$] à l'huile $2\cdot 10^3$ [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$].

Le nombre de Reynolds maximal associé vaut : $Re = \frac{\rho U_a L}{\mu}$
soit *A.N.* $Re_{\text{max}} = 1 \times 10^{-4}$.

Le régime peut être considéré comme laminaire, les effets non linéaires sont négligeables devant les effets visqueux :

$$\rho (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} \ll \mu \Delta \mathbf{u}$$

L'équation de conservation de la quantité de mouvement devient alors :

$$\rho_i \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} = \rho \mathbf{f} - \nabla p + \mu \Delta \mathbf{u}$$

H11 - Régime permanent

On s'intéresse ici au profil du ménisque dynamique en régime permanent. Il faut donc passer du repère laboratoire au repère associé à la bulle.

$$\frac{\partial}{\partial t} = 0$$

L'équation de conservation de la quantité de mouvement devient l'équation de Stokes :

$$\rho \mathbf{f} - \nabla p + \mu \Delta \mathbf{u} = \mathbf{0}$$

La projection sur les axes \mathbf{x} et \mathbf{z} donne les relations suivantes :

$$\begin{cases} \mathbf{x}/ : -\frac{\partial p}{\partial x} + \mu \frac{\partial^2 u_x(z)}{\partial z^2} = 0 \\ \mathbf{z}/ : -\rho g - \frac{\partial p}{\partial z} = 0 \end{cases}$$

H12 - Pression dans la bulle

L'équation de Laplace obtenue précédemment est pour $z = h(x)$:

$$p_{\text{gaz}}(x, z = h(x)) - p_{\text{liquide}}(x, z = h(x)) - \gamma \kappa = 0$$

La pression dans la bulle est considérée constante.

$$\frac{\partial p_{\text{gaz}}(x, z)}{\partial x} = 0$$

Finalement on obtient une simplification de la contrainte normale en $z = h(x)$:

$$\frac{\partial p_{\text{liquide}}(x, h(x))}{\partial x} = -\gamma \frac{\partial \kappa}{\partial x} - \kappa \frac{\partial \gamma}{\partial x}$$

H13 - Hydrostatique

La résolution de l'équation de conservation de la quantité de mouvement projetée sur l'axe \mathbf{z} permet d'obtenir la relation en tout point z , $p_{\text{liquide}}(x, z) = p_{\text{liquide}}(x, h(x)) + \rho g(h(x) - z)$ on obtient alors la contrainte normale :

$$\frac{\partial p_{\text{liquide}}(x, z)}{\partial x} = -\gamma \frac{\partial \kappa}{\partial x} - \kappa \frac{\partial \gamma}{\partial x} - \rho g \frac{\partial h(x)}{\partial x}$$

H14 - Faible nombre de Bond

En comparant le gradient de pression hydrostatique $\Delta p_{\text{hydro}} \sim \rho g R$ et capillaire $\Delta p_{\gamma} \sim \frac{\gamma}{R}$, sachant que la longueur capillaire vaut $l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}}$ et que $R \gg l_c$ alors :

$$\frac{\Delta p_{\text{hydro}}}{\Delta p_{\gamma}} \sim \frac{\rho g R^2}{\gamma}$$

$$Bo \sim \frac{\rho g R^2}{\gamma}$$

Pour notre système d'étude, les paramètres typiques sont : $\rho = 10^3$ [kg/m³], $g = 9.81$ [m/s²], $R = 200 \times 10^{-6}$ [m], $\gamma = 20 \times 10^{-3}$ [N/m].

$$\text{A.N. : } Bo = 0.020$$

Soit : $Bo \ll 1$

$$\text{d'où } \frac{\partial p_{\text{liquide}}}{\partial x}(x, z) \sim -\gamma \frac{\partial \kappa}{\partial x} - \kappa \frac{\partial \gamma}{\partial x}$$

H15 - Courbure simplifiée dans le ménisque dynamique

La courbure d'une interface s'écrit formellement :

$$\kappa = \frac{\partial^2 h / \partial x^2}{(1 + (\partial h / \partial x)^2)^{3/2}}$$

Dans la zone du ménisque dynamique, l'épaisseur varie lentement avec x , ce qui permet de négliger la dérivée première de l'épaisseur $h(x)$ du film devant 1 et obtenir une expression de la courbure simplifiée $\kappa \sim \frac{\partial^2 h(x)}{\partial x^2}$. La contrainte normale s'exprime alors :

$$\frac{\partial p_{\text{liquide}}(x)}{\partial x} = -\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} - \frac{\partial \gamma}{\partial x} \frac{\partial^2 h(x)}{\partial x^2}$$

H16 - Longueur caractéristique de gradient de tension superficielle négligeable devant la longueur du ménisque dynamique

Comparons les ordres de grandeurs de $\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3}$ et $\frac{\partial \gamma}{\partial x} \frac{\partial^2 h(x)}{\partial x^2}$:

$$\frac{\frac{\partial \gamma}{\partial x} \frac{\partial^2 h(x)}{\partial x^2}}{\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3}} \sim \frac{1}{\gamma} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \times R$$

avec : R le rayon du tube capillaire en verre dans lequel la bulle est confinée.

Les variations peuvent être locales. Dans notre cas, on considère une variation globale uniforme et constante de la tension superficielle le long de l'interface. Pour notre système d'étude, les paramètres typiques seront (*c.f.* CHAPITRE 3) : $\gamma = 20 \times 10^{-3}$ N/m, $\frac{\partial \gamma}{\partial x} = 1$ Pa, $R = 200^{-6}$ m.

$$\text{A.N. : } \frac{1}{\gamma} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \times R \simeq 0.01$$

ce qui permet d'affirmer que : $\frac{1}{\gamma} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \times R \ll 1$

$$\text{d'où } \frac{\partial p_{\text{liquide}}(x)}{\partial x} \simeq -\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \quad (2.1)$$

Cette condition est valable lorsque l'on est dans le référentiel de la bulle.

H17 - Dissipation visqueuse dans le film de lubrification

L'égalité des contraintes tangentielles à l'interface vaut :

$$\mu_{\text{gaz}} \frac{\partial u_{x\text{gaz}}}{\partial z}(h(x)) - \mu_{\text{liquide}} \frac{\partial u_{x\text{liquide}}}{\partial z}(h(x)) = -\frac{\partial \gamma}{\partial x}$$

A l'interface entre l'air et l'eau, la contrainte tangentielle est égale à la contrainte de Marangoni ($\sigma_{\text{Marangoni}} = \frac{\partial \gamma}{\partial x}$) qui induit une vitesse interfacial \mathbf{u}_{int} . La viscosité dynamique de l'air étant très faible devant celle de l'eau, et l'épaisseur du film de lubrification étant très faible devant l'épaisseur de gaz, on a $\left[\mu_{\text{gaz}} \frac{\partial u_{x\text{gaz}}(z)}{\partial z} \right] \ll \left[\mu_{\text{liquide}} \frac{\partial u_{x\text{liquide}}(z)}{\partial z} \right]$, soit la contrainte tangentielle simplifiée :

$$\left. \frac{\partial u_{x\text{liquide}}(x)}{\partial z} \right|_{h(x)} \simeq \frac{1}{\mu_{\text{liquide}}} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \quad (2.2)$$

H18 - Non glissement à la paroi solide

Nous nous plaçons dans le cas où les contraintes de viscosité entre un fluide et un solide interdisent le glissement du fluide par rapport à la surface solide. Les composantes tangentielles des vitesses du fluide et du solide doivent donc être égales, ce qui conduit à la relation (lorsque l'on se place dans le repère de la bulle) :

$$u_{x\text{liquide}}(0) = U_d \quad (2.3)$$

1.1.4 Expression de l'épaisseur du film de lubrification

L'égalité des courbures entre le ménisque dynamique en $-\infty$ et le ménisque statique donne la relation :

$$\begin{aligned} \kappa_{\text{statique}} &= \kappa_{\text{dynamique}} \\ \Leftrightarrow \frac{1}{R} &= \left. \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} \right|_{-\infty} \end{aligned}$$

On cherche désormais à déterminer l'expression de la courbure du ménisque dynamique au raccordement avec le ménisque statique (quand $x \rightarrow -\infty$).

L'équation de Laplace (2.1) permet d'exprimer un lien formel entre le champ de pression dans le film de lubrification et le profil de la bulle :

$$-\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} = \frac{\partial p_{\text{liquide}}(x)}{\partial x}$$

L'équation de Stokes lie le champ de pression au champ de vitesse dans le film de lubrification :

$$\frac{\partial p_{\text{liquide}}(x, z)}{\partial x} = \mu \frac{\partial^2 u_x(z)}{\partial z^2}$$

L'équation de Marangoni lie la condition limite de la vitesse dans le film de lubrification à la tension-superficielle à l'interface air/liquide :

$$\left. \frac{\partial u_{x\text{liquide}}(x)}{\partial z} \right|_{h(x)} = \frac{1}{\mu_{\text{liquide}}} \frac{\partial \gamma}{\partial x}$$

On passe par la vitesse dans le film de lubrification avec la condition limite imposée par la tension-superficielle à l'interface pour remonter au profil de la bulle.

1.1.5 Profil du ménisque dynamique

Vitesse du liquide dans le film de lubrification

En prenant en compte les différentes hypothèses, la conservation de la quantité de mouvement dans le film de lubrification, les conditions aux limites pour la contrainte normale et tangentielle, on peut récapituler l'ensemble des hypothèses par le système :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \mu \frac{\partial^2 u_x(z)}{\partial z^2} = \frac{\partial p_{\text{liquide}}}{\partial x}(x, z) & \text{équation de Stokes} \\ \frac{\partial p_{\text{liquide}}}{\partial x}(x) = -\gamma \frac{\partial^3 h}{\partial x^3}(x) & \text{équation de Laplace} \\ \frac{\partial u_{x\text{liquide}}}{\partial z}(h(x)) = \frac{1}{\mu_{\text{liquide}}} \frac{\partial \gamma}{\partial x} & \text{égalité des contraintes tangentielles - CL}_1 \\ u_{x\text{liquide}}(0) = U_d & \text{condition limite en vitesse - CL}_2 \end{array} \right.$$

Les équations de Stokes et de Laplace combinées donnent :

$$\frac{\partial^2 u_x(z)}{\partial z^2} = -\frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3}$$

Le déroulé du calcul [12] est détaillé en ANNEXE 8, on obtient :

$$u_x(z) = \frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \left(h(x)z - \frac{z^2}{2} \right) + \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z + U_d \quad (2.4)$$

Une fois la vitesse obtenue, on peut l'intégrer sur la hauteur du film de lubrification afin d'avoir l'expression du débit à deux dimensions de la phase externe.

Débit dans le film de lubrification

$$\begin{aligned}
Q_{2D}(x) &= \int_0^{h(x)} u_x(z) \partial z \\
&= \int_0^{h(x)} \left[\frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \left(h(x)z - \frac{z^2}{2} \right) + \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z + U_d \right] \partial z \\
&= \left[\frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \left(h(x) \frac{z^2}{2} - \frac{z^3}{6} \right) + \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \frac{z^2}{2} + U_d z \right]_0^{h(x)} \\
&= \frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \frac{h(x)^3}{3} + \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \frac{h(x)^2}{2} + U_d h(x)
\end{aligned}$$

On égalise ensuite le débit calculé pour la zone de ménisque dynamique à celui de la zone du film d'épaisseur uniforme.

1.1.6 Égalisation des débits dans le ménisque dynamique et le film d'épaisseur uniforme

$$Q_{2D}(x) = Q_{2D}(\infty)$$

$$\Leftrightarrow \frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \frac{h(x)^3}{3} + \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \frac{h(x)^2}{2} + U_d h(x) = \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \frac{h_\infty^2}{2} + U_d h_\infty$$

Cette équation différentielle permet de déterminer le profil de la bulle et de trouver la relation entre l'épaisseur du film de lubrification et le nombre capillaire :

$$\Leftrightarrow \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} = \frac{1}{h(x)^3} \left[\frac{3\mu U_d}{\gamma} (h_\infty - h(x)) + \frac{3}{2\gamma} \frac{\partial \gamma}{\partial x} (h_\infty^2 - h(x)^2) \right] \quad (2.5)$$

où l'on voit clairement deux contributions à l'écoulement : le premier terme (en U_d) provient de la mise en mouvement de la bulle par l'application d'une contrainte en volume (pression ou débit) et d'une contrainte surfacique (en $\frac{\partial \gamma}{\partial x}$).

Adimensionnalisation

En adimensionnant, on peut obtenir un profil unique du film de lubrification et ainsi généraliser notre étude à un profil adimensionné. Les détails de l'adimensionnalisation sont donnés en ANNEXE 6. Les paramètres de l'adimensionnalisation sont les suivants : $u = U_d \times u^*$, $h = h_\infty \times h^*$, $x = x_c \times x^*$, $z = h_\infty \times z^*$. Pour l'expression de l'épaisseur du film de lubrification :

$$\boxed{h_\infty = R \left(\frac{h_\infty}{x_c} \right)^2 \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty}} \quad (2.6)$$

La courbure adimensionnée est obtenue par résolution numérique de l'équation de lubrification. Pour la vitesse dans le film de lubrification :

$$\begin{aligned} U_d u_x^* &= \frac{\gamma h_\infty^3}{\mu x_c^3} \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} \left(h^* z^* - \frac{z^{*2}}{2} \right) + \frac{h_\infty}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z^* + U_d \\ \Leftrightarrow u_x^* &= \frac{\gamma}{\mu U_d} \left(\frac{h_\infty}{x_c} \right)^3 \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} \left(h^* z^* - \frac{z^{*2}}{2} \right) + \frac{h_\infty}{\mu U_d} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z^* + 1 \end{aligned} \quad (2.7)$$

Pour l'équation différentielle du profil du film de lubrification :

$$\begin{aligned} \frac{h_\infty}{x_c^3} \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} &= \frac{1}{h_\infty^3} \frac{1}{h^{*3}} \left[\frac{3\mu U_d h_\infty}{\gamma} (1 - h^*) + \frac{3 \frac{\partial \gamma}{\partial x} h_\infty^2}{2\gamma} (1 - h^{*2}) \right] \\ \boxed{\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} &= \frac{1 - h^*}{h^{*3}} \left[\frac{3\mu U_d}{\gamma} \left(\frac{x_c}{h_\infty} \right)^3 + \frac{3}{2} \frac{\frac{\partial \gamma}{\partial x} h_\infty}{\gamma} \left(\frac{x_c}{h_\infty} \right)^3 (1 + h^*) \right]} \end{aligned} \quad (2.8)$$

On retrouve ici l'équation 8 de Mazouchi *et al.* [53].

1.2 Bretherton

Nous présentons ici les résultats obtenus par Bretherton [12]. Dans ce cas, la bulle est mise en mouvement en mettant la phase continue en écoulement. La tension superficielle est constante d'où $\frac{\partial \gamma}{\partial x} = 0$.

$$\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1 - h^*}{h^{*3}} \frac{3\mu U_d}{\gamma} \left(\frac{x_c}{h_\infty} \right)^3 \quad \Leftrightarrow \quad \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1 - h^*}{h^{*3}} 3Ca \left(\frac{x_c}{h_\infty} \right)^3$$

La longueur caractéristique x_c est alors donnée par :

$$3Ca \left(\frac{x_c^{\text{Breth}}}{h_\infty} \right)^3 = 1 \quad \Leftrightarrow \quad \frac{x_c^{\text{Breth}}}{h_\infty} = \frac{1}{(3Ca)^{1/3}} \quad (2.9)$$

L'équation différentielle devient : $\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1 - h^*}{h^{*3}}$

La vitesse dans le film de lubrification (2.4) devient : $u_x^* = 3 \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} \left(h^* z^* - \frac{z^{*2}}{2} \right) + 1$

La résolution numérique permet d'obtenir :

$$\frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty} = 0.643 \quad (2.10)$$

Finalement l'équation (2.6) permet d'obtenir la relation :

$$\boxed{h_\infty^{\text{Bretherton}} = 0.643 R (3Ca)^{2/3}} \quad (2.11)$$

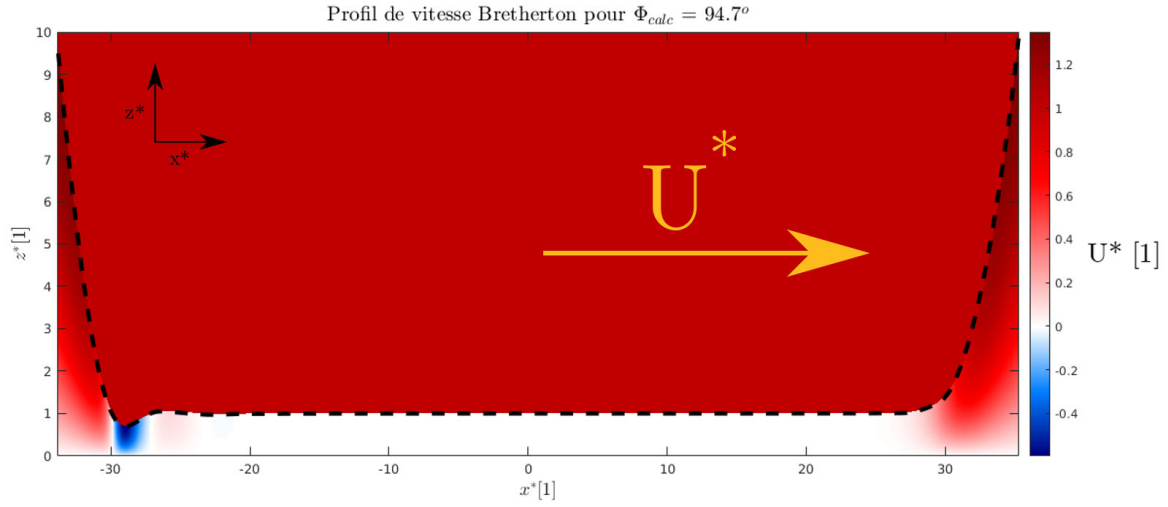


FIGURE 2.4: Profil de vitesse adimensionné dans le film de lubrification pour le cas Bretherton dans le repère du laboratoire. D'après l'hypothèse de lubrification, l'écoulement s'effectue seulement sur la direction \mathbf{x}^* .

Cette représentation adimensionnée, a l'intérêt d'englober les expériences pour tous les nombres capillaires (avec l'hypothèse que $Ca << 1$). Ainsi on a accès au profil réel de la bulle (après redimensionnement du profil adimensionné de la FIGURE 2.4), au champ de vitesse dans le film de lubrification. La relation entre la vitesse moyenne de la bulle U_d et la vitesse moyenne du liquide U_f en fonction du nombre capillaire Ca est obtenue en effectuant une conservation du volume.

Conservation du volume

$$\begin{aligned}
 Q_{\text{liquide}} &= Q_{\text{air}} \\
 \Leftrightarrow \int_{S_{\text{film}}} u_{\text{liquide}} dS &= \int_{S_{\text{bulle}}} u_{\text{air}} dS \\
 \Leftrightarrow \pi(R - h_\infty)^2 U_d &= \pi R^2 U_f \\
 \Leftrightarrow U_d &= U_f \left(1 - \frac{h_\infty}{R}\right)^{-2} \\
 \Leftrightarrow \frac{U_d}{U_f} &\simeq 1 + 2\frac{h_\infty}{R} \quad (\text{car } R \gg h_\infty) \quad (2.12) \\
 \Leftrightarrow \frac{U_d}{U_f} &\simeq 1 + 1.3(3Ca)^{2/3}
 \end{aligned}$$

$$\Leftrightarrow \frac{U_d}{U_f} \simeq 1 + 2.7 \times Ca^{2/3}$$

Cette relation permet de remonter à la vitesse moyenne du fluide de la phase externe, connaissant la vitesse de la bulle et le nombre capillaire du système étudié. On remarque que la bulle se déplace plus rapidement que le liquide (en vitesse moyenne).

1.3 Mazouchi *et al.*

Nous présentons ici les résultats obtenus par Mazouchi *et al.* [53]. Dans ce cas, la bulle est mise en mouvement par l'application d'une contrainte à l'interface (contrainte thermocapillaire). La tension superficielle évolue linéairement avec la position x telle que $\gamma = \frac{\partial\gamma}{\partial x}x + \gamma_0$.

Ils font l'hypothèse que la variation de tension superficielle entre l'avant et l'arrière de la bulle est négligeable devant la tension superficielle à température ambiante. Ce qui revient à écrire $\frac{\partial\gamma}{\partial x}x \ll \gamma_0$, soit $\gamma \sim \gamma_0$. L'équation (2.8) devient alors :

$$\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1 - h^*}{h^{*3}} \left[\frac{3\mu U_d}{\gamma_0} \left(\frac{x_c}{h_\infty} \right)^3 + \frac{3\frac{\partial\gamma}{\partial x}h_\infty}{2\gamma_0} \left(\frac{x_c}{h_\infty} \right)^3 (1 + h^*) \right]$$

Mazouchi *et al.* résolvent le même problème, avec une adimensionnalisation différente, mais uniquement pour $U_d \times \frac{\partial\gamma}{\partial x} > 0$. Nous avons étendu l'étude aux cas $U_d \times \frac{\partial\gamma}{\partial x} < 0$.

La longueur caractéristique x_c choisie vaut :

$$\frac{3\frac{\partial\gamma}{\partial x}h_\infty}{2\gamma_0} \left(\frac{x_c}{h_\infty} \right)^3 = 1 \quad \Leftrightarrow \quad \frac{h_\infty}{x_c} = \left(\frac{3\frac{\partial\gamma}{\partial x}h_\infty}{2\gamma_0} \right)^{1/3}$$

L'équation différentielle devient :

$$\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1 - h^*}{h^{*3}} \left[\frac{2\mu U_d}{\frac{\partial\gamma}{\partial x}h_\infty} + (1 + h^*) \right]$$

On fait l'hypothèse que $2\mu U_d \ll \frac{\partial\gamma}{\partial x}h_\infty$, car le fluide externe est laissé au repos (il n'y a pas de mise en mouvement par contrainte volumique). On peut réécrire cette inéquation en vitesse, où l'on compare la vitesse de la bulle avec la vitesse moyenne U_m (*c.f.* équation (2.13)) générée par un écoulement de Couette dans le film de lubrification par le gradient thermique : $U_d \ll U_m = \frac{\frac{\partial\gamma}{\partial x}h_\infty}{2\mu}$. Ceci est une hypothèse forte, mais nécessaire pour pouvoir résoudre l'équation différentielle. En effet par conservation du volume, on a U_m et U_d du même ordre de grandeur.

Finalement les hypothèses se résument à :

$$\frac{2\mu U_d}{h_\infty} \ll \frac{\partial\gamma}{\partial x} \ll \frac{\gamma_0}{x} \sim \frac{\gamma_0}{3R}$$

Pour notre système d'étude, les paramètres typiques sont : $\mu = 10^{-3}$ [Pa.s], $U_d = 10 \times 10^{-6}$ [m.s⁻¹], $h_\infty = 200 \times 10^{-9}$ [m], $\frac{\partial\gamma}{\partial x} = 1$ [Pa], $\gamma_0 = 20 \times 10^{-3}$ [N.m⁻¹], $R = 200 \times 10^{-6}$ [m].

$$\text{A.N. : } \frac{2\mu U_d}{h_\infty} = 0.1; \quad \frac{\partial\gamma}{\partial x} = 1; \quad \frac{\gamma_0}{3R} = 33$$

L'équation différentielle se simplifie alors en :

$$\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1 - h^{*2}}{h^{*3}}$$

La vitesse dans le film de lubrification (2.4) devient :

$$u_x^* = \frac{\frac{\partial\gamma}{\partial x} h_\infty}{\mu U_d} \left[\frac{3}{2} \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} \left(h^* z^* - \frac{z^{*2}}{2} \right) + z^* \right] + 1$$

La résolution numérique permet d'obtenir : $\frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty} = 1.817$

Finalement, l'équation (2.6) permet d'obtenir la relation :

$$h_\infty = 1.817R \left(\frac{3 \frac{\partial\gamma}{\partial x} h_\infty}{2\gamma_0} \right)^{2/3}$$

Cette expression dépend du gradient de tension superficielle $\frac{\partial\gamma}{\partial x}$. Afin de donner une représentation similaire à la relation de Bretherton (2.11) $h_\infty = 0.643R(3Ca)^{2/3}$, on cherchera à exprimer $\frac{\partial\gamma}{\partial x}$ en fonction du nombre capillaire Ca . Cette relation est la relation donnée par Mazouchi *et al.* [53] (ce que nous détaillons ci-dessous).

1.3.1 Relation de Mazouchi

On se place dans le référentiel du laboratoire, on a alors une vitesse moyenne de la bulle U_d et une vitesse moyenne dans le film de lubrification U_m (*c.f.* FIGURE 2.5).

Détermination de U_m

Un gradient de tension superficielle conduit à une contrainte interfaciale (effet Marangoni) σ_{Ma} qui génère un écoulement à l'interface dont la vitesse interfaciale est donnée par l'égalité des contraintes tangentielles :

$$\frac{\partial u_x}{\partial z}(h_\infty) = \frac{1}{\mu} \frac{\partial\gamma}{\partial x}$$

Cette vitesse interfaciale induit un cisaillement dans le film de lubrification $u_x(z) = \frac{1}{\mu} \frac{\partial\gamma}{\partial x} z$. En l'intégrant sur l'épaisseur du film de lubrification (*c.f.* FIGURE 2.6), on obtient la vitesse moyenne U_m .

$$U_m = \frac{1}{h_\infty} \int_0^{h_\infty} u_{\text{liquide}}(z) dz$$

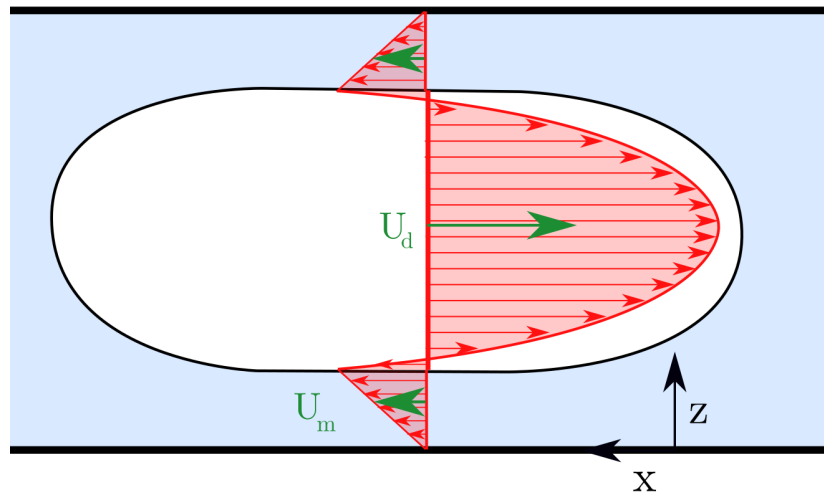


FIGURE 2.5: Représentation schématique du flux volumique (volume déplacé) dans le référentiel du laboratoire. Avec représenté en rouge le champ de vitesse et en vert la vitesse moyenne de la phase continue U_m et de la bulle U_d .

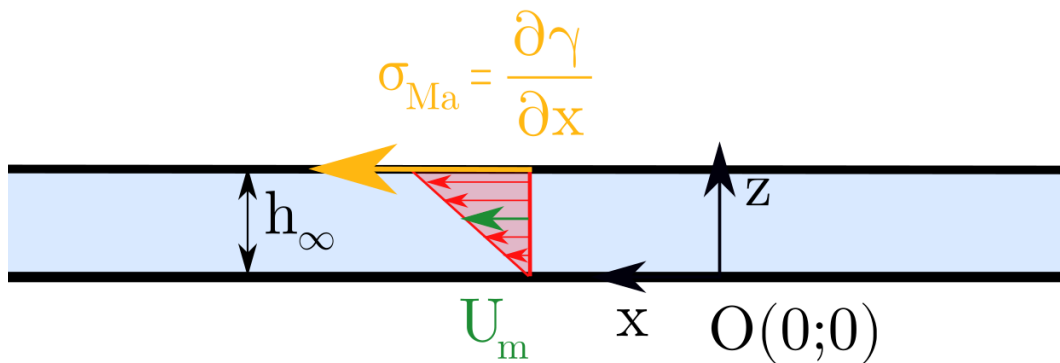


FIGURE 2.6: Schéma de U_m dans le film de lubrification.

$$\Leftrightarrow U_m = \frac{1}{h_\infty} \int_0^{h_\infty} \left(\frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z \right) dz$$

$$\boxed{U_m = \frac{\frac{\partial \gamma}{\partial x} h_\infty}{2\mu}} \quad (2.13)$$

Conservation du volume

On effectue la conservation du flux (volume déplacé) dans le film fin avec le débit d'air dans la bulle. On la réalise dans la zone d'épaisseur du film uniforme.

$$-Q_{\text{air}} = Q_{\text{liquide}}$$

$$\begin{aligned}
&\Leftrightarrow - \int_{S_{bulle}} u_{air} dS = \int_{S_{film}} u_{liquide} dS \\
&\Leftrightarrow -\pi R^2 U_d = U_m \times 2\pi R h_\infty \quad \text{car : } R \gg h_\infty \\
&\Leftrightarrow -\pi R^2 U_d = \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \frac{h_\infty}{2} \times 2\pi R h_\infty \\
&\Leftrightarrow -U_d = \frac{\partial \gamma}{\partial x} \frac{h_\infty^2}{\mu R} \\
&\Leftrightarrow \frac{\partial \gamma}{\partial x} = -\frac{\mu U_d R}{h_\infty^2} \tag{2.14}
\end{aligned}$$

avec l'expression du nombre capillaire $Ca = \frac{\mu U_d}{\gamma_0}$, on peut exprimer le nombre capillaire en fonction des paramètres de l'étude, soit :

$$Ca = -\frac{\frac{\partial \gamma}{\partial x} h_\infty^2}{R \gamma_0}$$

On peut alors réécrire l'épaisseur du film de lubrification $h_\infty = 1.817R \left(\frac{3 \frac{\partial \gamma}{\partial x} h_\infty}{2 \gamma_0} \right)^{2/3}$ en :

$$\boxed{h_\infty^{\text{Mazouchi}} = 1.08R \times (3Ca)^{2/5}} \tag{2.15}$$

Et la vitesse adimensionnée : $u_x^* = \frac{R}{h_\infty} \left[\frac{3}{2} \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} \left(h^* z^* - \frac{z^{*2}}{2} \right) + z^* \right] + 1$

$$u_x^* = \frac{1}{1.08(3Ca)^{2/5}} \left[\frac{3}{2} \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} \left(h^* z^* - \frac{z^{*2}}{2} \right) + z^* \right] + 1$$

Nous avons apporté ici une nouvelle adimensionnalisation, permettant d'obtenir un profil adimensionné unique qui rend compte de l'ensemble des cas à différents nombres capillaires (dans la limite de $Ca \ll 1$). On a donc accès au profil réel de la bulle (après redimensionnement du profil adimensionné de la FIGURE 2.7), au champ de vitesse dans le film de lubrification et au rapport entre la vitesse moyenne de la bulle U_d et la vitesse moyenne du liquide dans le film de lubrification U_m (que nous appellerons la mobilité de Mazouchi) en fonction de l'épaisseur du film de lubrification h_∞ (avec la conservation en volume).

$$\frac{U_d}{U_m} \simeq -\frac{2h_\infty}{R}$$

Soit finalement avec la relation (2.15) $h_\infty = 1.08R \times (3Ca)^{2/5}$, on peut exprimer cette mobilité en fonction du nombre capillaire :

$$\frac{U_d}{U_m} \simeq -4.5Ca^{2/5}$$

Connaissant la vitesse de la bulle U_d et le nombre capillaire Ca du système étudié, on peut remonter à la vitesse moyenne du fluide dans le film de lubrification U_m .

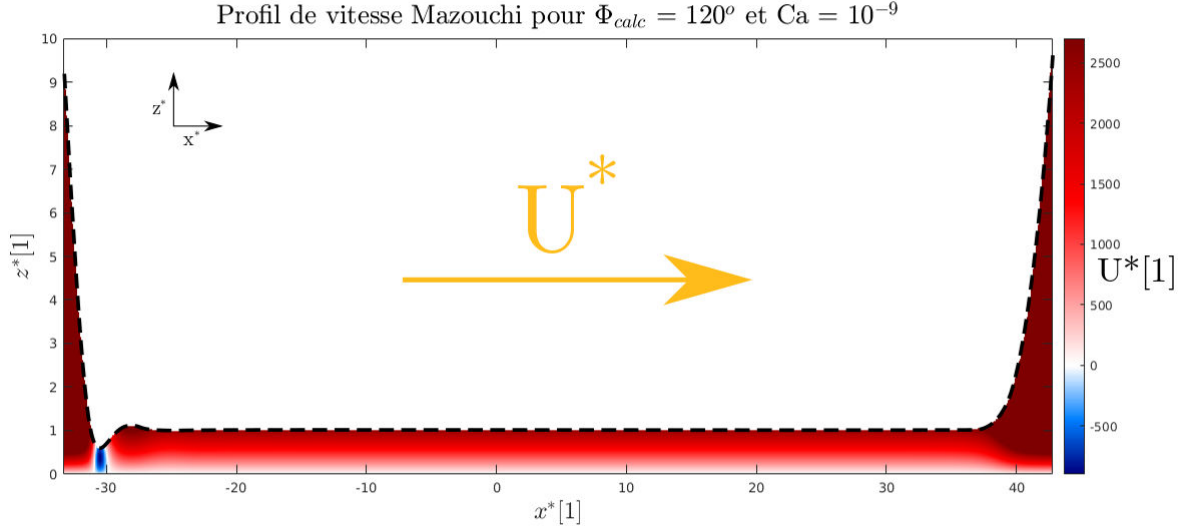


FIGURE 2.7: Profil de vitesse adimensionné dans le film de lubrification pour le cas Mazouchi dans le repère du laboratoire. Le paramètre Φ_{calc} étant un paramètre de la résolution du profil arrière de la bulle dont le détail de résolution est donné en ANNEXE 9.

2 Régime mixte

Dans les SECTIONS précédentes, on a vu les cas de mise en mouvement d'une bulle par contrainte volumique (contrainte de pression) ou par contrainte surfacique (contrainte thermocapillaire). Dans cette SECTION, on va s'intéresser à combiner ces deux mises en mouvement pour obtenir un modèle permettant d'étudier l'influence des contraintes interfaciales (qui peuvent être d'origine solutocapillaire ou thermocapillaire en négligeant l'élasticité et la viscosité de surface de l'interface) sur la dynamique de bulles confinées dans un système micrométrique. Cette étude se base sur l'étude de Mazouchi *et al.* [53] (qui étudie les cas $U_d \times \frac{\partial \gamma}{\partial x} > 0$), que nous avons étendu aux cas $U_d \times \frac{\partial \gamma}{\partial x} < 0$.

On étudie la relation entre la vitesse moyenne du fluide externe U_f et la vitesse moyenne de la goutte U_d en fonction de l'importance des contraintes surfaciques par rapport aux contraintes volumiques, ce rapport est évalué par le nombre de Marangoni en vitesse défini comme le rapport entre la vitesse moyenne induite par les contraintes tangentielles de tension superficielle $U_m = \frac{\frac{\partial \gamma}{\partial x} h_\infty}{2\mu}$ et la vitesse de la bulle U_d , on obtient alors :

$$Ma = \frac{U_m}{U_d} \quad (\text{c'est l'inverse de la mobilité de Mazouchi } \frac{U_d}{U_m})$$

$$Ma = \frac{\frac{\partial \gamma}{\partial x} h_\infty}{2\mu U_d}$$

avec : $\frac{\partial \gamma}{\partial x}$ le gradient de tension superficielle à l'interface de la bulle, h_∞ l'épaisseur du film de lubrification, μ la viscosité dynamique de la phase externe et U_d la vitesse de la bulle.

Si le nombre de Marangoni est élevé (soit $|Ma = \frac{U_m}{U_d}| \gg 1$), la vitesse moyenne dans le film de lubrification est prépondérante devant la vitesse moyenne de la bulle. C'est le cas limite de Mazouchi *et al.*, où l'on voit qu'une vitesse importante U_m génère une faible vitesse U_d . On peut expliquer ce résultat par l'absence de gouttière de recirculation de fluide dans le canal (*c.f.* FIGURE 2.8, où l'on compare la coupe d'un tube capillaire à section circulaire à celle d'une section rectangulaire) qui augmente la résistance hydraulique de la phase externe [6], limitant la vitesse de la bulle U_d .

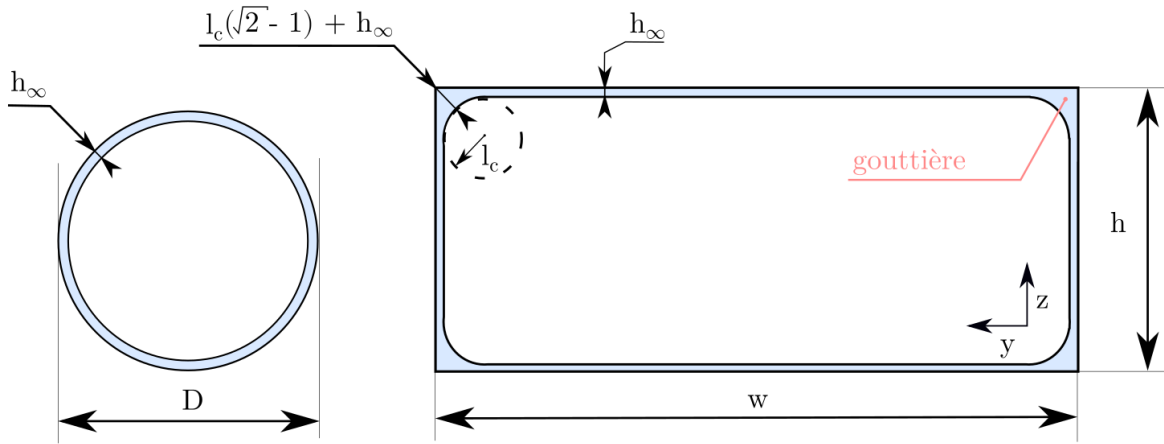


FIGURE 2.8: Vue en coupe d'un tube capillaire à section circulaire à gauche (avec $h_\infty \ll D$) et à section rectangulaire à droite (avec $h_\infty \ll l_c \ll h < w$). Avec h_∞ l'épaisseur du film de lubrification, $l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}}$ la longueur capillaire définissant la courbure de l'interface au niveau des angles droits de la section, D le diamètre du tube capillaire de gauche, w la largeur et h la hauteur du tube capillaire de droite.

Si le nombre de Marangoni est faible (soit $|Ma = \frac{U_m}{U_d}| \ll 1$), la vitesse moyenne dans le film de lubrification est négligeable devant la vitesse moyenne de la bulle. C'est le cas limite Bretherton.

- $Ma = \frac{U_m}{U_d} = 0$, la vitesse moyenne dans le film de lubrification est nulle. Il n'y a pas de contrainte interfaciale, c'est le cas Bretherton ;
- $Ma = \frac{U_m}{U_d} < 0$, la vitesse moyenne dans le film de lubrification et la vitesse de la bulle sont de signes opposés. La contrainte interfaciale est de signe opposé à la contrainte visqueuse ;
- $Ma = \frac{U_m}{U_d} > 0$, la vitesse moyenne dans le film de lubrification et la vitesse de la bulle sont de mêmes signes. La contrainte interfaciale est de même signe que la contrainte visqueuse.

Pour obtenir la relation entre U_f et U_d , on effectue une conservation du volume.

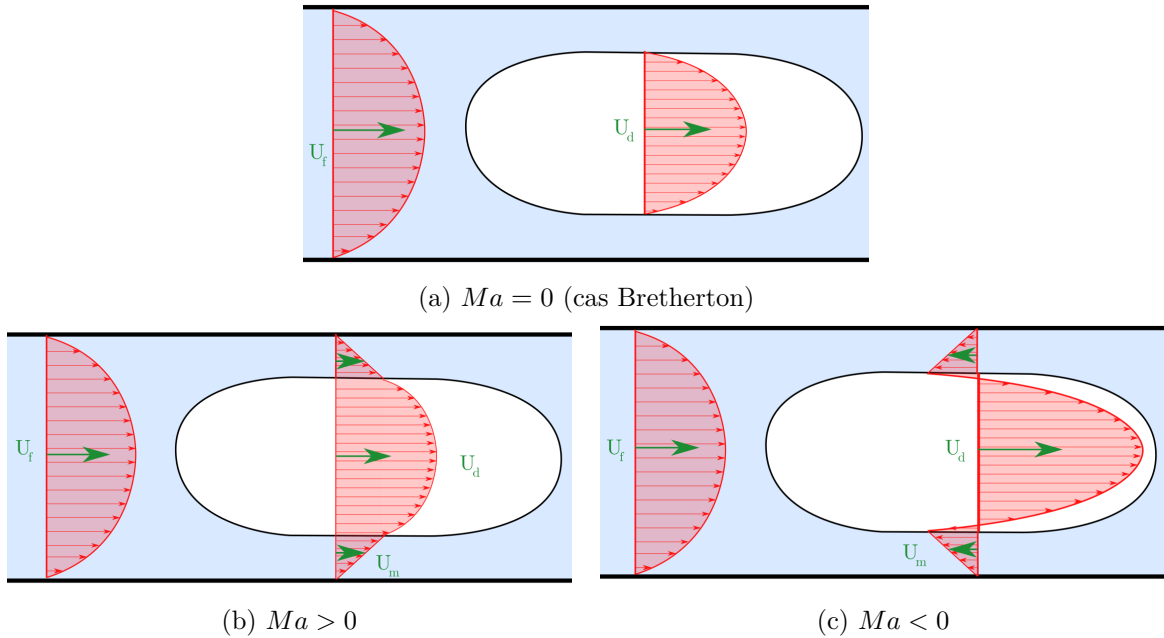


FIGURE 2.9: Schéma représentant les champs de vitesses - avec $Ma = \frac{\partial \gamma}{\partial x} h_\infty}{2\mu U_d}$ et représenté en rouge le champ de vitesse réelle et en vert la vitesse moyenne de la phase continue U_m et de la bulle U_d .

2.1 Conservation du volume

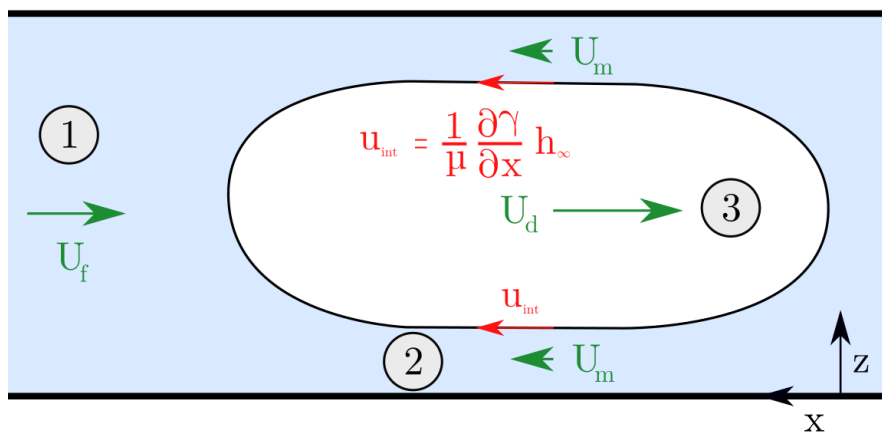


FIGURE 2.10: Différentes zones de conservation du débit. La zone 1, étant loin de la bulle (de vitesse moyenne U_f), la zone 2 dans le film de lubrification au niveau du film d'épaisseur uniforme (de vitesse moyenne U_m) et la zone 3 dans la bulle au niveau du film d'épaisseur uniforme (de vitesse moyenne U_d).

D'après la FIGURE 2.10, on définit $Q_1 = \pi R^2 U_f$, $Q_2 = U_m \times 2\pi R$ et $Q_3 = \pi (R - h_\infty)^2 U_d$, soit la conservation du débit suivante :

$$\pi R^2 U_f = \pi (R - h_\infty)^2 U_d + 2\pi R h_\infty U_m$$

$$U_d = U_f \left(1 - \frac{h_\infty}{R}\right)^{-2} - \frac{2\pi R h_\infty U_m}{\pi (R - h_\infty)^2} \quad \text{avec } U_m = \frac{h_\infty \frac{\partial \gamma}{\partial x}}{2\mu}, \text{ la vitesse moyenne dans le film plat.}$$

On choisit de représenter $\frac{U_d}{U_f}$ et non $\frac{U_d}{U_m}$, qui est utilisée pour les cas d'étude s'apparentant à l'analyse de Bretherton.

$$U_d = U_f \left(1 - \frac{h_\infty}{R}\right)^{-2} - \frac{R \frac{\partial \gamma}{\partial x}}{\mu} \left(\frac{R}{h_\infty} - 1\right)^{-2}$$

$$U_d \sim U_f \left(1 - \frac{h_\infty}{R}\right)^{-2} - \frac{\frac{\partial \gamma}{\partial x} h_\infty}{2\mu U_d} 2U_d \left(\frac{h_\infty}{R}\right) \quad \text{car } R \gg h_\infty$$

$$\frac{U_d}{U_f} \sim \frac{1 + 2\frac{h_\infty}{R}}{1 + Ma \times 2\frac{h_\infty}{R}} \quad \text{avec } Ma = \frac{U_m}{U_d} = \frac{\frac{\partial \gamma}{\partial x} h_\infty}{2\mu U_d} \quad (2.16)$$

Nous avons $\frac{U_d}{U_f} = f\left(\frac{h_\infty}{R}, Ma\right)$, il faut donc que l'on trouve une expression de $\frac{h_\infty}{R}$ comme pour le CHAPITRE 2.

2.2 Détermination de $\frac{h_\infty}{R}$

On a l'équation (2.6) qui est indépendante des conditions limites :

$$\frac{h_\infty}{R} = \left(\frac{h_\infty}{x_c}\right)^2 \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty}$$

pour obtenir $\frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty}$, il faut résoudre l'équation (2.8) qui prend en compte les deux contributions au déplacement de la bulle (surfactive et volumique) :

$$\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1 - h^*}{h^{*3}} \left[\frac{3\mu U_d}{\gamma} \left(\frac{x_c}{h_\infty}\right)^3 + \frac{3}{2} \frac{\frac{\partial \gamma}{\partial x} h_\infty}{\gamma} \left(\frac{x_c}{h_\infty}\right)^3 (1 + h^*) \right]$$

Résolution numérique de $\frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty}$

On prend la même adimensionnalisation que pour celle du cas Bretherton.

$$\Leftrightarrow \frac{3\mu U_d}{\gamma} \left(\frac{x_c}{h_\infty}\right)^3 = 1 \quad \text{soit } \frac{x_c}{h_\infty} = \left(\frac{\gamma}{3\mu U_d}\right)^{1/3}$$

$$(2.8) \text{ devient alors : } \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1-h^*}{h^{*3}} \left[1 + \frac{3\left(\frac{\partial\gamma}{\partial x} h_\infty\right)^2}{2\gamma} \frac{\gamma}{3\mu U_d} (1+h^*) \right]$$

$$\Leftrightarrow \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1-h^*}{h^{*3}} \left[1 + \frac{\frac{\partial\gamma}{\partial x} h_\infty}{2\mu U_d} (1+h^*) \right]$$

Les hypothèses simplificatrices vont dépendre du paramètre $\frac{\frac{\partial\gamma}{\partial x} h_\infty}{2\mu U_d}$.

Dans la suite des calculs on prendra une tension superficielle qui évolue linéairement selon la direction \mathbf{x} , soit : $\gamma = \frac{\partial\gamma}{\partial x} x + \gamma_0$, avec un $\frac{\partial\gamma}{\partial x}$ constant le long de la bulle, ce qui sera le cas de nos expériences.

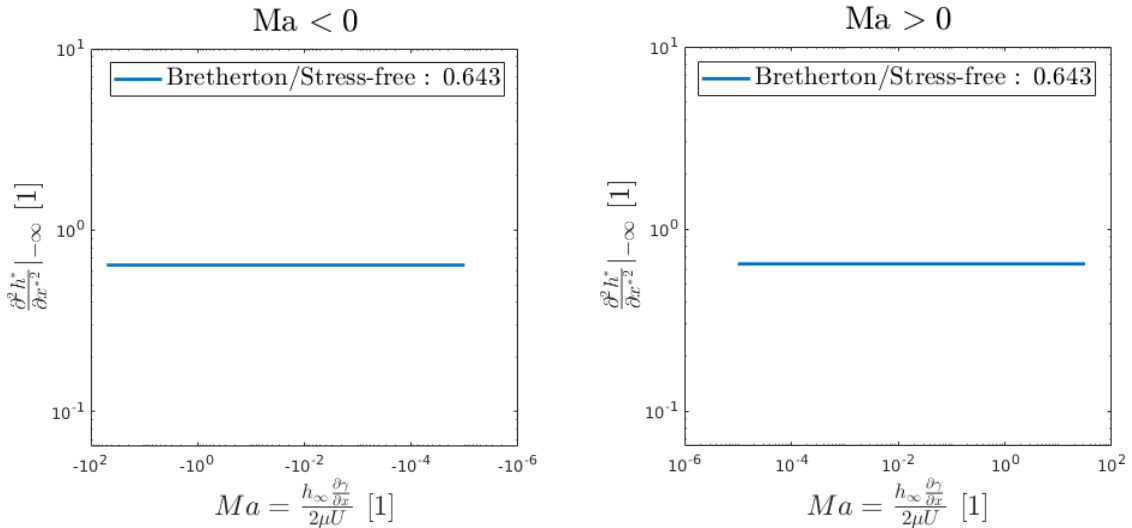
$$\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1-h^*}{h^{*3}} [1 + Ma(1+h^*)] \quad (2.17)$$

$|Ma| \ll 1$ - **cas limite Bretherton**

L'équation (2.17) peut être simplifiée en :

$$\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1-h^*}{h^{*3}}$$

On retombe sur la résolution numérique de Bretherton (2.9) qui donne : $\left. \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \right|_{-\infty} = 0.643$



(a) Contraintes motrices de signe opposé

(b) Contraintes motrices de même signe

FIGURE 2.11: Résolution numérique de la courbure adimensionnée, effectuée sous MATLAB

Et on retrouve bien la relation (2.11) : $\frac{h_\infty}{R} = 0.643(3Ca)^{2/3}$

$|Ma| \gg 1$ - **cas limite thermocapillaire**

L'équation (2.17) peut être simplifiée en :

$$\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = Ma \frac{1 - h^{*2}}{h^{*3}}$$

La résolution numérique a été effectuée pour différents Ma , on obtient alors (*c.f.* FIGURE 2.12) :

$$\left. \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \right|_{-\infty} = 1.76 \times Ma^{2/3}$$

La courbure adimensionnée augmente donc avec le nombre de Marangoni.

Influence du nombre de Marangoni sur $\left. \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \right|_{-\infty}$

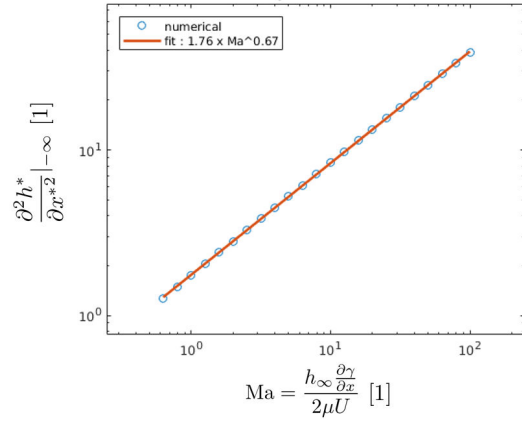
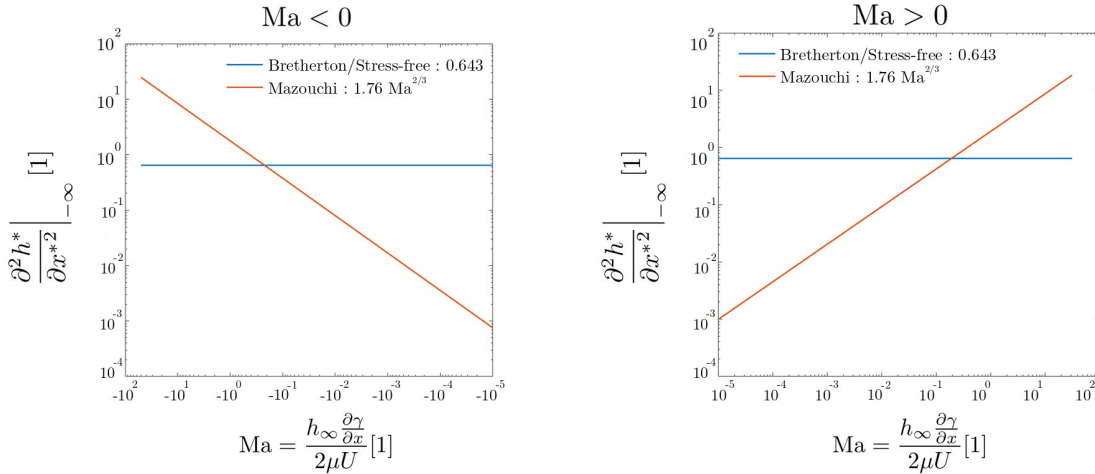


FIGURE 2.12: Résolution numérique.



(a) Contraintes motrices de signe opposé.

(b) Contraintes motrices de même signe.

FIGURE 2.13: Résolution numérique de la courbure adimensionnée, effectuée sous MATLAB.

Ce qui donne la relation : $\frac{h_\infty}{R} = 1.76 Ma^{2/3} (3Ca)^{2/3}$

Or, $Ma = \frac{h_\infty \frac{\partial \gamma}{\partial x}}{2\mu U_d}$, d'où : $\frac{h_\infty}{R} = 1.76 \left(\frac{h_\infty \frac{\partial \gamma}{\partial x}}{2\mu U_d} \right)^{2/3} (3Ca)^{2/3}$

$$\Leftrightarrow \frac{h_\infty^{1/3}}{R} = 1.76 \left(\frac{\partial \gamma}{\partial x} \right)^{2/3} (3Ca)^{2/3}$$

$$\Leftrightarrow \frac{h_\infty}{R^3} = 5.45 \left(\frac{\partial \gamma}{\partial x} \right)^2 (3Ca)^2$$

La condition de conservation du débit de Mazouchi (2.14) $\frac{\partial \gamma}{\partial x} = \frac{\mu U_d R}{h_\infty^2}$ peut être utilisée dans l'hypothèse où $Ma \gg 1$. Donc $\frac{\frac{\partial \gamma}{\partial x}}{2\mu U_d} = \frac{R}{2h_\infty^2}$.

$$\Leftrightarrow \frac{h_\infty}{R^3} = 5.45 \left(\frac{R}{2h_\infty^2} \right)^2 (3Ca)^2$$

$$\Leftrightarrow \left(\frac{h_\infty}{R} \right)^5 = 1.36(3Ca)^2$$

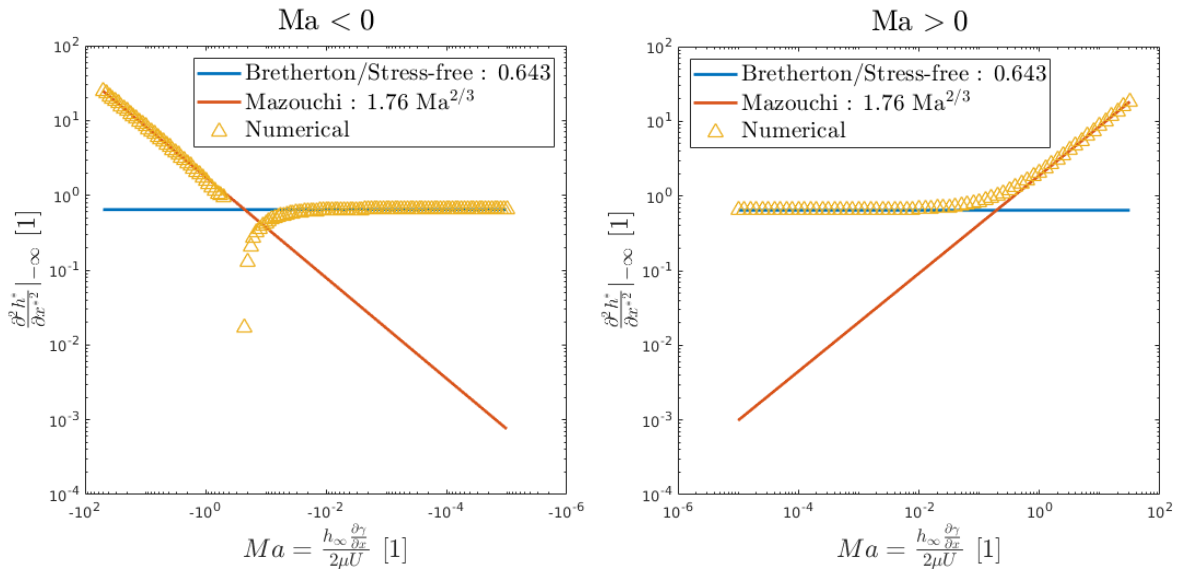
$$\frac{h_\infty}{R} = 1.06(3Ca)^{2/5}$$

Cette relation est vraie uniquement pour les nombres de Marangoni élevés ($Ma \gg 1$).

On retrouve presque le même coefficient (1.06 au lieu de 1.08, cela doit être dû aux erreurs de la résolution numérique) et la même dépendance en $Ca^{2/5}$ que la relation (2.15).

Cas général

La résolution numérique de l'équation (2.17) $\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1-h^*}{h^{*3}} [1 + Ma(1+h^*)]$ donne :



(a) Contraintes motrices de signe opposé.

(b) Contraintes motrices de même signe.

FIGURE 2.14: Résolution numérique de la courbure adimensionnée, effectuée sous MATLAB. La courbe de la FIGURE 2.14 (b) est celle trouvée par Mazouchi *et al.* dans la FIGURE 3 de son article [53]. La courbe de la FIGURE 2.14 (a) est l'extension pour les cas où $Ma < 0$.

Une fonction permettant de modéliser le résultat numérique (représenté en FIGURE 2.14) tend vers une constante à faible nombre de Marangoni et croît en loi de puissance pour

des nombres de Marangoni élevés. Le raccordement de la courbure adimensionnée entre le ménisque dynamique (dans le quel nous écrivons les équations) et le ménisque statique est de la forme :

$$\left. \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \right|_{-\infty} = C_1 \times |1 + C_2 Ma|^{C_3}$$

On trouve les paramètres de “fit” suivant :

- $C_1 = 0.643$
- $C_2 = 4.63$
- $C_3 = 2/3$

On a alors une expression pour la valeur de la courbure adimensionnée au raccordement du ménisque dynamique au ménisque statique (*c.f.* FIGURE 2.15) :

$$\left. \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \right|_{-\infty} = 0.643 \times |1 + 4.63 Ma|^{2/3}$$

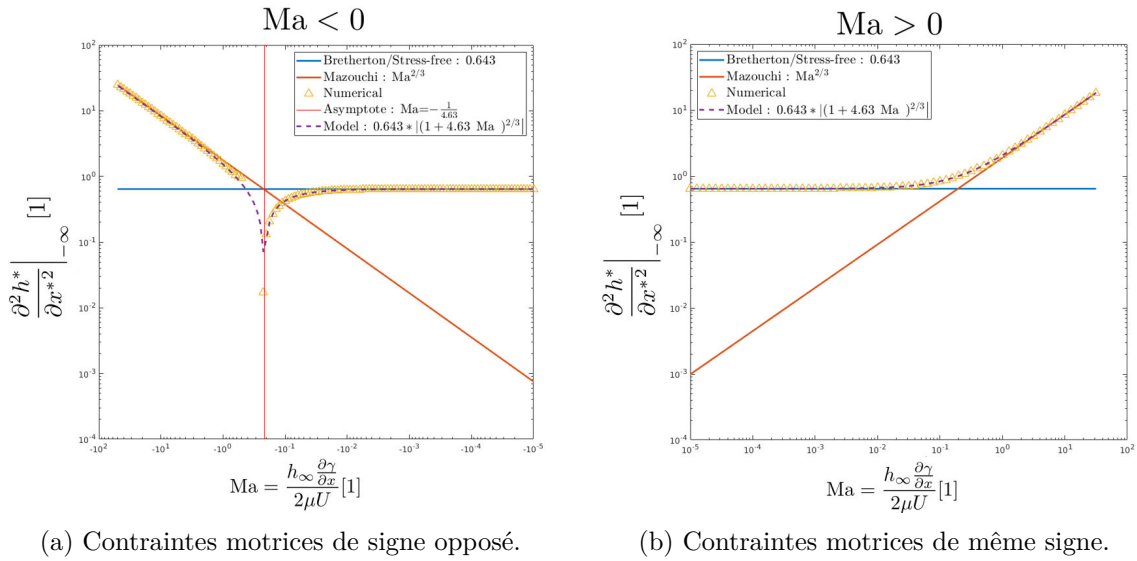


FIGURE 2.15: Résolution numérique de la courbure adimensionnée, effectuée sous MATLAB. La courbe de la FIGURE 2.15 (b) est celle trouvée par Mazouchi *et al.* dans la FIGURE 3 de son article [53]. La courbe de la FIGURE 2.15 (a) est l’extension pour les cas où $Ma < 0$.

En injectant ce résultat dans l’équation (2.6) $h_\infty = R \left(\frac{h_\infty}{x_c} \right)^2 \left. \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \right|_{-\infty}$ et avec l’adimensionalisation de Bretherton (2.9) : $\frac{h_\infty}{x_c} = (3Ca)^{1/3}$. On obtient l’expression de l’épaisseur du film de lubrification pour le cas liant les contraintes volumiques de pression et les contraintes surfaciques de Marangoni.

$$\boxed{\frac{h_\infty}{R} = (3Ca)^{2/3} 0.643 \times |1 + 4.63Ma|^{2/3}} \quad (2.18)$$

Discussion de la FIGURE 2.15

A faible nombre de Marangoni (Ma), on retombe sur le résultat de Bretherton, avec un raccordement de la courbure adimensionnée constante égale à 0.643.

Pour les nombres de Marangoni élevés, la courbure n'est plus une constante, elle évolue en loi de puissance en fonction de Ma . Nous sommes bien en configuration Mazouchi, cependant nous n'avons pas la même adimensionnalisation, ce qui explique que pour cette formulation, le raccordement de la courbure adimensionnée n'est pas une constante.

Aussi, on remarque une asymptote pour les $Ma = -\frac{1}{4.63}$ où $\frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty}$ tend vers 0, ce qui donne une épaisseur du film de lubrification h_∞ qui tend vers une épaisseur nulle. Le nombre de Marangoni négatif veut dire que les contraintes de surfaces sont opposées aux contraintes en volume. L'asymptote représente une bulle à l'arrêt. Les contraintes surfaciques contrebalancent exactement les contraintes volumiques et la bulle n'avance plus. Si on reprend l'équation (2.6) : $h_\infty = R \left(\frac{h_\infty}{x_c}\right)^2 \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty}$, on voit que l'épaisseur du film de lubrification doit être nulle. On est dans un cas où la bulle mouille totalement le tube capillaire en verre. De plus le ménisque dynamique a une longueur nulle (car $\frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty} \rightarrow 0$), on passe directement de l'épaisseur du film uniforme (nul ici) au ménisque statique (*c.f.* FIGURE 2.16).



FIGURE 2.16: Schéma d'une bulle confinée dans le cas où $\frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty} = 0$

Ce cas n'est physiquement pas possible car il faut prendre en compte la pression de disjonction. Cette pression provient de la présence de tensioactifs dans la phase externe, qui stabilise le film (par exemple si les deux interfaces air/liquide et liquide/solide ont des charges de même signe) et impose une épaisseur de film dépendant de la pression de Laplace. Il

faudrait donc mettre une fonction qui limite l'épaisseur du film de lubrification à un minimum (la valeur prise pour cette limite est prise à 70 nm [32]).

Si au contraire, les interfaces ont des charges de signes opposés, la rupture de film peut apparaître pour des épaisseurs de film non nulles.

2.3 Expression de $\frac{U_d}{U_f}$

Nous avons utilisé ici la représentation de $\frac{U_d}{U_f}$ que l'on appelle mobilité, qui est la plus couramment utilisée, mais on aurait tout aussi bien pu représenter $\frac{U_d}{U_m}$. Cependant nous cherchons à comprendre l'influence des contraintes interfaciales sur la dynamique d'une bulle confinée se déplaçant par gradient de pression. Il a donc été choisi d'étudier l'influence de $\frac{\partial\gamma}{\partial x}$ qui est un paramètre de contrôle, sur le rapport $\frac{U_d}{U_f}$. Ainsi, on injecte l'équation (2.18) $\frac{h_\infty}{R} = (3Ca)^{2/3} 0.643 \times |1 + 4.63Ma|^{2/3}$ dans l'équation (2.16) $\frac{U_d}{U_f} \sim \frac{1+2\frac{h_\infty}{R}}{1+Ma \times 2\frac{h_\infty}{R}}$ pour obtenir l'équation finale :

$$\frac{U_d}{U_f} = \frac{1 + 1.28(3Ca)^{2/3} |1 + 4.63 \times Ma|^{2/3}}{1 + 1.28Ma(3Ca)^{2/3} |1 + 4.63 \times Ma|^{2/3}}$$

On représente le rapport $\frac{U_d}{U_f}$ en fonction des variables Ca et Ma . En FIGURE 2.17 on peut voir la représentation 3D du rapport $\frac{U_d}{U_f}$ en fonction des paramètres Ca et Ma .

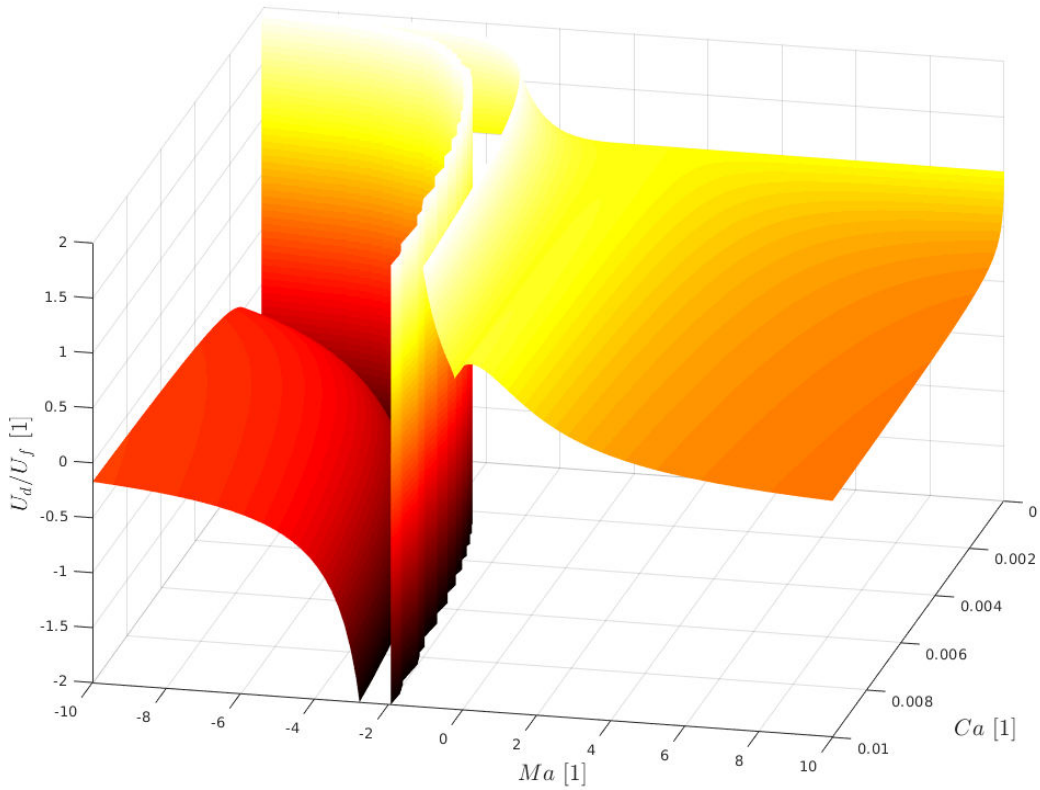


FIGURE 2.17: Représentation linéaire en 3D de la solution $\frac{U_d}{U_f}$ en fonction de Ca et Ma

Discussion de la FIGURE 2.17

Pour des cas limites où Ma tend vers 0, U_f est négligeable devant U_d , on a alors un rapport $\frac{U_d}{U_f}$ qui diverge et tend vers $\pm\infty$ et dans ce cas il est préférable de tracer uniquement U_d . On peut distinguer trois zones, représentées en FIGURE 2.18.

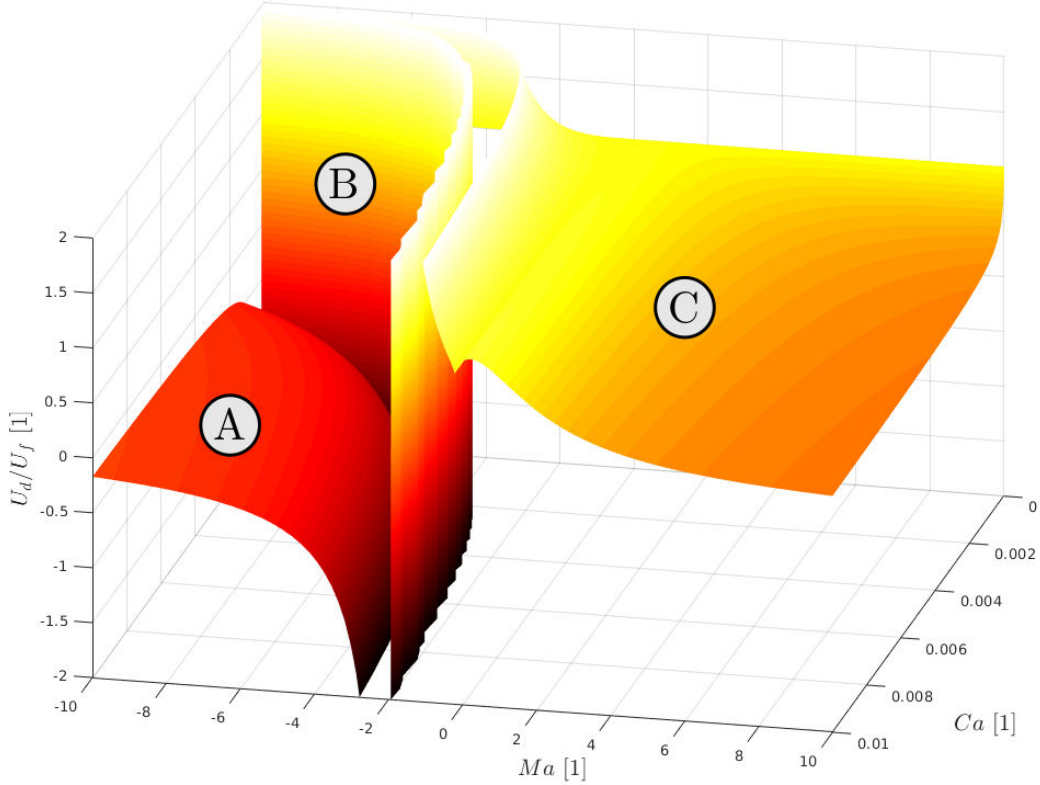


FIGURE 2.18: Définition des zones de la solution de $\frac{U_d}{U_f}$ pour le cas général

- A : la bulle se déplace dans le sens opposé à la phase continue - $\frac{U_d}{U_f} < 0$;
- B : la bulle se déplace par effet Marangoni, $U_f \ll U_d$ - divergence, U_f tend vers 0 ;
- C : la bulle se déplace dans le même sens que la phase continue - $\frac{U_d}{U_f} > 0$.

On a vu en FIGURE 2.15 que pour $Ma = -\frac{1}{4.63}$, on a $\frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty} = 0$, ce qui implique que $h_\infty = 0$. En ce qui concerne le rapport $\frac{U_d}{U_f}$, $Ma = -\frac{1}{4.63}$ implique un rapport égal à un (*c.f.* FIGURE 2.19, en page suivante).

$$Ma = \frac{U_m}{U_d} = -\frac{1}{4.63} \Rightarrow \frac{U_d}{U_f} = 1$$

C'est un cas spécifique de Bretherton où la bulle est totalement mouillante, il n'y a plus de film de lubrification (soit deux lignes de contact délimitant la bulle, qui avancent). Afin de prendre en compte la pression de disjonction (et ainsi limiter l'épaisseur du film de lubrification à une valeur minimale), on ajoute la fonction de saturation à une valeur de 70 nm comme mentionné dans la discussion de la FIGURE 2.15, on obtient le même résultat qu'en FIGURE 2.19.

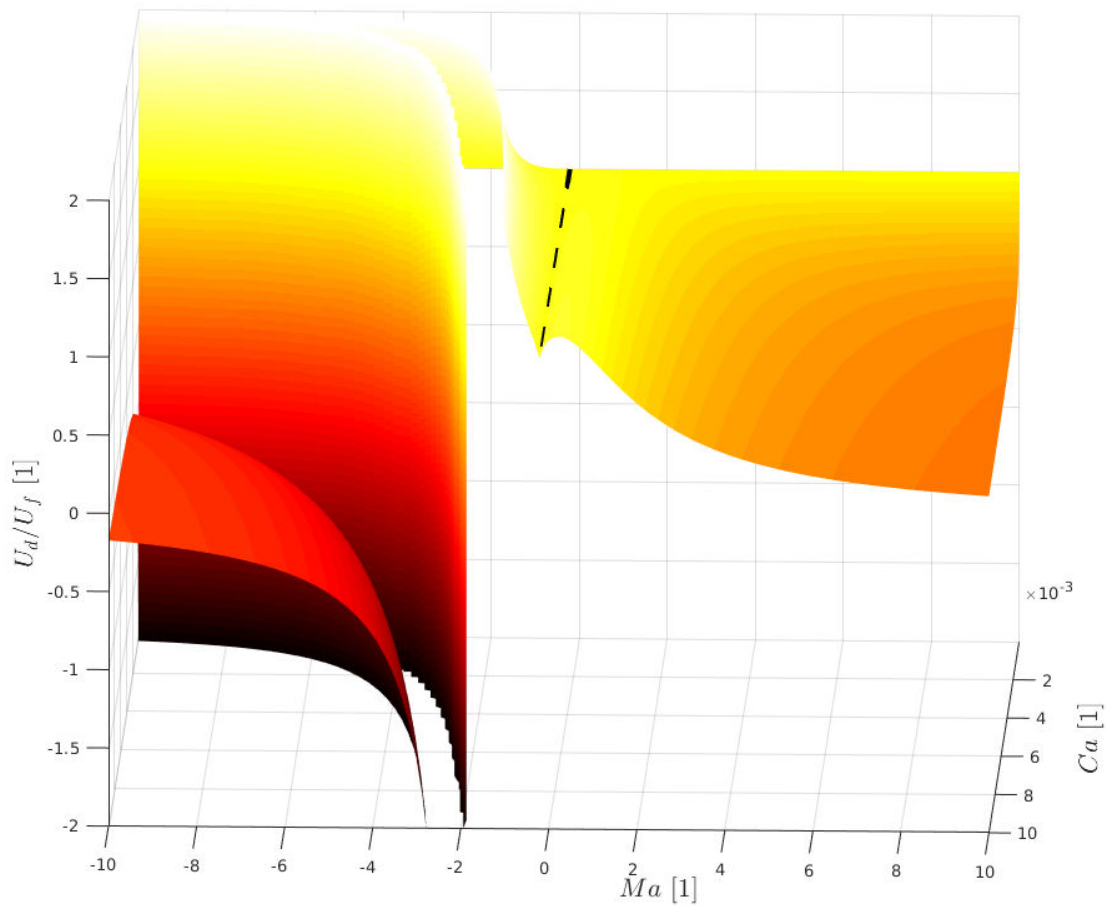
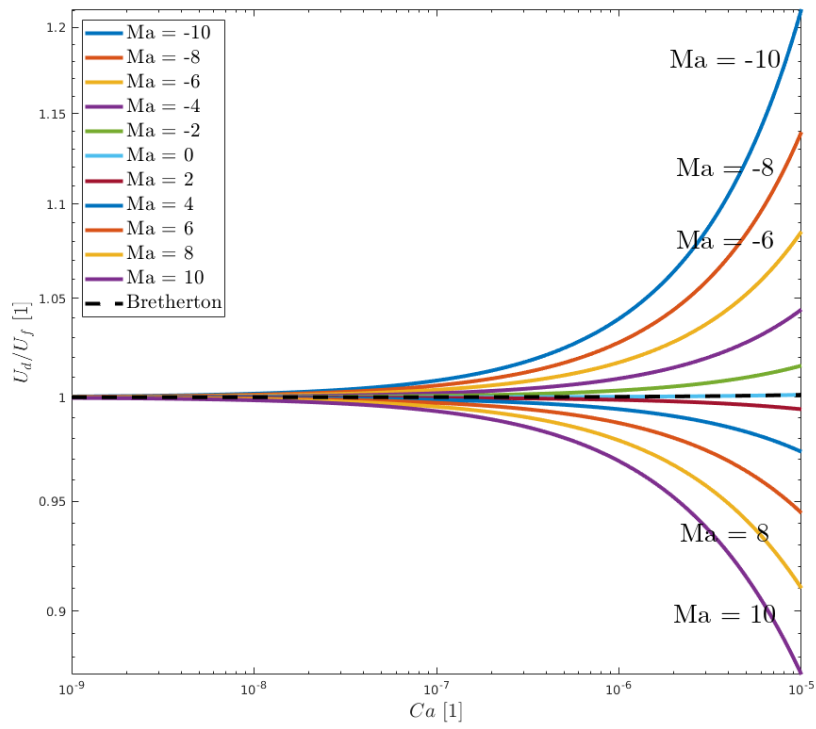
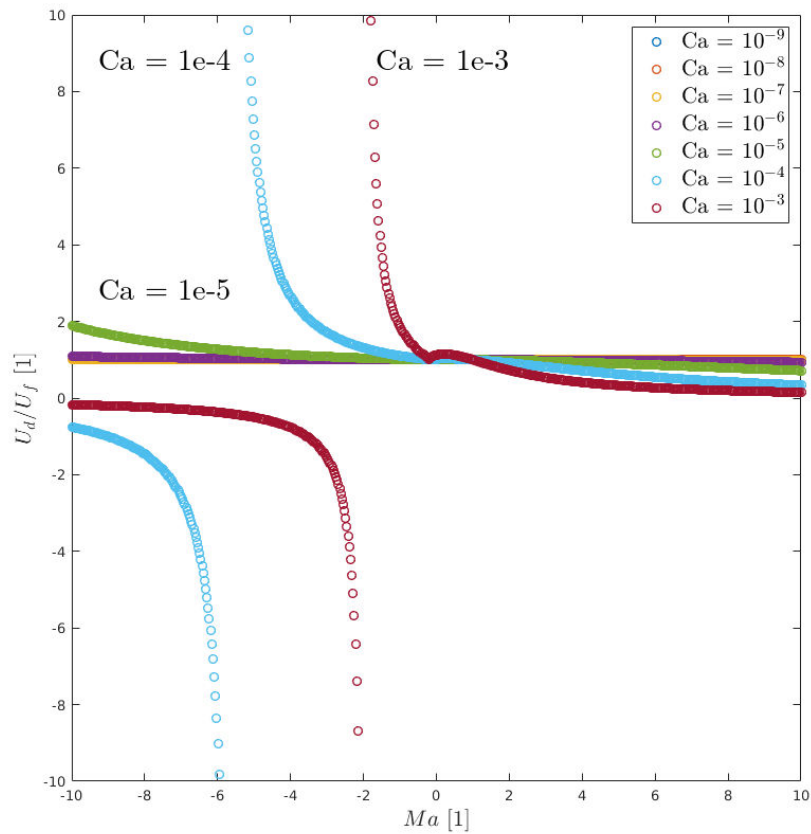


FIGURE 2.19: Représentation linéaire en 3D de la mobilité $\frac{U_d}{U_f}$, avec représenté en ligne pointillée noire le cas $\frac{U_d}{U_f} = 1$ pour $Ma = -\frac{1}{4.63}$

En page suivante, on trace en 2D la FIGURE 2.19 pour différents nombres de Marangoni (en FIGURE 2.20a) et pour différents nombres capillaires (en FIGURE 2.20b) afin de simplifier la lecture et l'analyse.



(a) Nombre de Marangoni constant.



(b) Nombre capillaire constant.

FIGURE 2.20: Représentation 2D de $\frac{U_d}{U_f}$.

Discussion de la FIGURE 2.20

La FIGURE 2.20a met en avant le fait que la mobilité de la bulle $\frac{U_d}{U_f}$ est soit supérieure à 1 pour les nombres de Marangoni négatifs (les vitesses moyennes de la bulle et dans le film de lubrification sont de signes opposés), soit inférieure à 1 pour les nombres de Marangoni positifs (les vitesses moyennes de la bulle et dans le film de lubrification sont de mêmes signes).

Plus le nombre capillaire est élevé, plus la mobilité s'écarte de un (elle augmente pour les nombres de Marangoni négatifs et diminue pour les nombres de Marangoni positifs).

On observe une singularité en FIGURE 2.20b pour $Ca = 10^{-3}$. Cette singularité se déplace pour des nombres de Marangoni plus faibles lorsque le nombre capillaire diminue. On peut expliquer cette singularité par le fait que l'on étudie la mobilité de la bulle $\frac{U_d}{U_f}$, cette étude est pertinente lorsque $U_f \neq 0$. En effet, le cas $U_f = 0$ donne une mobilité $\frac{U_d}{U_f}$ qui tend vers l'infini, c'est le cas Mazouchi *et al.*.

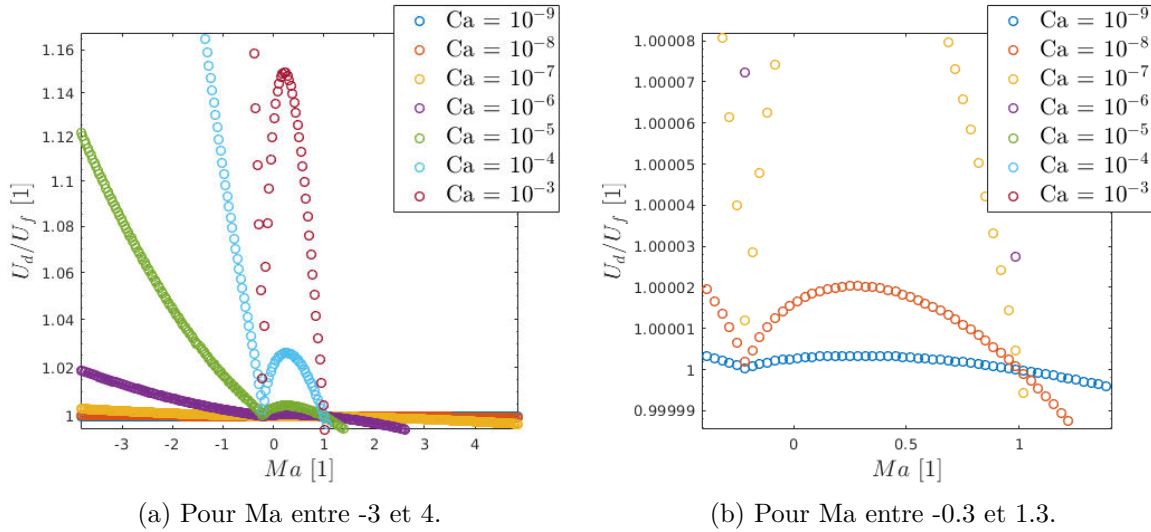


FIGURE 2.21: Zoom de la représentation 2D à nombre capillaire constant.

Si on zoom sur la zone où la mobilité de la bulle change de signe de dérivée, on obtient la FIGURE 2.21. On retrouve la valeur de $Ma = \frac{U_m}{U_d} = -\frac{1}{4.63} \simeq -0.22$ qui représente la valeur du nombre de Marangoni pour laquelle la courbure adimensionnée au raccord du ménisque statique est égale à zéro ($\left. \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \right|_{-\infty} = 0.643 \times |1 + 4.63Ma|^{2/3}$), ce qui entraîne une épaisseur du film de lubrification égale à zéro ($h_\infty = R(3Ca)^{2/3} \left. \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \right|_{-\infty}$) d'où une mobilité de bulle égale à un ($\frac{U_d}{U_f} \simeq \frac{1+2\frac{h_\infty}{R}}{1+Ma \times 2\frac{h_\infty}{R}}$). Dans le cas où nous prendrions une épaisseur de lubrification minimale à 70 nm, la mobilité serait de 1.00085, cette valeur est tellement faible que la saturation n'est pas visible.

Pour $Ma = 1$, on a également une mobilité égale à un $\left(\frac{U_d}{U_f} \simeq \frac{1+2\frac{h_\infty}{R}}{1+Ma \times 2\frac{h_\infty}{R}}\right)$. Cette valeur est indépendante de h_∞ et de R .

Lorsque $0 < Ma = \frac{U_m}{U_d} < 1 \Leftrightarrow 0 < U_m < U_d$, la mobilité $\frac{U_d}{U_f}$ est supérieure à un, soit $U_f < U_d$.

On remarque qu'il est difficile d'exploiter les données, sachant que U_d dépend de U_m et de U_f . Ainsi étudier $\frac{U_d}{U_f}$ n'est plus forcément pertinent. Cela l'était lorsque nous étions en cas Bretherton, mais désormais, il y a un écoulement dans le film de lubrification. On peut étudier d'autres rapports de vitesse comme :

- $\frac{U_d}{U_m} \simeq \frac{2\frac{h_\infty}{R}}{\frac{U_f}{U_d} \left(1 + 2\frac{h_\infty}{R}\right) - 1}$
- $\frac{U_f}{U_m} \simeq \frac{\frac{U_d}{U_m} + 2\frac{h_\infty}{R}}{1 + 2\frac{h_\infty}{R}}$
- $\frac{U_f}{U_m} \simeq \frac{2\frac{h_\infty}{R}}{1 + 2\frac{h_\infty}{R} - \frac{U_d}{U_f}}$

Finalement, il est plus simple d'étudier U_d directement, et de s'intéresser à l'influence du gradient de tensioactifs $\frac{\partial\gamma}{\partial x}$ et de la vitesse moyenne de la phase externe U_f , que des rapports de vitesses précédents.

2.4 Expression de $U_d = f_1(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x})$ et $h_\infty = f_2(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x})$

$$\frac{U_d}{U_f} \simeq \frac{1 + 2\frac{h_\infty}{R}}{1 + \frac{\partial\gamma}{\partial x} \frac{h_\infty}{2\mu U_d} \times 2\frac{h_\infty}{R}} \quad (2.19)$$

$$\frac{h_\infty}{R} = 0.643 \left(3\frac{\mu U_d}{\gamma}\right)^{2/3} \times \left|1 + 4.63 \times \frac{\partial\gamma}{\partial x} \frac{h_\infty}{2\mu U_d}\right|^{2/3} \quad (2.20)$$

L'objectif est d'obtenir les relations :

$$\begin{cases} U_d = f_1(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x}) \\ h_\infty = f_2(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x}) \end{cases}$$

L'équation (2.19) peut se réécrire en un polynôme soit de h_∞ , soit de U_d :

$$\begin{cases} \left(\frac{\frac{\partial\gamma}{\partial x} U_d}{U_f}\right) h_\infty^2 - (4\mu U_d) h_\infty + 2\mu U_d R \left(\frac{U_d}{U_f} - 1\right) \simeq 0 \\ \left(\frac{2\mu R}{U_f}\right) U_d^2 + \left[\frac{\frac{\partial\gamma}{\partial x} h_\infty^2}{U_f} - 2\mu(R + 2h_\infty)\right] U_d \simeq 0 \end{cases}$$

L'équation (2.20) peut se réécrire en un polynôme soit de h_∞ , soit de U_d :

$$\begin{cases} \left(\frac{1}{R^3} \right) h_\infty^3 - \left(13.12 \frac{\partial \gamma}{\gamma} \right)^2 h_\infty^2 - \left(11.25 \frac{\mu U_d \frac{\partial \gamma}{\partial x}}{\gamma^2} \right) h_\infty - 2.43 \left(\frac{\mu U_d}{\gamma} \right)^2 = 0 \\ \left(2, 43 \frac{\mu}{\gamma} \right) U_d^2 + \left(11.25 \frac{\mu h_\infty \frac{\partial \gamma}{\partial x}}{\gamma^2} \right) U_d + 13.12 \left(\frac{\partial \gamma}{\partial x} \frac{h_\infty}{\gamma} \right)^2 - \left(\frac{h_\infty}{R} \right)^3 = 0 \end{cases}$$

Ce système d'équation n'a pas pu être résolu dans le temps qui m'était imparti. Il serait en revanche intéressant de résoudre ce système et de tracer les courbes de $U_d = f_1(U_f; \frac{\partial \gamma}{\partial x})$ et $h_\infty = f_2(U_f; \frac{\partial \gamma}{\partial x})$.

3 Conclusion

3.1 Bretherton

La modélisation de Bretherton étudie l'influence du nombre capillaire $Ca = \frac{\mu U_d}{\gamma}$ sur la mobilité de la bulle $\frac{U_d}{U_f}$. Pour ce faire, on obtient la relation entre l'épaisseur du film de lubrification h_∞ et le nombre capillaire :

$$h_\infty = 0.643R(3Ca)^{2/3}$$

Finalement l'expression de la mobilité en fonction du nombre capillaire est :

$$\frac{U_d}{U_f} \simeq 1 + 2.7 \times Ca^{2/3}$$

In fine cela permet d'obtenir une relation entre la vitesse d'une bulle dans un tube capillaire de section circulaire et le débit de phase externe, dans le cas d'un système sans tensioactifs.

3.2 Thermocapillaire

La modélisation de Mazouchi *et al.* étudie l'influence du nombre capillaire $Ca = \frac{\mu U_d}{\gamma}$ sur l'épaisseur du film de lubrification h_∞ :

$$h_\infty = 1.08R(3Ca)^{2/5}$$

Nous avons établi une expression de mobilité, similaire au cas Bretherton que l'on a appelé mobilité de Mazouchi *et al.* :

$$\frac{U_d}{U_f} \simeq -4.5Ca^{2/5}$$

3.3 Régime mixte

La modélisation en régime mixte étudie les effets conjoints des contraintes volumiques (prises en compte dans le nombre capillaire) et des contraintes surfaciques (prises en compte dans le nombre de Marangoni). On obtient la relation liant l'épaisseur du film de lubrification en fonction du nombre capillaire et du nombre de Marangoni ($Ma = \frac{U_m}{U_d}$) :

$$\frac{h_\infty}{R} = (3Ca)^{2/3} 0.643 \times |1 + 4.63Ma|^{2/3}$$

Pour l'étude de mobilité, il est difficile d'exploiter la mobilité de Bretherton $\frac{U_d}{U_f}$ et tout autre rapport de vitesse, les expressions de vitesses étant imbriquées les unes aux autres :

$$\frac{U_d}{U_f} = \frac{1 + 1.28(3Ca)^{2/3} \left|1 + 4.63 \times \frac{U_m}{U_d}\right|^{2/3}}{1 + 1.28 \frac{U_m}{U_d} (3Ca)^{2/3} \left|1 + 4.63 \times \frac{U_m}{U_d}\right|^{2/3}}$$

Il faut donc résoudre le système d'équation au CHAPITRE 2, SECTION 2, SOUS SECTION 2.4, pour avoir $U_d = f_1(U_f; \frac{\partial \gamma}{\partial x})$ et $h_\infty = f_2(U_f; \frac{\partial \gamma}{\partial x})$. Résolution qui n'a pas été effectuée.

Synthèse

CHAPITRE 2 - PARTIE THÉORIQUE

- La théorie développée dans ce chapitre, est basée sur l'approche de Landau Levich et Derjaguin ;
- La vitesse d'une bulle confinée dans un tube s'obtient par :
 1. Une simplification des équations de Navier-Stokes ;

2. Une conservation du volume donnant une relation entre la mobilité de la bulle et l'épaisseur du film de lubrification h_∞ (ici pour le cas du régime mixte, exprimé pour la mobilité de Bretherton $\frac{U_d}{U_f}$) :

$$\frac{U_d}{U_f} \sim \frac{1 + 2\frac{h_\infty}{R}}{1 + Ma \times 2\frac{h_\infty}{R}}$$

3. L'épaisseur du film de lubrification est liée à la courbure adimensionnée du ménisque dynamique à son raccordement au ménisque statique par la relation :

$$\frac{h_\infty}{R} = \left(\frac{h_\infty}{x_c}\right)^2 \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty}$$

4. L'adimensionnalisation dépend du cas d'étude.

$$\begin{aligned} \text{cas Bretherton et cas mixte : } & \frac{h_\infty}{x_c} = (3Ca)^{1/3} \\ \text{cas thermocapillaire : } & \frac{h_\infty}{x_c} = \left(\frac{3\frac{\partial\gamma}{\partial x}h_\infty}{2\gamma_0}\right)^{1/3} \end{aligned}$$

5. La courbure adimensionnée est déterminée par résolution numérique et dépend du régime d'étude (Bretherton, Mazouchi et régime mixte).

$$\begin{aligned} \text{cas Bretherton : } & \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty} = 0.643 \\ \text{cas thermocapillaire : } & \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty} = 1.76 \times Ma^{2/3} \\ \text{cas mixte : } & \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} \Big|_{-\infty} = 0.643 \times |1 + 4.63Ma|^{2/3} \end{aligned}$$

- Les nombres adimensionnés présents dans le modèle sont :

$$\begin{aligned} \text{le nombre capillaire : } & Ca = \mu U_d / \gamma \\ \text{le nombre de Marangoni : } & Ma = \frac{\partial\gamma}{\partial x} h_\infty / 2\mu U_d \end{aligned}$$

- La pression de disjonction limite l'épaisseur du film de lubrification à 70 nm ;
- Connaissant le gradient de tension superficielle $\frac{\partial\gamma}{\partial x}$ (qui permet de remonter à la vitesse moyenne dans le film de lubrification U_m), et la vitesse de la bulle U_d on peut remonter à la vitesse moyenne du fluide U_f (en régime mixte, U_f n'est pas imposée) ;
- La représentation $\frac{U_d}{U_f}$ est pertinente pour le cas Bretherton, mais difficile à exploiter dans les cas thermocapillaire et cas mixte.

Partie expérimentale

L'OBJECTIF DE LA PARTIE EXPÉRIMENTALE est de développer une étude permettant de comprendre l'effet d'une contrainte interfaciale sur la dynamique d'une bulle confinée. Nous espérons ainsi générer des expériences "cas d'école" pour comprendre d'une manière plus générale le rôle des tensioactifs sur la dynamique de gouttes.

1	Dispositif expérimental	62
	1.1 Canal d'étude	62
	1.2 Tensioactif utilisé	72
	1.3 Fluides utilisés	72
	1.4 Génération de gouttes	77
	1.5 Connectiques de raccordement	79
	1.6 Contrôle en pression des fluides	80
	1.7 Gradient thermique	81
2	Traitement des données	85
	2.1 Mesure de débit de la phase externe	85
	2.2 Mesure de vitesse de goutte	87
3	Résultats	89
4	Conclusion	94

Le confinement peut être dans des canaux à section circulaire (tube capillaire à section circulaire) ou à section rectangulaire (tube capillaire à section rectangulaire, dit canal de Hele-Shaw). Les travaux expérimentaux effectués précédemment ont été réalisés dans des canaux de Hele-Shaw (*c.f.* PhD A. Huerre [30], PhD B. Reichert [64]). La théorie initiale étant pour des tubes capillaires (*c.f.* Bretherton), il est expérimentalement difficile de mesurer les contraintes interfaciales et ainsi connaître la répartition locale des contraintes à l'interface de la goutte confinée et de la phase externe. Nous avons voulu ici contrôler la contrainte interfaciale de Marangoni par un gradient thermique.

Les précédentes expériences ont été réalisées pour des cellules de Hele-Shaw en PDMS (Polydiméthylsiloxane, *c.f.* ANNEXE 1), matériau dont le coefficient de déformation thermique modifie le gradient de confinement de la goutte [74, 54], induisant un phénomène de mise en mouvement non-voulu.

On a tout d'abord cherché à obtenir un protocole de fabrication permettant d'appliquer un gradient de température dans un canal microfluidique sans déformer thermo-mécaniquement le confinement du canal.

1 Dispositif expérimental

1.1 Canal d'étude

En 2009 B. Selva [75] développa une géométrie de résistances permettant d'obtenir un gradient de température constant (et de profil de température spatial linéaire) dans un canal de Hele-Shaw. Voulant caractériser l'effet Marangoni sur le déplacement d'une goutte, il s'est rendu compte que la goutte allait dans le sens opposé aux prédictions. Cela était dû en fait à la déformation des parois du canal microfluidique en PDMS par la chaleur qui, générant un gradient de confinement, déplaçait la goutte vers la région moins déformée. La goutte était bien mise en mouvement lorsque le gradient thermique était présent, mais le phénomène sous-jacent à son déplacement n'était pas l'effet Marangoni, mais le gradient de confinement engendré par la déformation thermomécanique du PDMS lorsqu'il est chauffé.

Partant de ce constat, nous avons voulu trouver un système microfluidique dont la déformation thermomécanique n'engendre pas de déplacement de la goutte par gradient de confinement.

Effet thermomécanique

L'effet thermomécanique est la déformation du microcanal par déformation thermique du matériau. Cette déformation génère une différence de courbure de notre goutte qui engendre une force motrice déplaçant la goutte. Le coefficient de dilatation thermique permet de connaître l'évolution de taille d'un matériau en fonction de sa température.

$$H = H_0(1 + \alpha\Delta T)$$

$$\frac{\partial H}{\partial x} = \frac{\partial H}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial x} = \alpha H_0 \frac{\partial T}{\partial x}$$

avec :

- H [m] : la hauteur du matériau ;
- x [m] : la direction perpendiculaire à la hauteur ;
- T [° C] : la température du matériau (considérée comme homogène) ;
- H_0 [m] : la hauteur du matériau à température ambiante (à T_0) ;
- α [° C⁻¹] : le coefficient de dilatation thermique.

Matériaux	RTV 615	Sylgard 184	h-PDMS [59]	NOA 81	COC	Verre de quartz	Verre borosilicate
α [° C ⁻¹]	330×10^{-6}	340×10^{-6}	450×10^{-6}	220×10^{-6}	600×10^{-6}	0.5×10^{-6}	9×10^{-6}

TAB. 3.1: Coefficients de dilatation thermique

Puce en verre

Le verre est le matériau utilisé traditionnellement en microfabrication le moins déformable thermo-mécaniquement. Il a donc été le premier choix dans le type de puce microfluidique à tester. La société MICRONIT propose des puces en verre borosilicate¹ (photo en FIGURE 3.1).

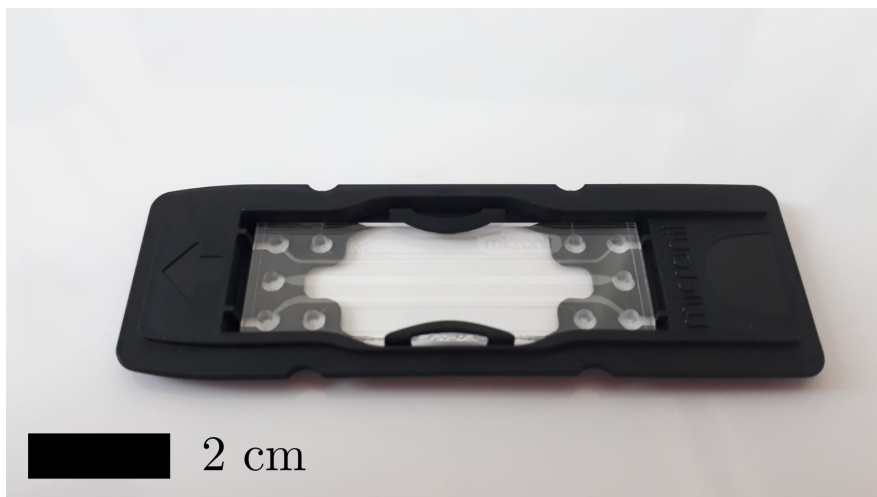


FIGURE 3.1: Photo des canaux de Hele-Shaw de la puce MICRONIT

1. https://store.micronit.com/microfluidic-chips/3-pack-thin-bottom-flow-cells?__SID=U

Cependant les gouttes migrent vers les bords de la cellule Hele-Shaw. Cela est dû à un “tilte” de fabrication. En effet, les puces MICRONIT sont fabriquées par gravure acide fluorhydrique (HF) dans une lame de verre, puis une lamelle est soudée thermiquement du côté de la gravure. Le “tilte” de fabrication est trop important pour notre couple de liquide, la dissipation visqueuse dans la goutte et le film de lubrification ne permet pas de contrer le gradient de confinement généré par le tilte.

On a donc voulu s’intéresser à la technologie NOA (*c.f.* page suivante) pour la fabrication de puces, tout en faisant attention de ne pas détruire nos résistances et modifier le comportement de notre liquide dans le canal par électrolyse. Les détails de la résistance sont donnés dans ce CHAPITRE en SECTION 1, SOUS SECTION 1.7.

Électrolyse

Il faut faire attention au fait que le PDMS et la NOA sont perméables aux fluides et que si un liquide est en contact avec la résistance électrique par l’intermédiaire du PDMS ou de la NOA alors l’électrolyse peut avoir lieu pour une tension seuil. En effet, l’eau migre vers les résistances et conduit à l’électrolyse.

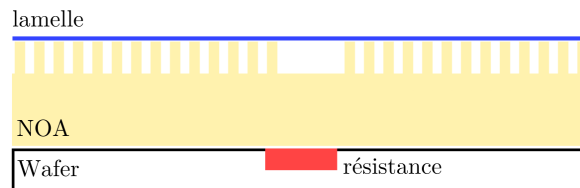


FIGURE 3.2: Puce microfluidique - 1.0

Pour la première configuration de puce (*c.f.* FIGURE 3.2), on ne peut pas appliquer une différence de tension importante aux bornes des résistances (environ 10 V) sans générer d’électrolyse. Pour observer les effets Marangoni, un gradient de tension superficielle élevé ($\frac{\partial\gamma}{\partial x} \simeq 7$ mN/m pour un nombre capillaire de $Ca = 10^{-3}$) est nécessaire, ce qui est créé par un gradient thermique élevé ($\frac{\partial T}{\partial x} \simeq 35$ °C/mm) lui aussi et nécessite une tension aux bornes de la résistance très importante (210 V CC).

Afin de palier l’électrolyse du liquide, on sépare le système microfluidique de la résistance par une lamelle (*c.f.* FIGURE 3.3).

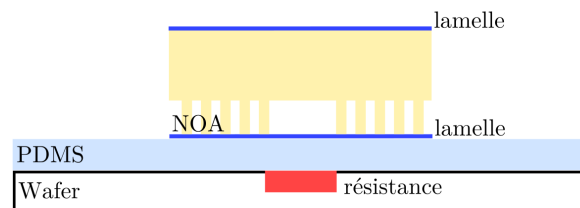


FIGURE 3.3: Puce microfluidique - 2.0

Puces en NOA (Norland Optical Adhesive)

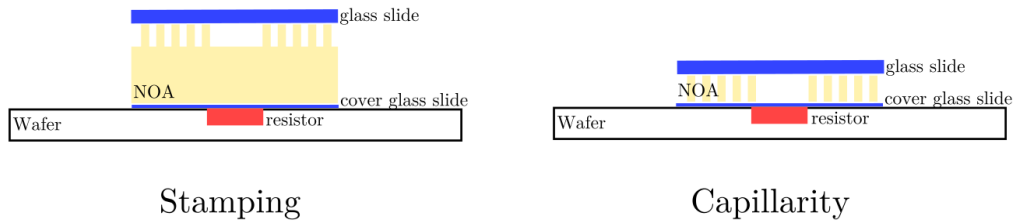


FIGURE 3.4: Procédés de fabrication par NOA. Les deux méthodes (stamping, à gauche et capillarité, à droite) diffèrent dans leur étape de pré-réticulation, ce qui engendre deux systèmes différents. Avant de réticuler pour la première fois la NOA, le contre-moule (ou timbre) en PDMS est soit placé sur un film fin de NOA déposé sur une lame de verre (méthode par stamping), soit déposé sur une lame de verre avant de faire rentrer la NOA par capillarité entre le contre-moule et la lame de verre (méthode par capillarité).

La NOA est un polymère photo-réticulable. Le process de fabrication des puces peut être trouvé en ANNEXE 5.

NOA par stamping

Les propriétés physiques entre le verre et la NOA sont différentes pour les puces fabriquées par le procédé de stamping (*c.f.* ANNEXE SECTION 5). Afin d'avoir un système symétrique, nous avons opté pour le procédé de NOA par capillarité.

NOA par capillarité

Le protocole de fabrication est différent de celui de la NOA par stamping (*c.f.* FIGURE 3.5) pour les deux premières étapes, la suite est identique.

Il est difficile de montrer des épaisseurs de l'ordre de $50 \mu\text{m}$ schématiquement (ordre de grandeur de la hauteur des motifs du contre-moule). Il y a donc un code couleur pour montrer les zones où la NOA est sous le contre-moule (en jaune clair) et où elle est en dehors du contre-moule (en jaune foncé). Pour la vue du dessus, les zones où le contre-moule est en contact avec la lame de verre ont été grisées. La présence des plots a pour utilité de ne pas avoir un contre-moule qui s'effondre loin de notre canal et garantir une épaisseur constante le long de la puce.

Conseils de fabrication :

- Penser à bien dégazer le contre-moule en PDMS, pour qu'il absorbe les potentielles bulles d'air bloquées dans le contre-moule ;
- Pour accélérer le processus de remplissage par capillarité, on peut chauffer notre système à $50\text{-}70^\circ\text{C}$ pour diminuer la viscosité de la NOA. Attention à ne pas trop chauffer, le

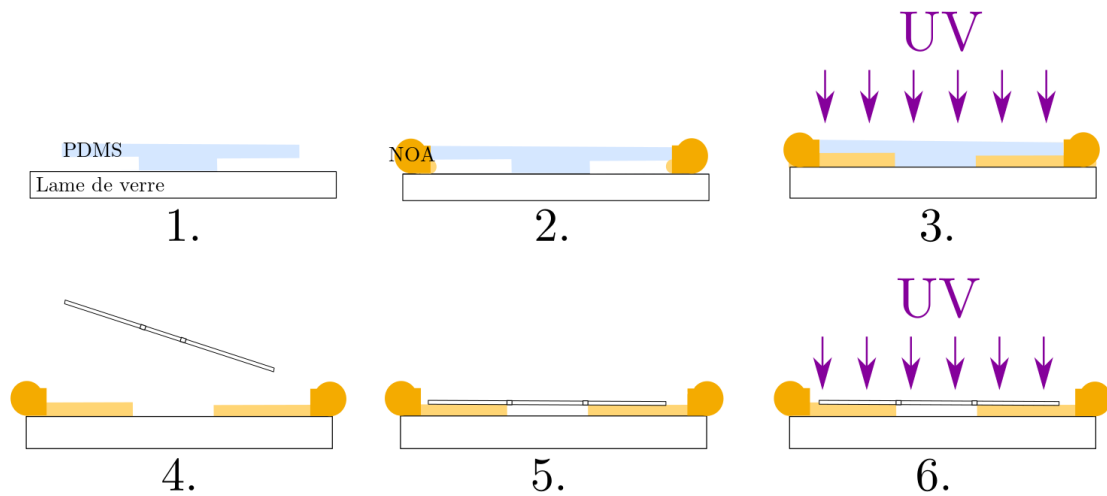


FIGURE 3.5: Étapes de NOA par capillarité : **1.** On dépose le contre-moule de PDMS sur une lame de verre ; **2.** On dépose la NOA liquide le long du contre-moule ; **3.** On expose aux U.V. une première fois ; **4.** On prend une lamelle de verre percée aux entrées/sorties ; **5.** On fait contact entre la lamelle et la NOA pré-réticulée ; **6.** Une exposition aux U.V. finalise le scellage.

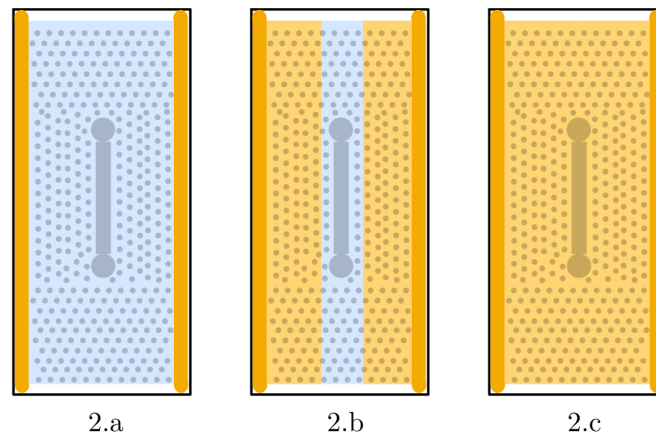


FIGURE 3.6: Étapes de propagation de la NOA par capillarité : **2.a** La NOA liquide est déposée le long du contre-moule de PDMS, **2.b** La NOA avance tout en chassant l'air vers les extrémités hautes et basses de la figure **2.c** La NOA est entrée dans toutes les parties du contre-moule en PDMS.

PDMS se déforme lorsqu'il est chauffé ;

- Il faut que le contre-moule en PDMS soit plus grand que la lamelle de verre que l'on va coller (étapes **4.** et **5.**) ;
- A noter que l'on ne peut pas réaliser de surface fermée car l'avancée de la NOA par capillarité ne nous le permet pas (*c.f.* FIGURE 3.7).

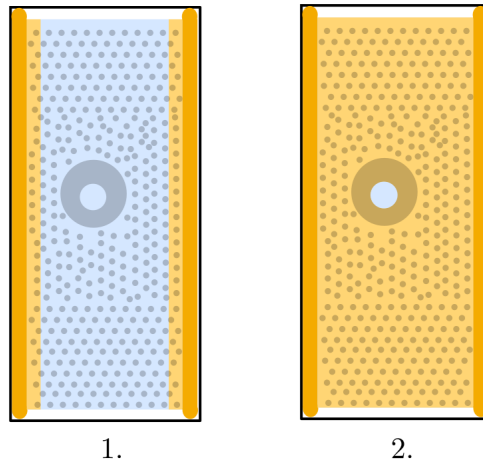


FIGURE 3.7: Propagation de la NOA par capillarité dans un contre-moule avec une surface fermée.

Des problèmes de réticulations de la NOA sont survenus pour des hauteurs de cavités inférieures à $20 \mu m$. La pompe permettant de dégazer le timbre en PDMS n'étant pas assez puissante, une couche d'oxygène entre le timbre et la lamelle de verre inhibe la réticulation par insolation UV et ne permet pas de faire adhérer la lamelle de verre pour refermer notre système microfluidique.

Le système est alors une puce en NOA par capillarité de hauteur supérieure à $40 \mu m$, dont la phase externe est de l'eau + 2 CMC de SDS et la phase interne de la FC72 (*c.f.* SOUS SECTION 1.3). On observe cependant des problèmes de mouillage, qui sont dus au contre-moule en PDMS déposé sur la lame de verre lorsque l'on fait rentrer la NOA par capillarité sur les bords du timbre.

Problèmes de nettoyage de lame et lamelle de verre

Le protocole que l'on m'avait donné consistait à nettoyer les lames de verre avec de l'acetone, de l'isopropanol et de le sécher à l'air comprimé. Je pouvais observer des problèmes de mouillage dans ma cavité lorsque les gouttes se déplaçaient. Puis un doctorant qui faisait également de la NOA par capillarité m'a conseillé de nettoyer la lame avec du liquide vaisselle, de le rincer à l'eau distillée milliQ et de la sécher à l'air comprimé. Je constatais beaucoup moins de problèmes de mouillage.

Afin de mieux comprendre l'influence du nettoyage des lames et lamelles de verre avant scellage de la puce, j'ai réalisé des mesures d'angles de contact entre une goutte d'eau avec du SDS à 2 CMC et une lame de verre nettoyée de différentes manières. Le résultat de ces mesures est résumé dans la FIGURE 3.8

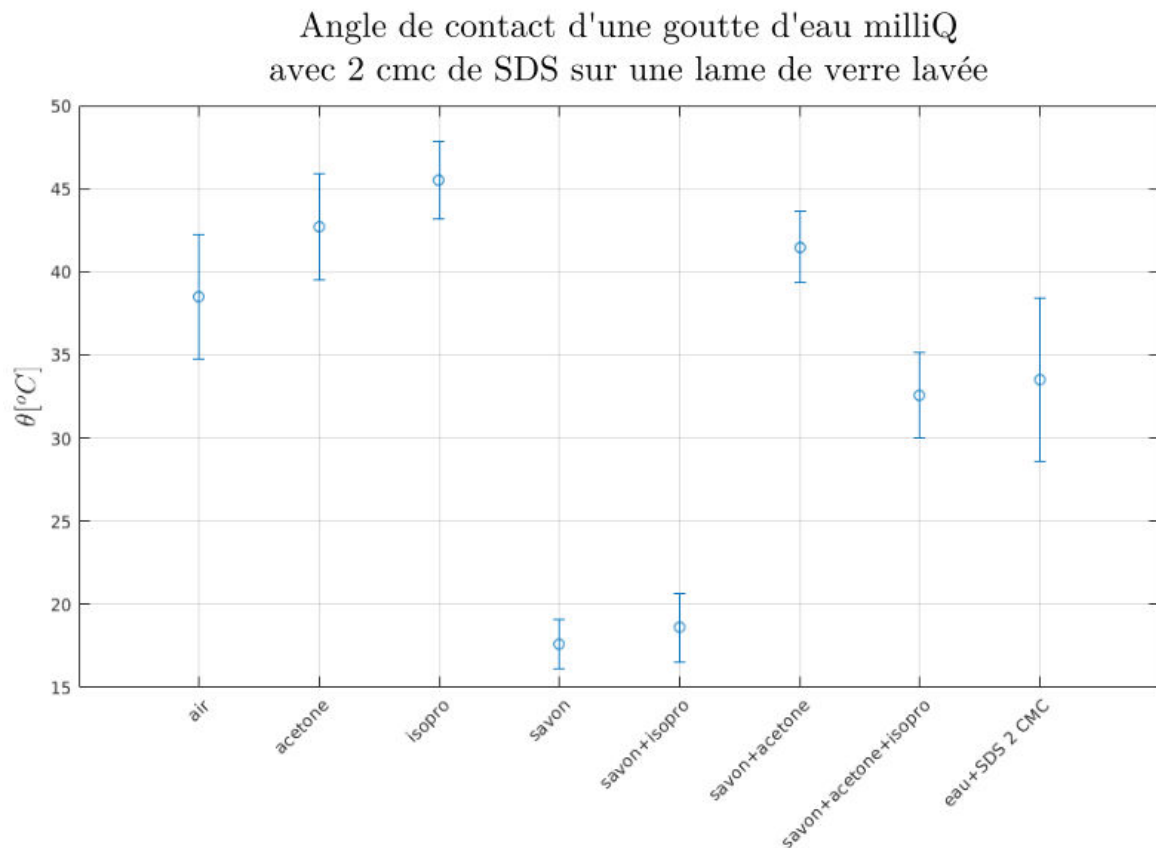


FIGURE 3.8: Différents traitements de lame et lamelle avant scellage de la puce. Dans chaque configuration on terminait par souffler sur les lames et lamelles avec de l'air comprimé.

Les tensioactifs présents dans le liquide vaisselle sont tellement puissants qu'ils adhèrent à la surface du verre et ainsi modifient la tension superficielle de la goutte déposée sur la lame de verre. Finalement la technique de nettoyage conservée a été celle avec de l'eau + 2 CMC de SDS (même solution que celle utilisée dans la puce microfluidique) pour enlever toute traces de poussière.

Problèmes de mouillage dus au timbre en PDMS

Le PDMS, est composé de chaînes de polymère libres, ces chaînes libres adhèrent à la lame de verre (*c.f.* FIGURE 3.9) et modifient grandement les propriétés physico-chimiques de la surface [44].

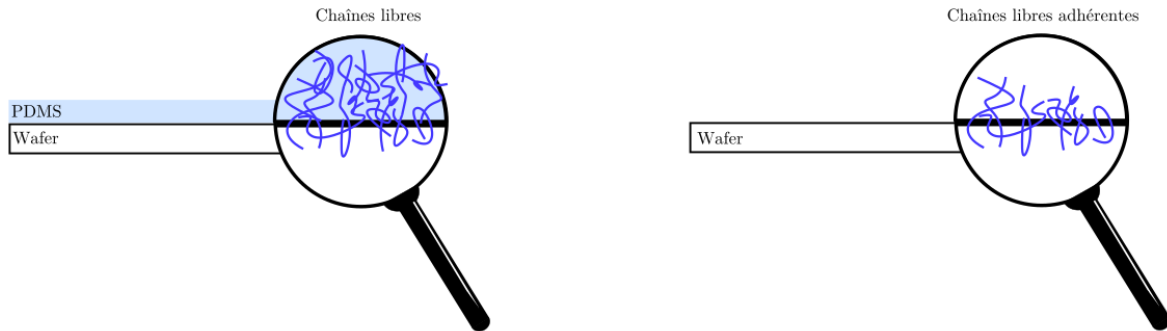


FIGURE 3.9: Lorsque l'on dépose du PDMS sur une lame de verre, les chaînes libres se déposent et adhèrent au verre. Après décollement du PDMS de la lame, des chaînes libres restent collées.

Une solution trouvée a été de réaliser des contre-moules avec des surfaces fermées pour ne pas avoir de NOA dans le canal et que le timbre ne touche pas non plus la lame de verre (*c.f.* FIGURES 3.10 et 3.11).

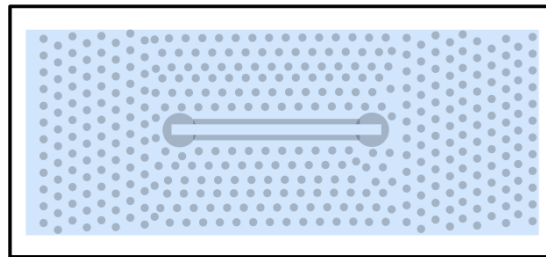


FIGURE 3.10: Solution surface fermée pour ne pas avoir de chaînes libre de polymère en contact avec la paroi en verre du canal.

Le contre-moule étant dégazé, si le canal a un rapport d'aspect élevé (typiquement supérieur à 1 : 10), alors la longueur du canal est deux fois plus grande que sa hauteur et le contre-moule dégazé va diminuer la pression dans la cavité, la cavité va se déformer et créer un contact entre le plafond du contre-moule et la lame de verre (*c.f.* FIGURE 3.12 étape **2.**). Les chaînes libres du PDMS adhèrent à la lame et on retombe sur le problème initial.

Le dégazage du contre-moule est primordial, j'ai donc décidé de réaliser un trou dans le contre-moule au niveau du canal afin d'équilibrer la pression dans le canal et la pression ambiante (*c.f.* FIGURE 3.12 étape **2 bis.**). On peut voir l'influence des chaînes libres de PDMS (des parois de la surface fermée dans le canal) en contact avec le verre sur la FIGURE 3.13.

Il n'y a plus de problèmes de mouillage, mais à faible vitesse, les gouttes migrent vers un bord de la cavité. Nous avons le même problème qu'avec les puces MICRONIT, un gradient de

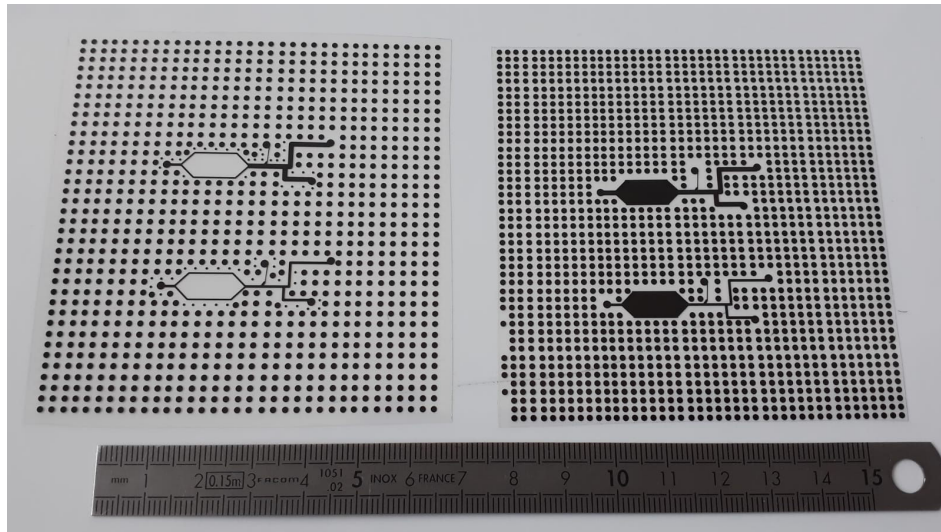


FIGURE 3.11: Différence de masque entre surface ouverte et surface fermée.

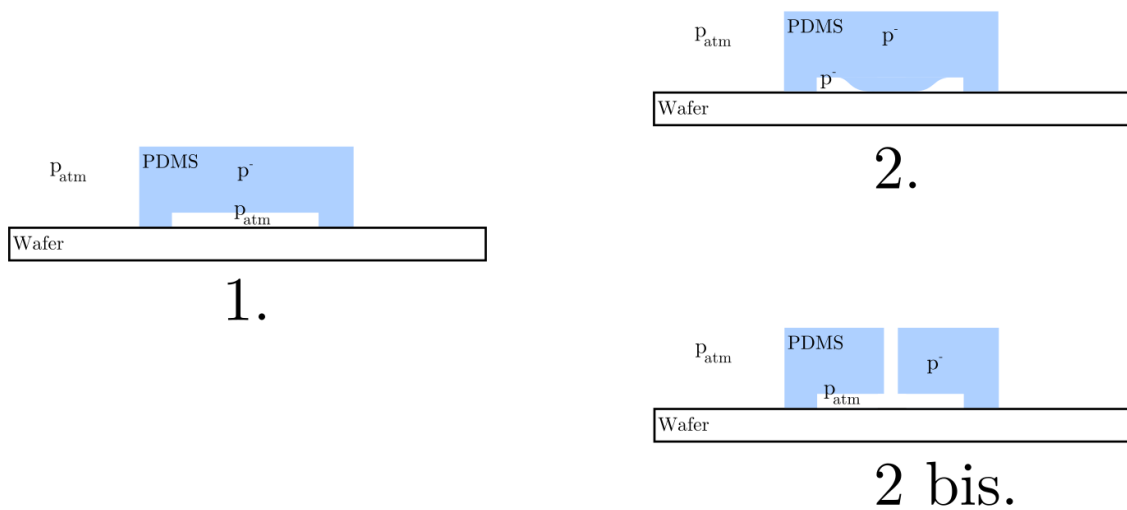


FIGURE 3.12: **1.** Lorsque l'on dépose le contre-moule de PDMS dégazé sur la lame de verre, la cavité est à pression atmosphérique et le timbre est à une pression inférieure à celle de la pression atmosphérique p^- . **2.** Puis la pression dans la cavité va diminuer, le PDMS va se déformer et ensuite adhérer à la lame de verre. **2 bis.** La pression dans la cavité va rester constante grâce au trou effectué dans le contre-moule au niveau de la cavité, le PDMS ne va pas se déformer.

confinement dû au processus de fabrication lors du collage de la lamelle de verre sur la puce en NOA pré-réticulée déplace la goutte perpendiculairement à la direction voulue.

Pour ne pas avoir de problème de mouillage, il est nécessaire de trouver une méthode de fabrication pour laquelle le PDMS n'est pas en contact avec la partie de verre qui sert de fond à la cellule de Hele-Shaw.

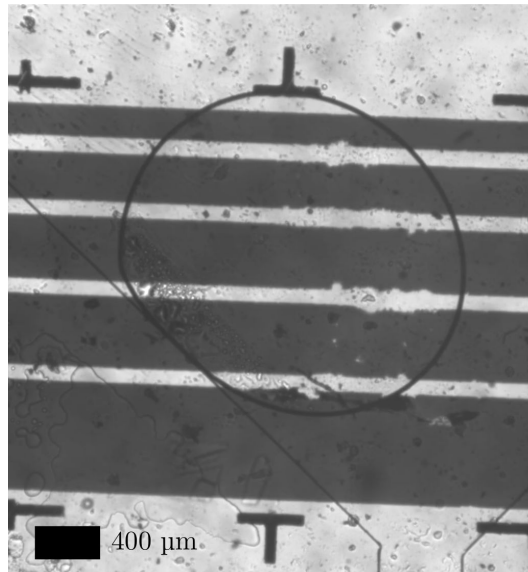


FIGURE 3.13: Influence du contact du contre-moule de PDMS lors de la fabrication d'une puce en NOA par capillarité. On peut observer au niveau de la goutte de FC72 des propriétés de mouillage différentes entre les bords de la surface fermée dues au contre-moule en PDMS.

Tube capillaire en verre



FIGURE 3.14: Capillaire en verre VITROTUBES

La solution finale retenue pour les expérimentations a été de prendre un capillaire en verre. Les vitesses de déplacement des gouttes étant faibles ($[1 - 300] \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), le gradient de confinement non voulu des procédés de fabrication déplaçait nos gouttes perpendiculairement à la direction du flux de la phase continue.

Les capillaires proviennent de CM SCIENTIFIC. Ce sont des VITROTUBES, round capillaries, catalog # CV4055, 0.40 ID x 0.55 OD. Les capillaires utilisés ont un diamètre interne de $400 \mu\text{m} \pm 10\%$ (*c.f.* FIGURE 3.14). L'étape de nettoyage consiste à le laver à l'acétone, puis

isopropanol et enfin de le sécher dans une cloche à vide pendant 1h.

On a désormais notre canal d'étude. Il faut maintenant amener des gouttes de volume contrôlé, avec un débit de phase externe contrôlé.

1.2 Tensioactif utilisé

Afin de stabiliser l'interface entre la bulle et l'eau, on utilise un tensioactif. Cependant, pour pouvoir faire l'hypothèse qu'il n'influe pas sur les contraintes aux interfaces par effet Marangoni solutal, il faut que son temps d'adsorption/désorption à l'interface soit négligeable devant le temps caractéristique du déplacement de la bulle dans le canal ($t_{\text{caractéristique}} = \frac{L_{\text{goutte}}}{U_{\text{goutte}}}$).

On utilise du Sodium Dodecylsulfate (SDS), qui a un temps d'adsorption/désorption d'environ 1 ms [23, 24]. Les vitesses maximales avec lesquelles nous travaillons sont de $300 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, pour des longueurs de gouttes d'environ $1500 \mu\text{m}$, d'où $t_{\text{caractéristique}} = 5 \text{ s}$. Les échanges entre l'interface et le volume sont suffisamment rapides pour considérer qu'il n'y a pas de gradient de concentration interfaciale en SDS. Les manipulations expérimentales antérieures sur le même système de fluides, a montré que le SDS ne génère pas de rhéologie interfaciale dans nos conditions expérimentales [56].

1.3 Fluides utilisés

La température a pour effet de générer des gradients de tension superficielle. L'avantage par rapport aux gradients de tension solutocapillaire est que l'on a la possibilité de choisir le profil spatial (et temporel) du gradient de tension superficielle appliqué à la goutte. C'est un paramètre de contrôle (tant que l'on contrôle le profil de température *c.f.* CHAPITRE 3 SECTION 1, SOUS SECTION 1.7).

Cependant, le fait de chauffer entraîne quelques complications. En effet, les propriétés physiques dépendent de la température, on a par exemple le volume ou la viscosité dynamique des fluides qui varie en fonction de la température.

Dans le modèle détaillé en CHAPITRE 2, l'évolution des paramètres physiques en fonction de la température a été négligée. Pour l'eau, entre 20°C et 55°C , la densité diminue de 1.3% et la viscosité dynamique de 50% [42, 43]. L'effet de la variation de densité est négligeable sur la dynamique de bulle, pas la variation de viscosité dynamique (une variation de 7°C est observable entre les deux extrémités d'une bulle de longueur $1400 \mu\text{m}$, soit une variation de viscosité aux bornes de la bulle de 20%). Nous avons tout de même considéré que la viscosité dynamique ne variait pas.

Dilatation volumique et propriétés de mouillage

Le gaz a un coefficient de dilatation seize fois supérieur à celui de l'eau (*c.f.* TABLEAU 3.2) [68]. La dilatation thermique de l'air agrandit la longueur de la bulle de 10% pour une bulle de 1400 μm dans un canal cylindrique de diamètre interne 400 μm .

Matériaux	Eau	Air
	210×10^{-6}	3400×10^{-6}

TAB. 3.2: Coefficients de dilatation thermique des fluides utilisés

De plus les propriétés de mouillage varient en fonction de la température. L'air mouille à différents endroits la paroi du canal, comme on peut le voir en FIGURE 3.15, où l'on chauffe une bulle d'air dans de l'eau dans un canal de Hele-Shaw avec des parois en verre, dont la hauteur de cavité fait 40 μm .

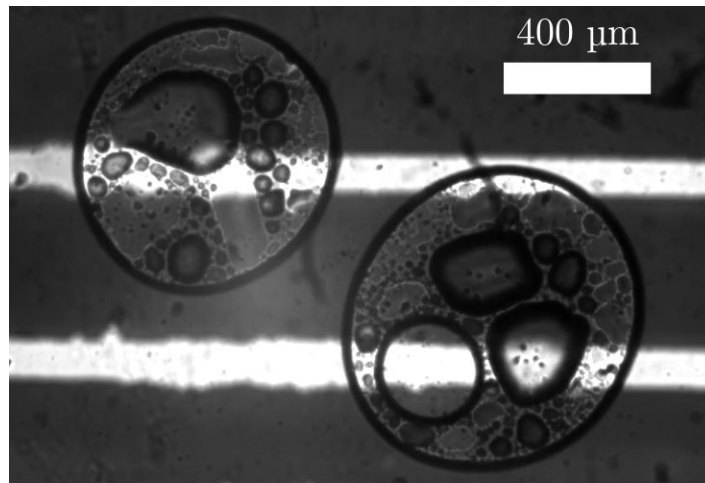
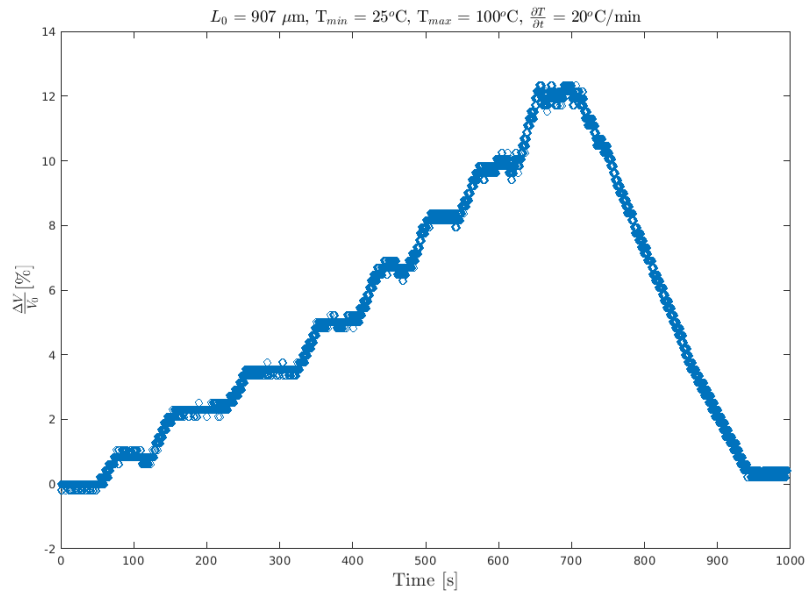


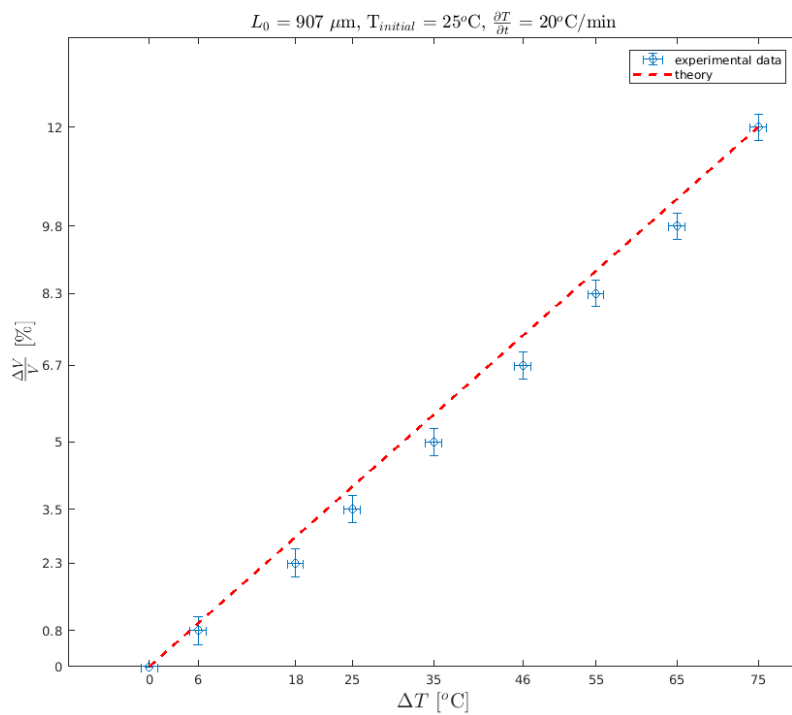
FIGURE 3.15: Deux bulles d'air dans de l'eau avec 2 CMC de SDS, sont chauffées à environ 40 °C dans une cavité de Hele-Shaw de 40 μm de hauteur.

Finalement, nous avons opté pour des gouttes d'huile fluoré (FC-72). En effet, contrairement aux huiles non fluorées qui peuvent être des solvants du PDMS, les huiles fluorées ne bouchent pas les entrées des canaux microfluidiques d'huile [16]. De plus, elles permettent d'avoir un coefficient de dilatation thermique plus faible que l'air (*c.f.* datasheet 3M SCIENCE. APPLIED TO LIFE², soit un coefficient de dilatation thermique de $1.6 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$). Son coefficient de dilatation reste tout de même huit fois plus grand que celui de l'eau, ce qui entraîne une élongation pour une goutte d'huile dans l'eau de 1400 μm dans un canal de diamètre interne de 400 μm de 5%.

2. <https://multimedia.3m.com/mws/media/1091998O/3m-fluorinert-electronic-liquids-for-heat-transfer-line-card.pdf>



(a) Évolution de la dilatation volumique de la goutte confinée au cours du temps. Les différents paliers sont à 25 °C pour le premier, puis il y a 31°C, 43°C, 50°C, 60°C, 71 °C, 80 °C, 90 °C et 100°C.



(b) Évolution de la dilatation volumique de la goutte confinée en fonction de la température

FIGURE 3.16: Mesures de la dilatation volumique de l'huile fluorée FC-72 pour une goutte d'huile dans de l'eau. Confinée dans un tube capillaire de 400 μm de diamètre.

En FIGURE 3.16 on retrouve le coefficient de dilatation thermique de la solution, c'est une observation indirecte qui permet de supposer que le traitement d'image (bornes des gouttes pour déterminer la vitesse) n'est pas altéré par la température, *c.f.* SECTION 2.2

On décide donc d'utiliser de l'huile fluorée (FC-72) pour la phase dispersée, de densité 1680 kg/m^3 , de coefficient de dilatation $1.6 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ et de viscosité cinématique $0.38 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$. Lors de la théorie, nous avons modélisé un cas bulle, et non goutte. Cependant, des problèmes de mouillage ont été observés lorsque la température dépassait 70°C .

Peut on faire l'approximation que la goutte d'huile fluorée se comporte comme une bulle dans notre cas d'étude ?

Influence de la viscosité de la phase dispersée

Teletzke *et al.* [90] se sont penchés sur l'influence du rapport de viscosité de la goutte sur celui de la phase externe $\lambda = \frac{\mu_{\text{goutte}}}{\mu_{\text{ext}}}$. En faisant l'hypothèse que le champ de vitesse dans la goutte est un écoulement Poiseuille sur toute l'épaisseur de la goutte, ils ont montré que pour $\lambda \ll Ca^{-2/3}$, la viscosité de la goutte n'influence pas l'épaississement du film.

Hodges *et al.* [28] on raffiné le modèle de Teletzke *et al.* en prenant un écoulement bidimensionnel dans la région de variation de courbure de la goutte proche de la surface ils ont montré que pour $\lambda \ll Ca^{-1/3}$, l'épaississement du film ne dépend plus de la viscosité de la goutte. Les nombres capillaires étudiés varient entre $[10^{-9}; 10^{-5}]$, les viscosités des liquides utilisés sont de $\mu_{\text{FC-72}} = 0.38 \times 10^{-3} \text{ [Pa.s]}$ et $\mu_{\text{eau}} = 0.89 \times 10^{-3} \text{ [Pa.s]}$. On a alors $Ca^{-1/3} = [46 \cdot 10^3]$ et le rapport de viscosité nous donne $\lambda = 0.4$.

On respecte bien les conditions pour être dans un régime où la viscosité de la goutte n'influe pas sur l'épaisseur du film de lubrification.

Mesures de tensiométrie

Les mesures ont été effectuées par le procédé de goutte pendante sur un DSA-30 de la société Krüss pour des gouttes de FC72 dans de l'eau MilliQ avec 2 CMC de SDS à différentes températures. Les résultats sont récapitulés en FIGURE 3.17. La dérivée de tension-superficielle en fonction de la température est environ de :

$$\frac{\partial \gamma}{\partial T} \simeq 1.2 \times 10^{-4} \text{ N/m.K}$$

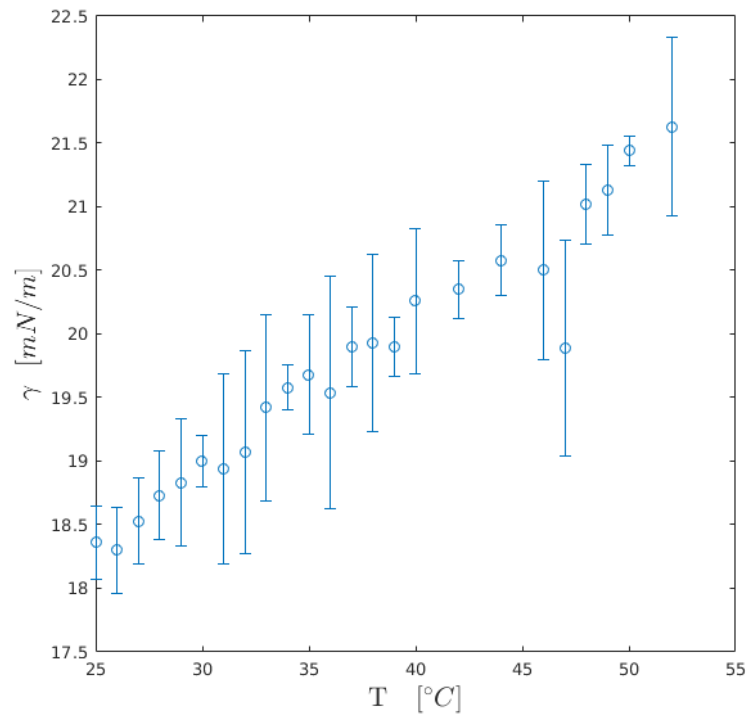


FIGURE 3.17: Tension superficielle FC72/eau + 2 CMC de SDS à différentes températures

Des mesures ont été effectués au laboratoire (*c.f.* FIGURE 3.18) étudiant l'évolution de la CMC en fonction de la température (pour du SDS). On se trouve toujours au dessus de la CMC dans nos conditions expérimentales.

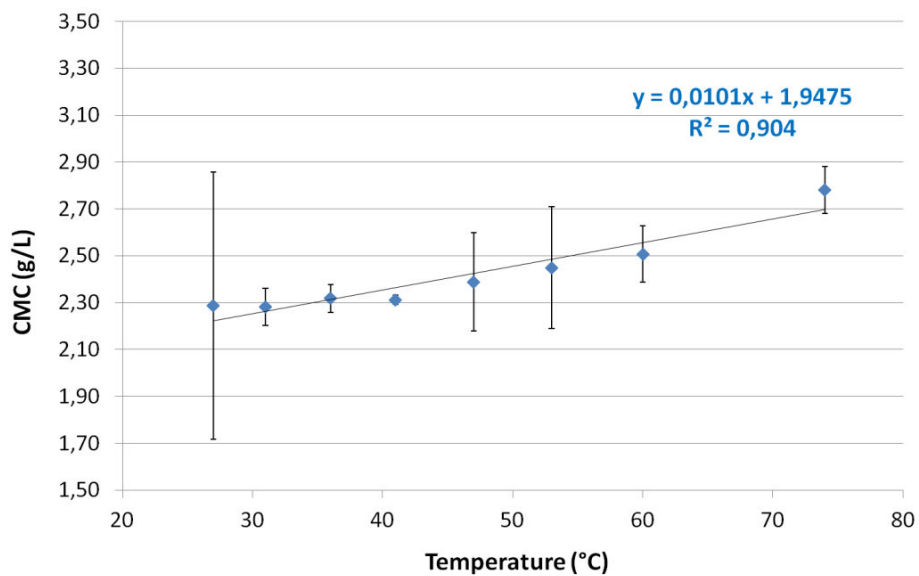


FIGURE 3.18: Évolution de la CMC en fonction de la température pour le cas du SDS.

1.4 Génération de gouttes

On utilise une puce microfluidique, fabriquée par les procédés usuels (*c.f.* ANNEXE en SECTION 2, 3 et 4). Les gouttes formées sont envoyées dans le tube capillaire en verre par un tube en TYGON. Les fluides sont mis en mouvement par un contrôleur en pression FLUIGENT piloté par un ordinateur.

Puce microfluidique

La génération de gouttes est réalisée avec une puce microfluidique (*c.f.* FIGURE 3.19) comportant une T-junction [35, 34, 25, 79]. Les serpentins après les entrées de phases continue et dispersée servent à augmenter la résistance hydraulique des canaux afin d'avoir des gouttes qui se dirigent vers la sortie (elles préfèrent prendre le chemin avec la résistance hydraulique la plus faible).

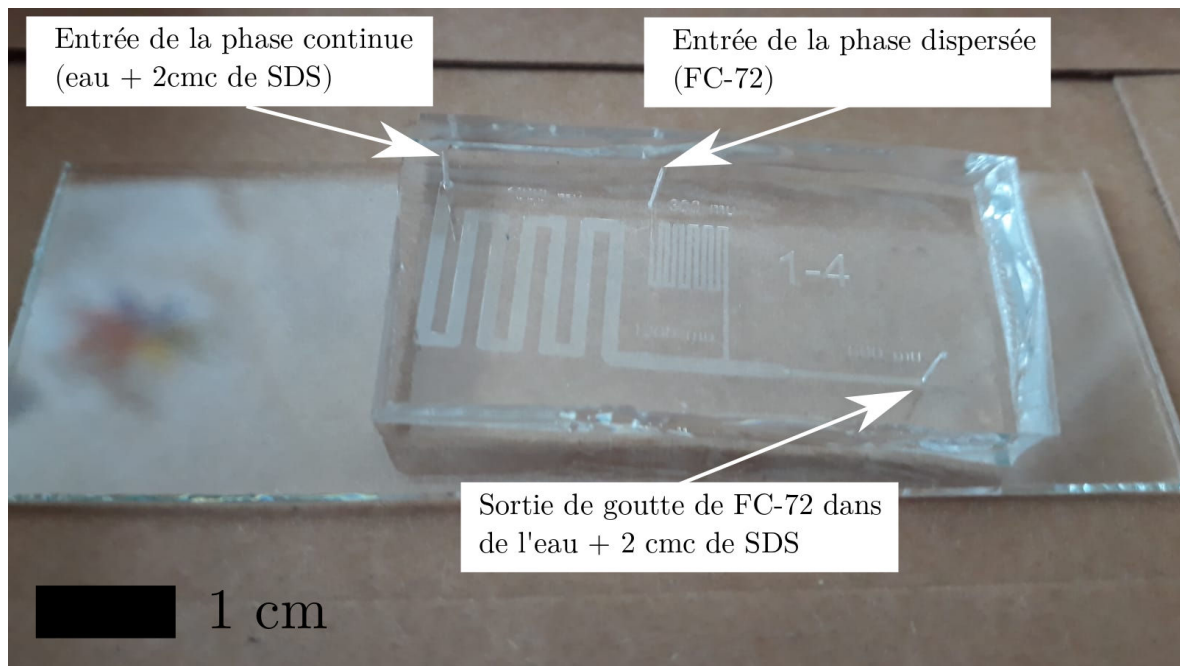


FIGURE 3.19: Puce PDMS utilisée pour générer les gouttes.

On veut étudier une seule goutte à la fois et qu'elle se déplace lentement ($U_d = [10 - 200] \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$). On a déterminé le ratio entre la largeur du canal de la phase dispersée w_{dis} et de la phase externe w_{ext} permettant de générer des gouttes de tailles contrôlées[58, 99], entre $400 \mu\text{m}$ et $1500 \mu\text{m}$ de longueur dans un tube capillaire en verre de $200 \mu\text{m}$ de rayon (*c.f.* FIGURE 3.20).

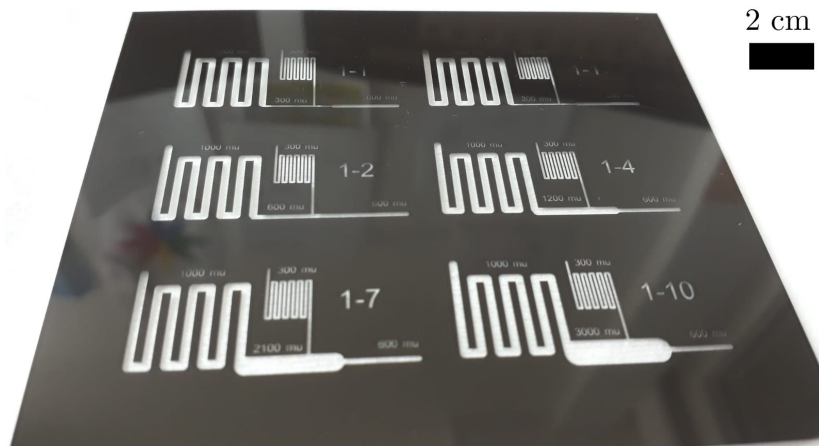


FIGURE 3.20: Masque des différents moules avec des ratios $w_{\text{dis}} - w_{\text{ext}}$ de 1 – 1, 1 – 2, 1 – 4, 1 – 7 et 1 – 10.

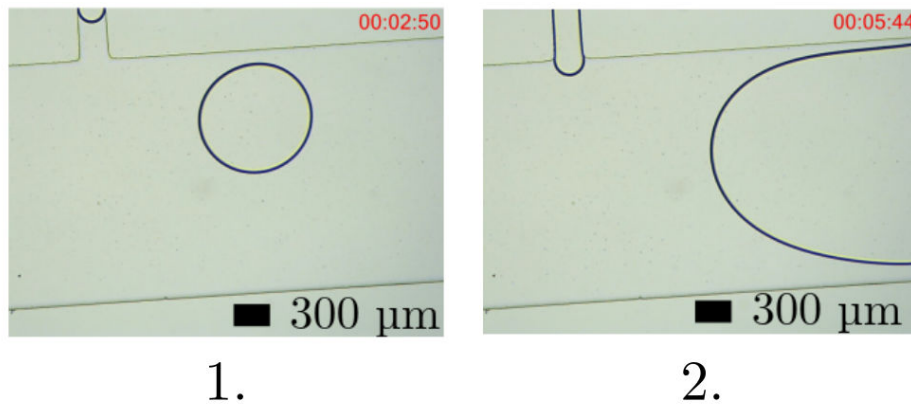


FIGURE 3.21: Génération de gouttes de différentes tailles en fonction des pressions des phases dispersée et externe. **1.** $p_{\text{dis}} \simeq 100$ mbars et $p_{\text{ext}} \simeq 900$ mbars, **2.** $p_{\text{ext}} \simeq 100$ mbars et $p_{\text{dis}} \simeq 900$ mbars.

Le rapport retenu est le ratio 1-4. En fonction des pressions appliquées, on peut obtenir différents régimes de génération de gouttes. Par exemple, lorsque la pression de la phase dispersée est inférieure à celle de la phase continue, on obtient des diamètres de gouttes petits par rapport à la largeur du canal (*c.f.* FIGURE 3.21 **1.**). Dans le cas où c'est la pression de la phase continue qui est inférieure à celle de la phase dispersée on a des diamètres de gouttes grands par rapport à la largeur du canal (*c.f.* FIGURE 3.21 **2.**). Pour ma gamme de gouttes, les pressions ont varié de $p_{\text{ext}} = [100 - 900]$ mbars, $p_{\text{dis}} = [100 - 900]$ mbars, la gamme de longueur de goutte est alors de $[400 - 1500]$ μm .

On a ainsi déterminé le rapport de pression pour les phases continues et dispersées en fonction de la taille de goutte voulue. Une fois la goutte générée, on la transporte au tube capillaire en verre par l'intermédiaire d'un tube flexible en TYGON.

1.5 Connectiques de raccordement

Les tubes en TYGON sont hydrophobes, les gouttes d'huile non confinées sont donc adsorbées à la surface. Elles ne sont pas confinées, donc le liquide de la phase externe passe entre la goutte adsorbée et la paroi du tube. On peut augmenter le débit de la phase externe, le film de lubrification entre la goutte et la paroi va augmenter et la goutte ne va pas adhérer au tube. Mais nous voulons observer des gouttes qui se déplacent lentement. On a choisi de prendre des tube en TYGON dont le diamètre interne est petit ($250 \mu\text{m}$ de diamètre). Les gouttes sont alors confinées, bouchent le canal et elles n'adhèrent plus aux parois du tube flexible (*c.f.* FIGURE 3.22).

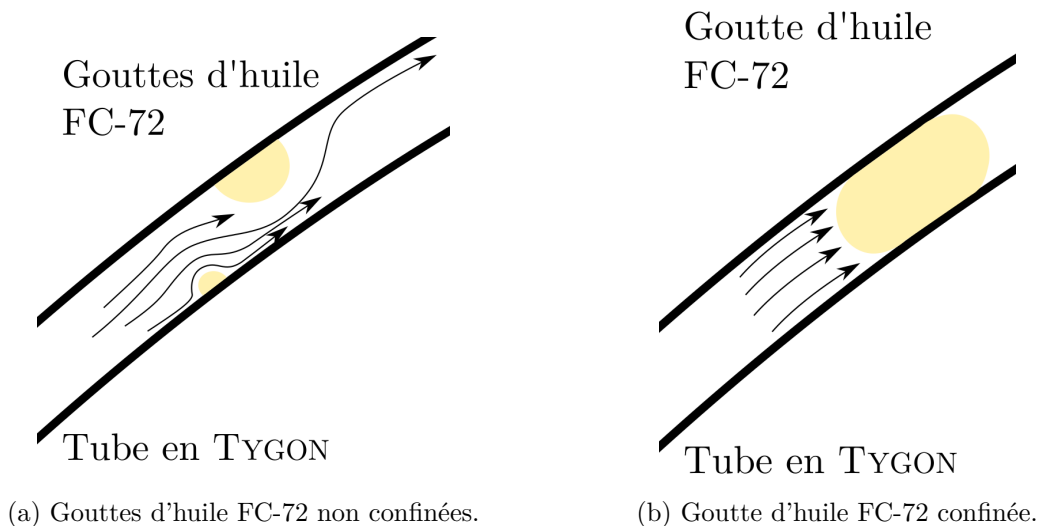


FIGURE 3.22: Intérêt du confinement des gouttes d'huile dans les tubes en TYGON. Les flèches noires représentent les lignes de courant de la phase externe (ici de l'eau avec 2 CMC de SDS).

Le tube en TYGON étant fin et flexible, il est difficile de le rentrer dans la puce en PDMS. On a réalisé une liaison entre le tube flexible et un tube métallique avec un tube en PDMS. Pour réaliser une connection étanche on a percé un tube en PDMS de diamètre interne inférieur au diamètre externe du tube en TYGON et du tube métallique. Il permet ainsi de connecter facilement le tube flexible à la puce en PDMS. On peut alors connecter les tubes en TYGON à la puce, au tube capillaire en verre et aux tubes de réservoir de liquides (*c.f.* FIGURE 3.23). Lorsque l'on a trouvé la pression idéale pour la génération de goutte (en terme de taille de goutte générée), les gouttes sont générées à intervalles réguliers. Ne voulant étudier qu'une seule goutte à la fois, nous avons rajouté une vanne de contrôle manuelle en amont de l'entrée d'huile fluorée FC-72.

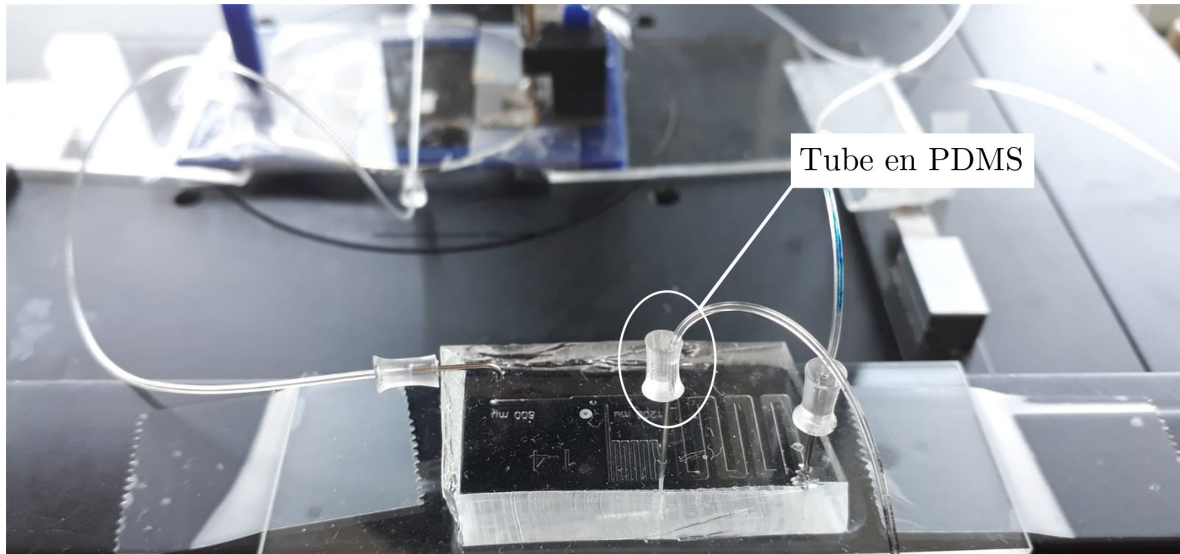


FIGURE 3.23: Connection des tubes en TYGON à la puce microfluidique

1.6 Contrôle en pression des fluides

Le contrôle en pression des liquides d'alimentation se fait à l'aide de microfluidic flow control systems (MFCS) de la marque FLUIGENT. Les débits sont mesurés à l'aide de contrôleurs en débits (FLOW UNITS) par l'intermédiaire d'un FLOWBOARD connecté à un ordinateur. Les pressions de commande sont données par l'utilisateur sur le logiciel relié au MFCS.

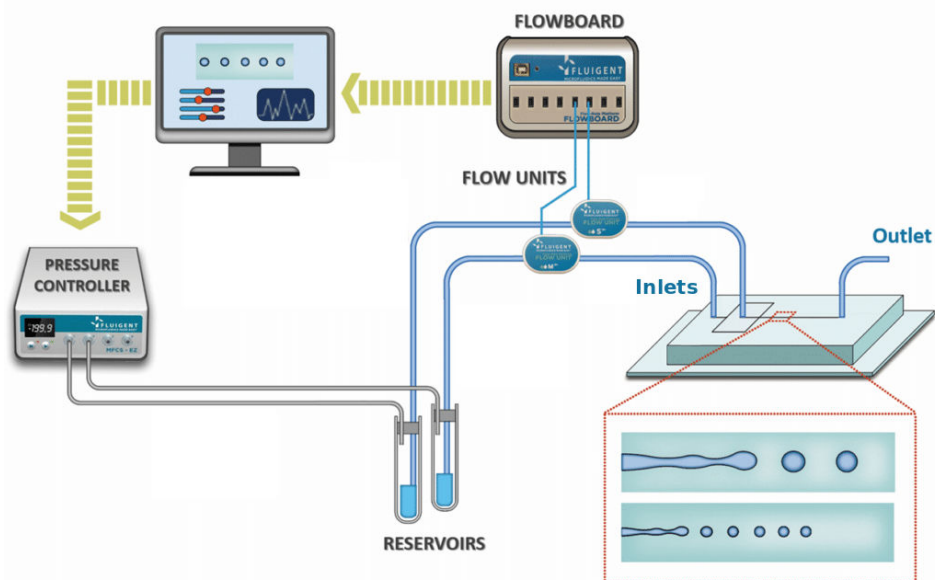
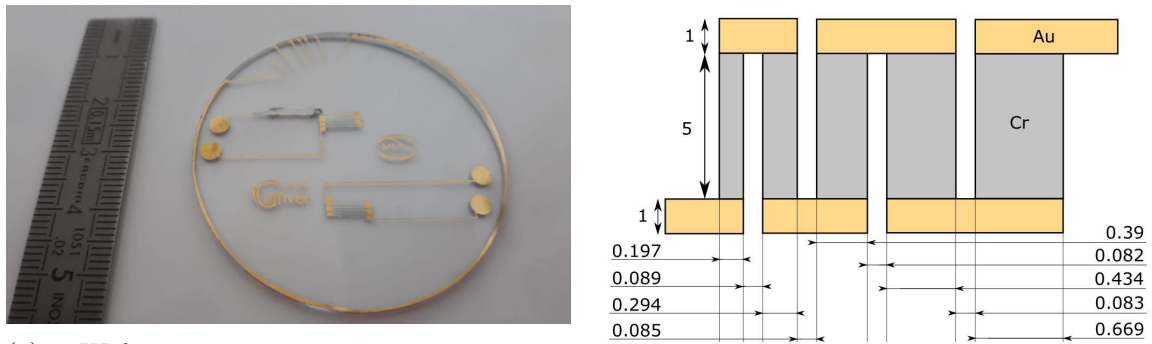


FIGURE 3.24: Schéma du principe de fonctionnement du contrôle en pression

1.7 Gradient thermique

Obtention du gradient thermique constant

En 2009, B. Selva a développé un design de résistance [75] permettant d'obtenir un gradient thermique linéaire sur une distance d'environ 2 mm (*c.f.* FIGURE 3.25).



(a) Wafer en verre comportant une résistance obtenue par les procédés usuels de softlithographie.

(b) Schéma de caractérisation de la résistance. Les dimensions sont données en mm.

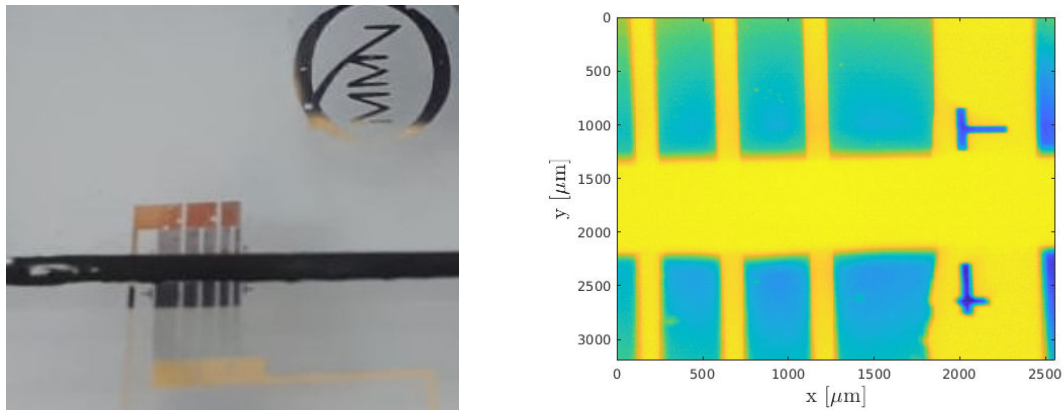
FIGURE 3.25: Résistance permettant d'obtenir un gradient thermique

Les wafers sont achetés déjà revêtus des couches de chrome (15 nm) et d'or (150 nm). On réalise les résistances par lithographie avec de la résine positive (S1818) et une étape d'attaque chimique (chromium et gold etching). La résistance obtenue a une valeur d'environ 5.3 k Ω .

Mesures du gradient thermique

Les mesures ont été effectuées à l'aide d'une caméra thermique FLIR A6500sc, permettant de mesurer la température sur une zone de 2560x3200 μm^2 avec une résolution spatiale de 5 μm . On place notre tube capillaire en verre recouvert d'un corps noir (pour avoir la température absolue en haut du canal) sur la résistance (*c.f.* FIGURE 3.26a). En faisant le focus sur le wafer, on obtient la FIGURE 3.26b (qui a été exportée sous MATLAB).

Pour les mesures thermiques, on focalise sur le haut du tube capillaire en verre (face supérieure). On peut tracer l'évolution de la température pour une puissance électrique donnée (*c.f.* FIGURE 3.27) selon une ligne (représentée par la ligne et la courbe bleue) et en moyenne selon la même direction que la ligne et moyennée selon la direction perpendiculaire (représentée par le rectangle rouge et la courbe rouge). On trace en FIGURE 3.28 l'évolution de la courbe de température au cours du temps, avec une courbe toutes les secondes pendant cinq minutes (le temps typique d'une expérimentation). On étudie l'évolution de la température maximale et du gradient thermique au cours du temps (*c.f.* FIGURE 3.29).



(a) Tube capillaire en verre (recouvert d'une couche de corps noir), déposé sur la résistance. (b) Image de la caméra thermique focalisant sur la surface du wafer.

FIGURE 3.26: Mesures thermique avec la caméra FLIR

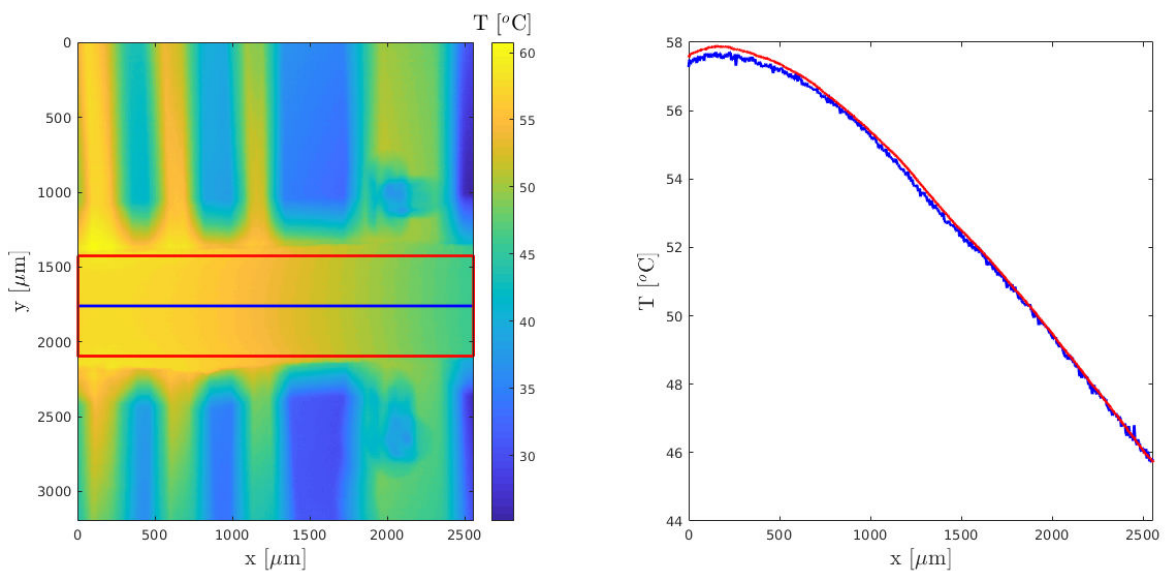


FIGURE 3.27: Image de la caméra thermique focalisant sur le haut du tube capillaire en verre recouvert d'un corps noir. Avec une résistance d'environ $5 \text{ k}\Omega$, une tension aux bornes de la résistance de 30 V , soit une puissance électrique de 180 mW .

Désormais on peut effectuer ces mesures pour différentes puissances électriques (*c.f.* FIGURE 3.30). Plus la puissance électrique augmente, plus le gradient thermique augmente. La relation est linéaire entre 0 et 180 mW de puissance électrique. En prenant le gradient thermique, une minute après avoir allumé le générateur, le gradient aura atteint une valeur constante alors que la température maximale (au sommet de la courbe du profil de température) augmente jusqu'à environ quatre minutes (*c.f.* FIGURE 3.29b).

Pour la suite de l'étude, on s'est placé dans le cas où la puissance électrique fournie est de

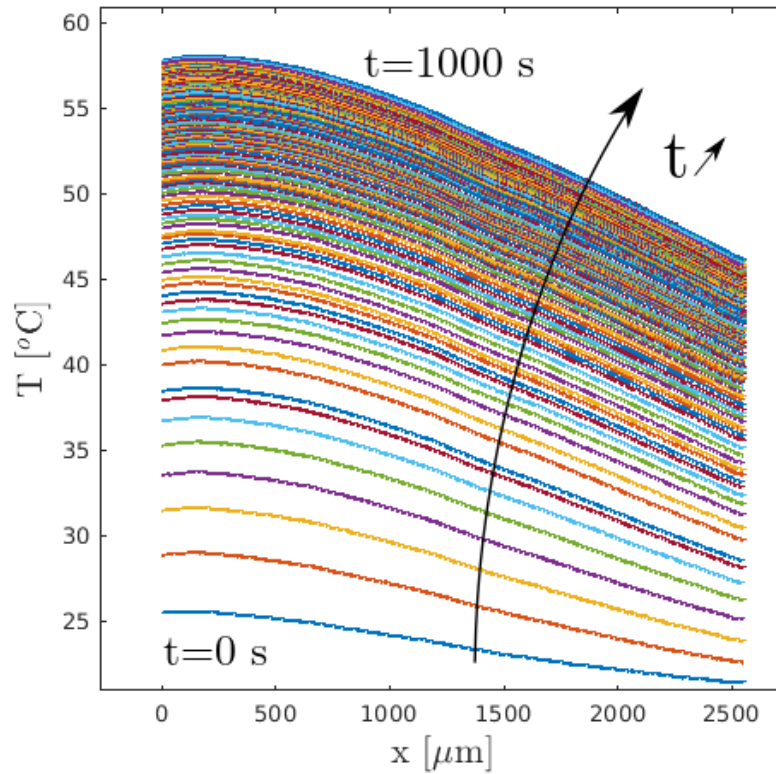


FIGURE 3.28: Évolution de la courbe de température moyenne au cours du temps. Avec un pas de temps de 1 s entre chaque acquisition.

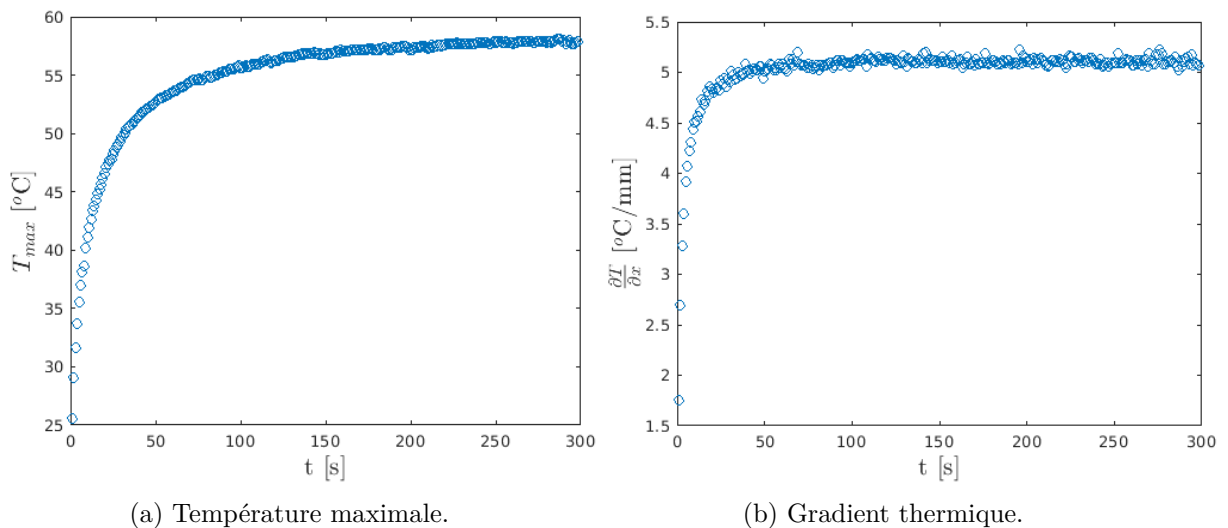
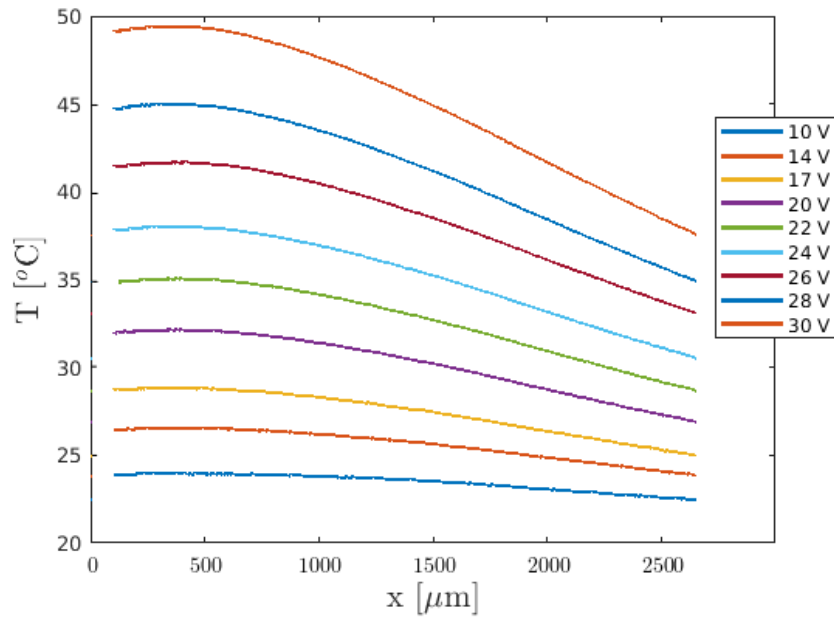
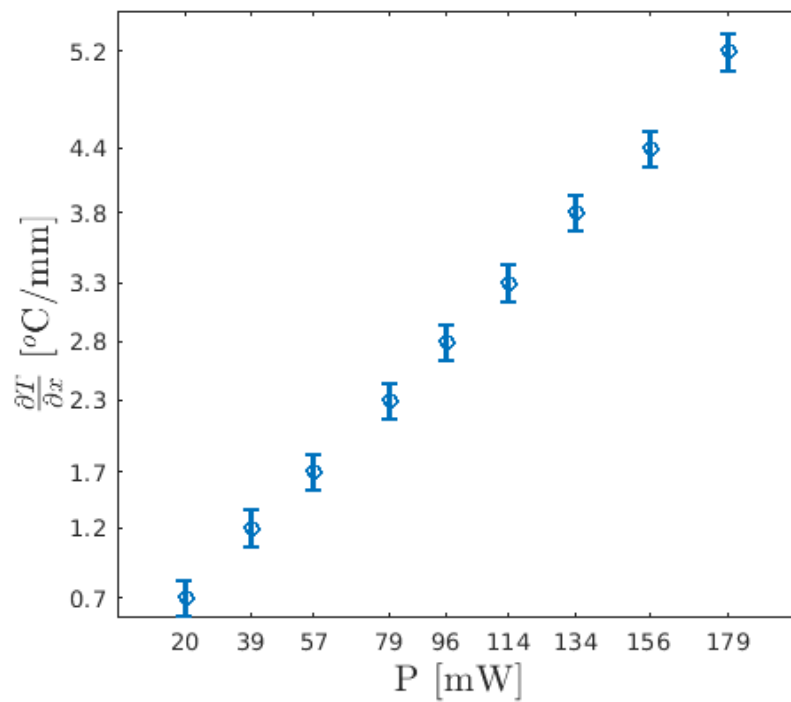


FIGURE 3.29: Évolution au cours du temps des paramètres caractéristiques de la courbe.

179 mW, soit un gradient de température de $5.2 \text{ K} \cdot \text{mm}^{-1}$. La dérivée de tension superficielle en fonction de la température étant de $\frac{\partial\gamma}{\partial T} \simeq 1.2 \times 10^{-4} \text{ N/m} \cdot \text{K}$, on a une contrainte tangentielle à l'interface de $\frac{\partial\gamma}{\partial x} = 0.6 \text{ Pa}$.



(a) Profils de températures à différentes puissances électriques.



(b) Évolution du gradient spatial de température en fonction de la puissance électrique.

FIGURE 3.30: Dépendance de la puissance électrique sur le profil de température et le gradient thermique.

2 Traitement des données

Une fois les gouttes générées et envoyées dans le tube capillaire en verre, on relève le débit de fluide externe à l'aide des FLOW UNITS (*c.f.* FIGURE 3.24), on mesure la vitesse des gouttes par traitement sous IMAGEJ puis on analyse les images sous MATLAB. Lors des mesures avec un gradient thermique, on attend une minute avant de faire les mesures afin d'avoir un gradient thermique constant durant les mesures (*c.f.* FIGURE 3.29).

2.1 Mesure de débit de la phase externe

Tout d'abord on commence par déterminer la résistance hydraulique du canal en mesurant les pressions appliquées et les débits mesurés (*c.f.* FIGURE 3.31).

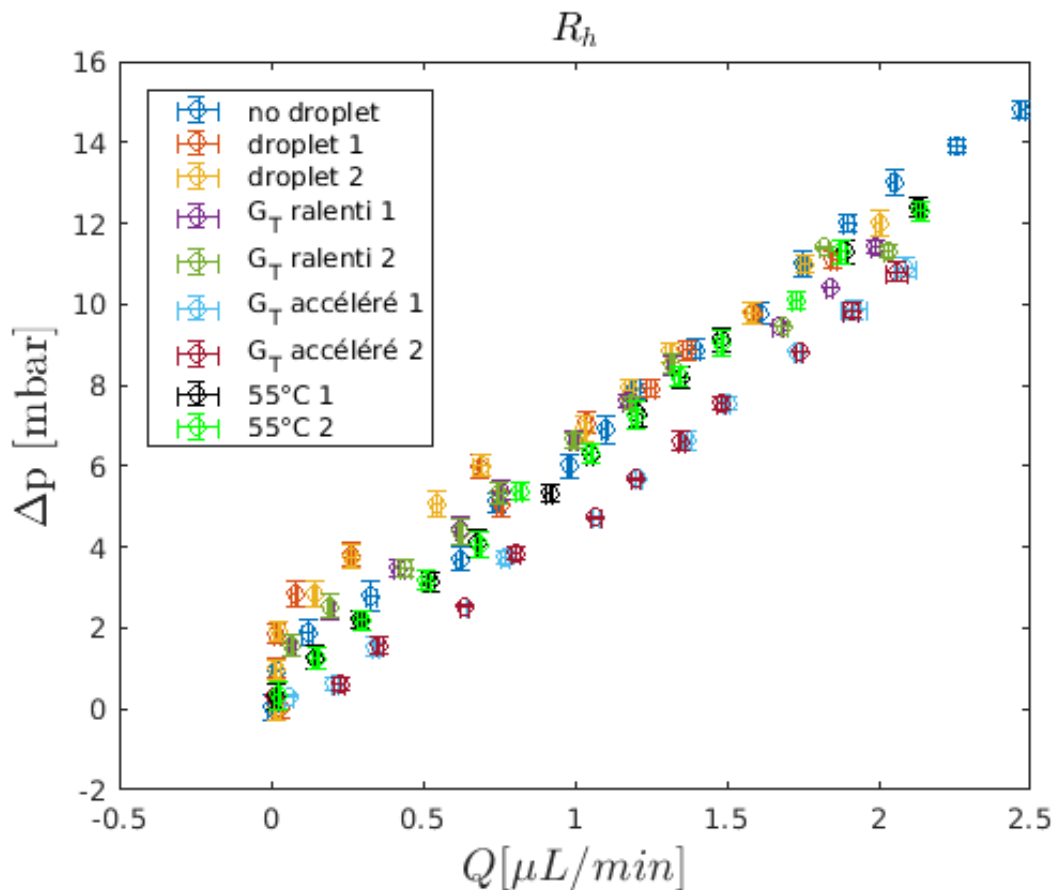


FIGURE 3.31: Différentes résistances hydrauliques du canal pour un tube capillaire de diamètre interne de $400 \mu\text{m}$. Les mesures ont été effectuées sans goutte, avec une goutte dans un sens, puis dans le sens opposé, avec seulement les contraintes de mises en mouvement volumique (et pas surfacique), avec les contraintes de mise en mouvement de signes opposées ($\text{Ma} < 0$), avec les contraintes de mise en mouvement de même signes ($\text{Ma} > 0$) et avec une température homogène correspondant à la température maximale pour un gradient thermique (*c.f.* FIGURE 3.32).

On peut remarquer que la résistance hydraulique varie peu (moins de 5% d'erreur sur $R_h = \frac{\Delta p}{Q}$, à savoir que c'est l'erreur sur le coefficient directeur de la droite et non celle de l'ordonnée à l'origine) en fonction des conditions expérimentales. La résistance hydraulique des connectiques est donc supérieure à celle de notre système tube capillaire en verre avec phase continue et goutte d'huile. Le paramètre pertinent d'étude est donc le débit mesuré et non la pression imposée.

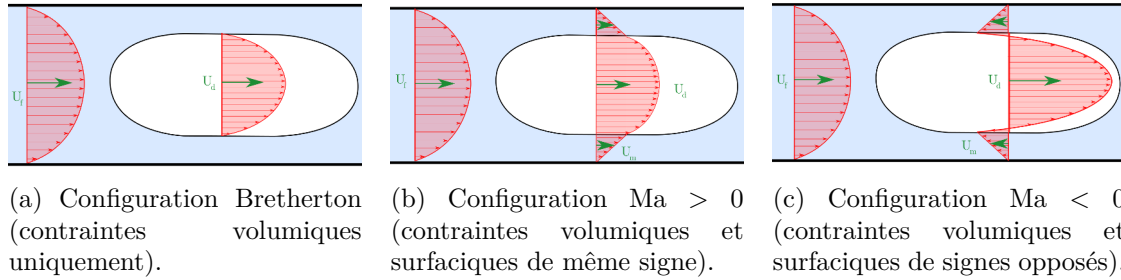


FIGURE 3.32: Schéma représentant les différentes configurations de mises en mouvement de la goutte.

Pour la mesure de débit, on a accès aux données du FLOW UNIT de la phase externe. L'incertitude sur la mesure est obtenue par une analyse statistique d'une série de mesures (*c.f.* ANNEXE 10 et FIGURE 3.33).

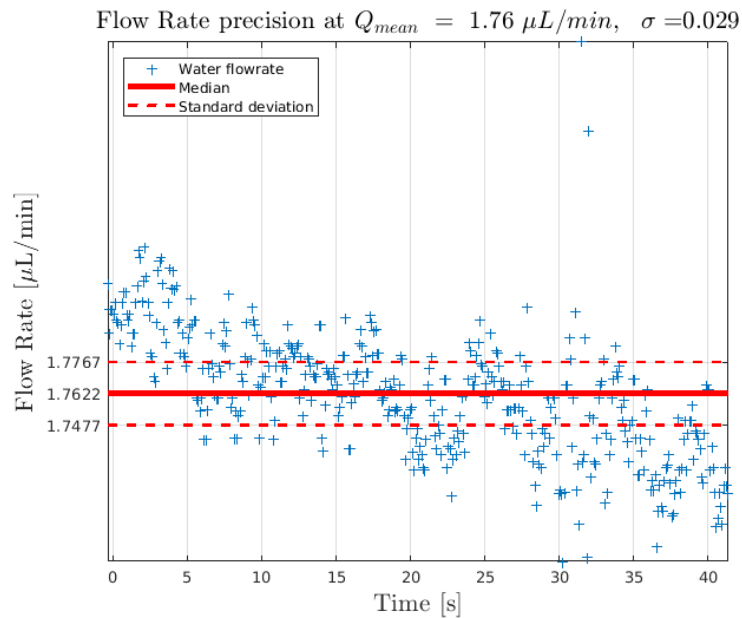


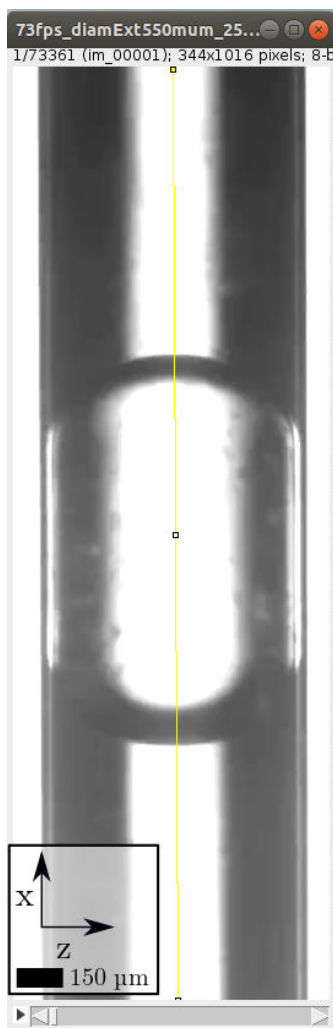
FIGURE 3.33: Exemple de détermination de la valeur moyenne et de l'incertitude de mesure liée au débit de la phase externe. Données provenant du logiciel FLUIGENT et traitées sous MATLAB.

2.2 Mesure de vitesse de goutte

Les gouttes sont observées à l'aide d'un microscope à transmission LEICA DM IRB.

Traitement sous ImageJ

Les images sont exportées en une séquence d'images en format .tiff, puis traitées sous IMAGEJ (*c.f.* FIGURE 3.34).



(a) Reslice de l'image sous IMAGEJ.



(b) Image obtenue après Reslice, chaque pixel selon l'axe temporel t représente une évolution temporelle de $\delta t = \frac{1}{\text{fps}}$.

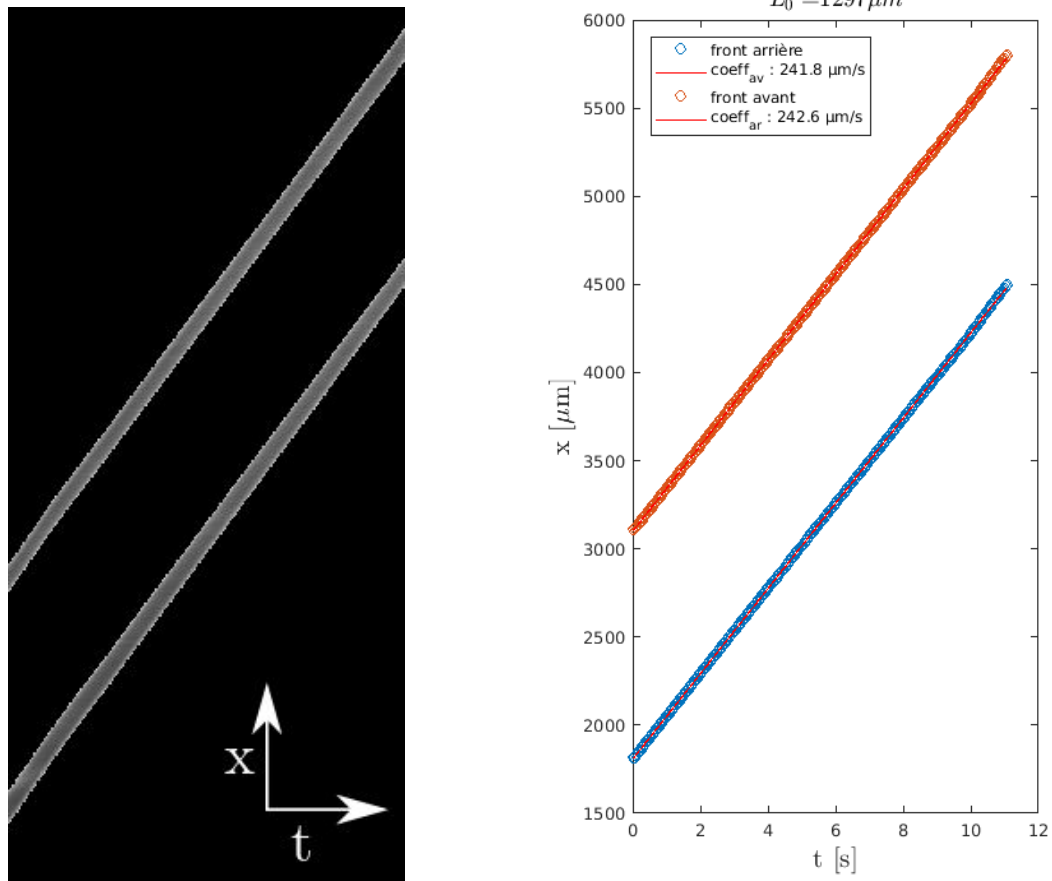
FIGURE 3.34: Traitement d'image sous IMAGEJ.

On mesure le nombre de pixel du diamètre externe du tube capillaire en verre, pour pouvoir redimensionner (le diamètre externe du tube capillaire est de $550 \mu\text{m}$). L'axe temporel est redimensionné en prenant en compte que chaque pixel correspond à un pas de temps égal à

l'inverse de la fréquence d'acquisition de la caméra numérique. On analyse ensuite l'image reslicée sous MATLAB.

Analyse sous Matlab

On se place dans la zone où la vitesse est constante pour traiter l'image et obtenir la vitesse moyenne de la goutte (*c.f.* FIGURE 3.35).



(a) Détection des contours des fronts de la goutte sous MATLAB. (b) Détermination de la vitesse de la goutte sous MATLAB.

FIGURE 3.35: Analyse d'image sous MATLAB.

Pour la valeur de l'incertitude, on utilise l'analyse statistique de la série de mesures de la position des fronts avant et arrière de la goutte, puis par propagation d'incertitude (*c.f.* ANNEXE 10 et FIGURE 3.33) on obtient l'incertitude de la vitesse en multipliant par la fréquence d'acquisition d'images de la caméra numérique.

On effectue alors ces mesures pour différents débits de phase externe et trois gradients thermiques ($G_T = [-5, 0, 5] \text{ } ^\circ\text{C}\cdot\text{mm}^{-1}$) pour différentes tailles de gouttes.

3 Résultats

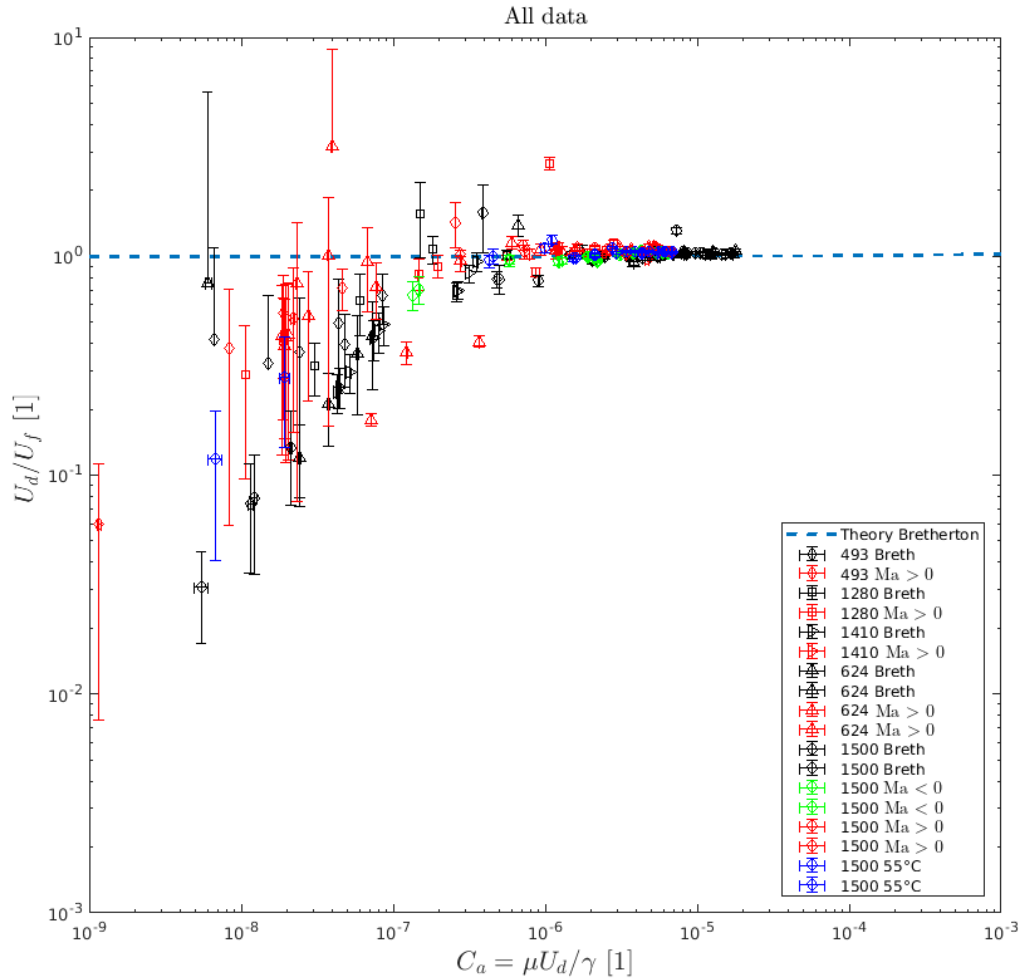


FIGURE 3.36: Représentation des résultats expérimentaux : $\frac{U_d}{U_f} = f(Ca)$.

En FIGURE 3.36 est représenté les valeurs de $\frac{U_d}{U_f}$ (la mobilité), le rapport entre la vitesse moyenne de la goutte U_d et la vitesse moyenne de la phase externe U_f en fonction du nombre capillaire Ca , cela pour des gouttes de différentes longueurs (493 μm , 624 μm , 1280 μm , 1410 μm , 1500 μm), avec des gradients thermiques de $-5 \text{ }^\circ\text{C}\cdot\text{mm}^{-1}$ (c'est-à-dire que nous sommes dans la configuration $\text{Ma} > 0$ de la FIGURE 3.32b), de $0 \text{ }^\circ\text{C}\cdot\text{mm}^{-1}$ (Breth pour configuration de Bretherton de la FIGURE 3.32a) et de $5 \text{ }^\circ\text{C}\cdot\text{mm}^{-1}$ (pour la configuration $\text{Ma} < 0$ de la FIGURE 3.32c). Nous avons également réalisé une expérience à température constante de 55 $^\circ\text{C}$ pour voir l'influence de la dilatation thermique de la goutte dans le tube capillaire en verre (55 $^\circ\text{C}$ étant la température maximale dans le tube capillaire pour un gradient thermique de -5 ou $5 \text{ }^\circ\text{C}\cdot\text{mm}^{-1}$).

Discussion de la FIGURE 3.36

On remarque deux zones sur cette FIGURE, une zone sur laquelle la théorie de Bretherton est bien en accord avec les résultats expérimentaux, pour des nombres capillaires supérieurs à 10^{-6} . Et une zone où les valeurs expérimentales sont inférieures aux valeurs prédites par la théorie, pour des nombres capillaires inférieurs à 10^{-6} .

Zone : $Ca > 10^{-6}$

L'effet de la contrainte interfaciale sur la dynamique de goutte n'est pas observable dans cette zone. Le gradient thermique généré par notre système microfluidique semble ne pas impacter la dynamique de la goutte pour ces nombres capillaires. Il faudrait augmenter la valeur du gradient de tension superficielle. Lorsque nous augmentions la tension aux bornes de la résistance, la température maximale *in situ* dépassait les 90°C et générerait des problèmes de mouillage à la surface du verre.

Le tensioactif a bien un comportement *soluble*, en effet on ne remarque pas d'écart entre la mobilité mesurée et la mobilité théorique de Bretherton sans tensioactifs insolubles ou peu solubles.

Pour cette plage de nombres capillaires, on peut penser à un système de chauffe plus efficace. Avec un gradient thermique plus important, mais une zone de chauffe plus petite. Ici nous étions limités par la taille de la résistance qui était fixe ($5 \times 2 \text{ mm}^2$). On peut également descendre à des diamètres de tube capillaire plus petits. Le problème avec la réduction de taille est l'augmentation du rapport surface sur volume et donc les forces de friction dans le film de lubrification seront encore plus importantes.

Zone : $Ca < 10^{-6}$

Indépendamment de la contrainte interfaciale sur la dynamique de goutte, on observe une modification de dynamique de goutte par rapport à la théorie de Bretherton sans tensioactifs insolubles ou peu solubles. On remarque une légère différence entre les expériences type Bretherton (points noirs) et les expériences dont le gradient thermique donne un nombre de Marangoni positif (points rouges). De cette remarque, deux questions se posent. La première est, "*pourquoi l'expérience type Bretherton s'écarte du modèle ?*" et la seconde est "*que signifie une diminution de la mobilité pour une baisse du nombre capillaire ?*".

Ces deux questions sont liées. Pour y répondre, on peut reprendre l'expression de la mobilité de Bretherton dans le cas du régime mixte :

$$\frac{U_d}{U_f} \simeq \frac{1 + 1.28(3Ca)^{2/3} |1 + 4.63 \times Ma|^{2/3}}{1 + Ma \times 1.28(3Ca)^{2/3} |1 + 4.63 \times Ma|^{2/3}}$$

Pour le cas Bretherton, nous avons $Ma = 0$, donc $\frac{U_d}{U_f} = 1 + 1.28(3Ca)^{2/3}$, n'oublions pas que ce nombre capillaire représente l'épaisseur du film de lubrification, soit la relation en fonction de h_∞ :

$$\frac{U_d}{U_f} \simeq 1 + 2\frac{h_\infty}{R}$$

À de faibles nombres capillaires, l'épaisseur de lubrification tend vers zéro, or si on prend en compte la pression de disjonction, l'épaisseur minimale définie est de 70 nm. Et en effet, si on prend la formule de l'épaisseur du film de lubrification pour le cas Bretherton ($h_\infty = 0.643R(3Ca)^{2/3}$), une épaisseur de 70 nm amène à un nombre capillaire de 4×10^{-6} . Ce qui correspond à notre limite d'environ $Ca < 10^{-6}$. Si l'épaisseur du film de lubrification ne peut pas descendre en deçà de 70 nm, comment évolue la vitesse de la bulle, et donc le nombre capillaire? On montre que l'étude de la mobilité de Bretherton $\frac{U_d}{U_f}$ en fonction du nombre capillaire $Ca = \frac{\mu U_d}{\gamma}$, sort du cadre de l'analyse de type Bretherton et doit prendre en compte une épaisseur fixée par les interactions moléculaires pour des épaisseurs de film de lubrification inférieures à 70 nm.

Cet argument varie légèrement lorsque l'on passe au régime mixte, où l'épaisseur du film de lubrification est donnée par l'expression $h_\infty = 0.643R(3Ca)^{2/3} \left| 1 + 4.63 \times \frac{U_m}{U_d} \right|^{2/3}$.

Les données sont représentées en 2D, mais on peut les représenter en 3D sur la surface théorique déterminée au CHAPITRE 2, SECTION 2 (*c.f.* FIGURES 3.37 et 3.38).

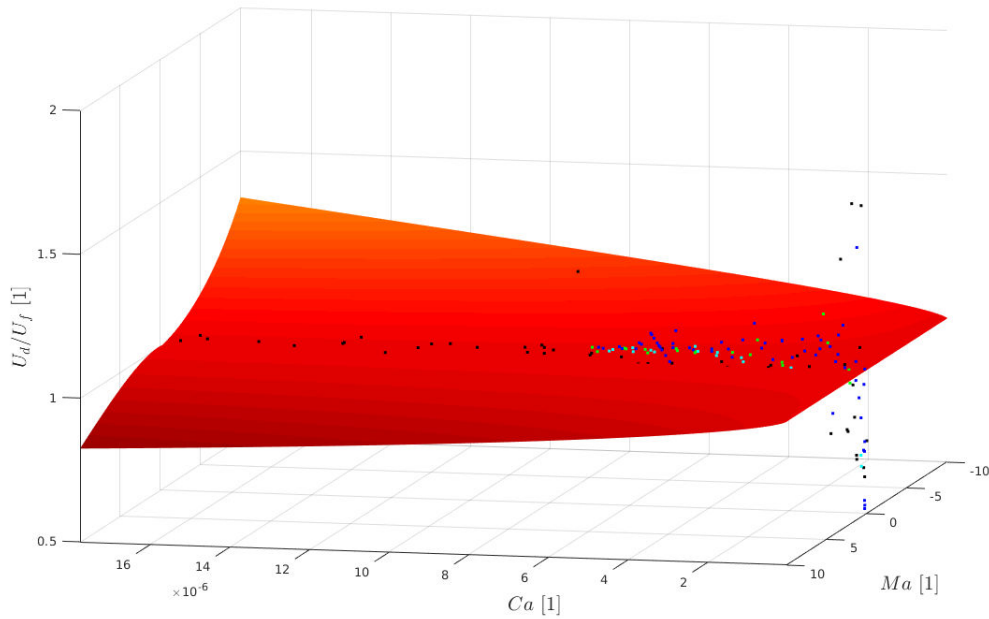


FIGURE 3.37: Comparaison théorie et expérience. Représentation linéaire

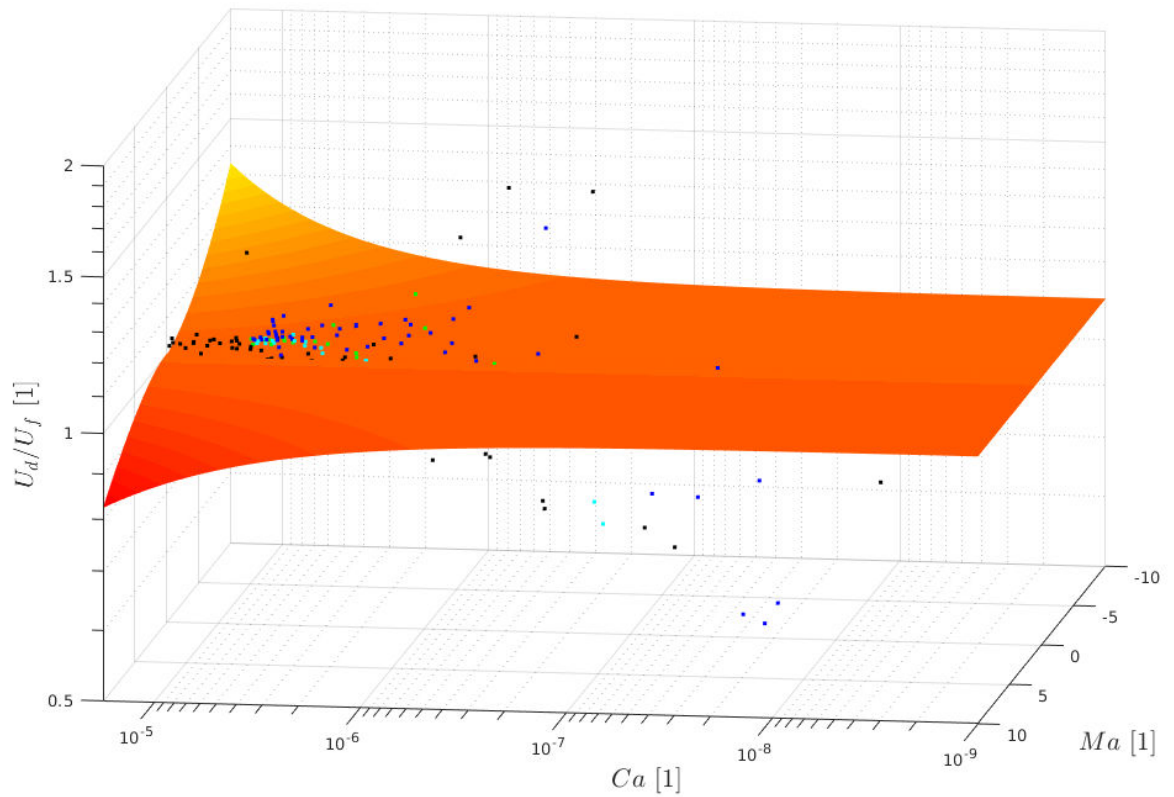


FIGURE 3.38: Comparaison théorie et expérience. Représentation semilogarithmique

Comme vu au CHAPITRE 2, SECTION 2, SOUS SECTION 2.3, il est difficile d'exploiter des données représentant la mobilité de Bretherton $\frac{U_d}{U_f}$. Nous allons donc représenter la vitesse moyenne de la goutte U_d , en fonction de la vitesse moyenne dans la phase externe U_f . Les expériences ont été réalisées pour seulement trois gradients thermiques ($-5\text{ }^\circ\text{C}$, $0\text{ }^\circ\text{C}$ et $5\text{ }^\circ\text{C}$), il est donc difficile de tirer des conclusions pertinentes. C'est pour cela qu'en FIGURE 3.39 on représente la vitesse moyenne de goutte U_d en fonction de la vitesse moyenne de la phase externe U_f (et des longueurs de gouttes, et du profil de température dans le tube capillaire).

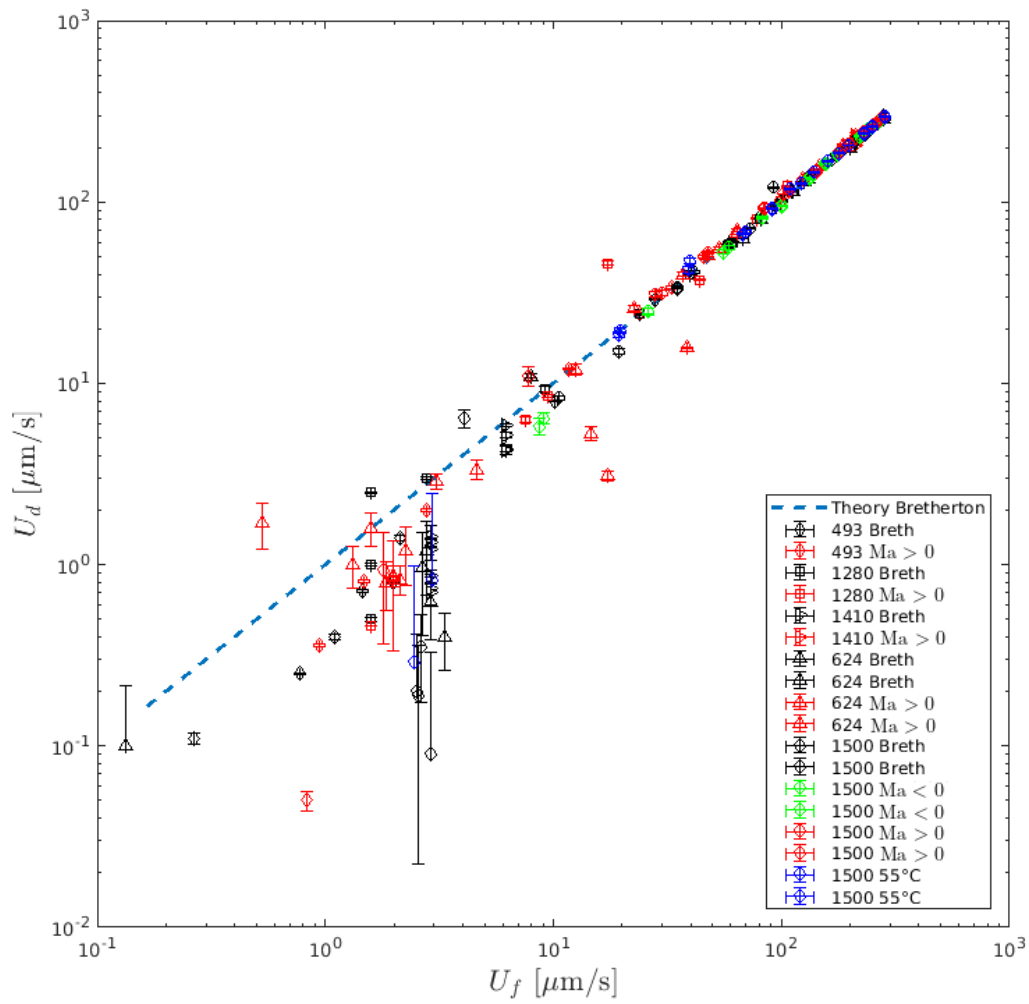


FIGURE 3.39: Représentation logarithmique des résultats expérimentaux pour : $U_d = f(U_f)$.

Malheureusement, nous n'avons pas pu résoudre le système d'équation nous donnant les expressions de $U_d = f_1(U_f; \frac{\partial \gamma}{\partial x})$ et $h_\infty = f_2(U_f; \frac{\partial \gamma}{\partial x})$. Il est donc difficile de comparer expérience et théorie.

4 Conclusion

Les processus de fabrication des puces à cellules de Hele-Shaw ne permettent pas encore d'obtenir des parois non tiltées, ce qui empêche la fabrication d'un système modèle pour notre étude. Le protocole mis au point lors de cette thèse permet d'appliquer un gradient thermique dans un canal microfluidique, sans le déformer thermomécaniquement (donc sans gradient de confinement). Le système microfluidique ainsi fabriqué permet d'étudier la dynamique de goutte en présence de tensioactifs solubles (SDS à 2 CMC) avec un gradient thermique local de $5.2^\circ\text{C}\cdot\text{mm}^{-1}$, générant ainsi un gradient de tension superficielle de $\frac{\partial\gamma}{\partial x} = 0.6 \text{ Pa}$. Les problèmes de mouillage et de dilatation volumique ont été résolus en utilisant une huile fluorée qui dans nos conditions expérimentales se comporte comme de l'air ($\lambda = \frac{\mu_{\text{FC-72}}}{\mu_{\text{eau}}} \ll Ca^{-1/3}$), si tant est que la température maximale dans le canal microfluidique n'excède pas 70°C .

La plage de gradient thermique obtenue est malheureusement trop faible pour observer une modification de dynamique de goutte dans les conditions expérimentales actuelles.

De plus, on observe une limitation pour des nombres capillaires trop petits ($Ca < 10^{-6}$) où la pression de disjonction limite l'épaisseur du film de lubrification. Il faut introduire une épaisseur de film de lubrification de coupure h_∞^{limite} (je n'ai pas eu le temps d'approfondir cette piste). La condition à respecter pour comparer les mesures expérimentales à la théorie, dans le cas Bretherton est :

$$Ca > \frac{1}{3} \left(\frac{h_\infty^{\text{limite}}}{0.643R} \right)^{3/2}$$

Soit, pour nos conditions expérimentales :

$$Ca > \frac{1}{3} \left(\frac{70 \times 10^{-9}}{0.643 \times 200 \times 10^{-6}} \right)^{3/2}$$

$$Ca > 4 \times 10^{-6}$$

Il faut pour poursuivre ces recherches, réaliser un gradient thermique plus élevé, tout en gardant une température *in situ* ne modifiant pas les propriétés des fluides ni de mouillage. La technologie laser, permettrait de réaliser ce type d'expérience [66, 50]. La mesure de l'épaisseur du film de lubrification peut également apporter des validations du modèle de Mazouchi *et al.* ($h_\infty = 1.06R(3Ca)^{2/5}$) et du régime mixte ($h_\infty = 0.643R(3Ca)^{2/3} \times \left| 1 + 4.63 \frac{U_m}{U_d} \right|^{2/3}$). Des techniques d'interférométrie existent, mais restent à être adaptées pour un canal cylindrique.

Synthèse

CHAPITRE 3 - PARTIE EXPÉRIMENTALE

- La puce microfluidique utilisée lors des expériences contient :
 1. un tube capillaire en verre de diamètre interne $400 \mu\text{m}$ pour le canal d'étude ;
 2. une phase continue composée d'eau distillée avec 2 CMC de SDS ;
 3. une phase dispersée composée d'huile fluorée FC-72 ;
 4. un wafer imprimé d'un circuit électrique générant un gradient thermique de $5 \text{ }^\circ\text{C}/\text{mm}$;

- L'étude a été effectuée pour :
 1. des nombres capillaires entre 10^{-9} et 10^{-5} ;
 2. des vitesses de gouttes entre $0.1 \mu\text{m}/\text{s}$ et $300 \mu\text{m}/\text{s}$;
 3. des longueurs de gouttes entre $500 \mu\text{m}$ et $1500 \mu\text{m}$;
 4. des températures dans le canal microfluidique allant jusqu'à 55°C .

- Le confinement dans un tube capillaire à section circulaire ne permet pas au liquide de circuler autour de la bulle. Les contraintes visqueuses sont trop importantes pour voir un effet significatif de la contrainte thermocapillaire (générée avec notre système microfluidique) ;

- Le gradient thermique généré n'est pas suffisant pour observer des modifications dans la dynamique de goutte pour des nombres capillaires supérieurs à 10^{-6} ;

- La pression de disjonction limite notre étude à des nombres capillaires supérieurs à 10^{-6} , une épaisseur de coupure doit être introduite.

Conclusion

LA MICROFLUIDIQUE présente un intérêt majeur pour diverses applications (médicales, cosmétiques, agroalimentaires, etc.), qui requièrent toutefois l'utilisation de plusieurs fluides non miscibles, comme des gouttes confinées dans un microcanal. La microfluidique digitale, utilisant des gouttes produites en flux continu s'avère une stratégie prometteuse permettant de manipuler des volumes allant du picolitre au nanolitre avec une grande répétabilité. Ce travail s'inscrit dans cette approche de microfluidique digitale et s'intéresse à comprendre et maîtriser l'écoulement de gouttes dans des microcanaux. Nous nous sommes intéressés tout particulièrement à la dynamique de ces gouttes en posant la question suivante :

“ Quelle est la vitesse d'une goutte confinée dans un microcanal à section circulaire ? ”

Plus précisément, nous avons étudié l'influence d'une contrainte de Marangoni sur la dynamique de gouttes confinées. On a ainsi raffiné le modèle de Bretherton et Mazouchi *et al.* en les combinant pour obtenir un régime mixte. Expérimentalement, l'effet Marangoni solutocapillaire (généralisé par gradient de tensioactifs à l'interface) a été modélisé par un effet Marangoni thermocapillaire (généralisé par un gradient thermique dans le canal microfluidique).

En ce qui concerne la modélisation :

Le modèle de Bretherton étudie la dynamique d'une bulle confinée dans un tube capillaire à section circulaire mise en mouvement par un gradient de pression de la phase externe. Cette modélisation ne prend pas en compte d'effet Marangoni. Et permet d'obtenir le profil complet de la bulle (à partir d'une adimensionnalisation et de l'expression de l'épaisseur de lubrification h_∞ en fonction du nombre capillaire) et donne une relation entre la mobilité $\frac{U_d}{U_f}$

de la bulle et le nombre capillaire.

Le modèle de Mazouchi *et al.* s'intéresse au même système, mais la mise en mouvement de la bulle se fait par gradient thermique (et non plus par gradient de pression) qui par effet Marangoni déplace la bulle. Mazouchi a résolu le régime mixte pour les cas où $Ma > 0$ et obtient une relation obtenue est celle liant l'épaisseur du film de lubrification h_∞ au nombre capillaire. Nous avons complété ce travail par une adimensionnalisation permettant d'obtenir un profil unique prenant en compte l'ensemble des nombres capillaires (avec $Ca < 1$). Dans cette partie nous avons également mis en lumière une mobilité de bulle $\frac{U_d}{U_m}$ pertinente pour l'étude du cas Mazouchi *et al.*

Ensuite nous avons étudié le cas d'un régime mixte, où la mise en mouvement de la bulle confinée provient de deux contributions (volumiques et surfaciques). Nous avons étendue l'étude faite par Mazouchi *et al.* (qui s'intéressait aux cas $Ma > 0$), en nous intéressant aux cas $Ma < 0$. Cette étude a conduit à montrer que la mobilité de Bretherton $\frac{U_d}{U_f}$ n'est pas pertinente pour ce régime mixte et qu'il faut résoudre un système d'équations pour obtenir les fonctions $U_d = f_1(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x})$ et $h_\infty = f_2(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x})$.

En ce qui concerne l'expérimentation :

En science, un des problèmes répandu est le biais de publication [69, 57]. Les articles dont les expériences fonctionnent ont une notoriété surévaluée, entraînant une absence d'articles concernant les expériences infructueuses. Il est cependant aussi important de comprendre ce qui marche que ce qui ne marche pas. De futurs chercheurs auront tendance à perdre du temps et de l'argent en répétant des expériences qui ne fonctionnent pas s'il n'y a pas de traces des problèmes rencontrés.

C'est pourquoi nous avons voulu détailler dans le protocole expérimental les problèmes rencontrés lors de la fabrication du système microfluidique (cette partie ayant pris plus d'un tiers du temps de ma thèse). Finalement, nous avons montré qu'avec la technologie à disposition à l'IPGG, il est préférable d'effectuer les expériences de gouttes confinées dans des tubes capillaires en verre à section circulaire avec une génération en amont dans une puce PDMS. Les tensioactifs utilisés (SDS) sont solubles dans nos conditions expérimentales. Les gradients thermiques développés ne sont pas assez importants pour observer une variation de vitesse significative de la goutte confinée (mais des gradients thermiques trop élevés amènent à une température dans le canal qui peut modifier les propriétés physico-chimiques des fluides utilisés et engendrer des problèmes de mouillage). Pour des nombres capillaires trop faibles (dans notre cas $Ca < 10^{-6}$), la pression de disjonction rend la représentation de la mobilité de goutte $\frac{U_d}{U_f}$ en fonction du nombre capillaire $Ca = \frac{\mu U_d}{\gamma}$ difficile à exploiter (sauf si on met une coupure sur l'épaisseur du film de lubrification). On en revient aux fonctions $U_d = f_1(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x})$ et $h_\infty = f_2(U_f; \frac{\partial\gamma}{\partial x})$.

Perspectives

Pour comprendre l'effet des tensioactifs sur la dynamique de gouttes ou de bulles confinées, nous avons désormais un protocole expérimental permettant d'effectuer des séries de mesures et de tester différentes formulations de fluides. Voici quelques pistes pour continuer ce travail de recherche :

- mettre au point un gradient thermique local (à l'aide de lasers) permettant d'avoir de plus grands gradients thermiques et localisés comme cela est observé expérimentalement [65] sans pour autant avoir des températures absolues élevées [66, 50];
- continuer les expérimentations à l'aide du protocole expérimental, en faisant varier le diamètre interne du tube capillaire, la longueur des gouttes, les fluides utilisés, le gradient thermique;
- utiliser des tubes capillaires à sections carré ou rectangulaire, qui permettent la circulation de la phase externe sur les bords de la goutte;
- mettre au point un système de mesure de film de lubrification par méthode interférométrique dans le cas d'un tube capillaire [91, 3];

Annexes

1	Matériaux utilisés	102
1.1	PDMS	102
1.2	NOA	103
2	Procédé de softlithographie	103
2.1	Calibration de la hauteur de résine par spin coating	103
2.2	Réticulation par insolation U.V.	104
3	Fabrication d'un moule en PDMS	104
4	Puce microfluidique en PDMS	104
5	Puce microfluidique en NOA	105
6	Adimensionnalisation	106
6.1	Adimensionnalisation de la vitesse	106
6.2	Adimensionnalisation de l'équation différentielle	107
7	La théorie de Landau-Levich-Derjaguin (LLD) - 1942	108
7.1	Conditions aux limites	108
7.2	Profil du ménisque statique	110
7.3	Profil du ménisque dynamique	113
7.4	Loi de Landau-Levich-Derjaguin	118
8	Détail de l'intégration du champ de vitesse dans le film de lubrification	120
9	Résolution numérique de l'équation de lubrification	121
9.1	Détermination de la fonction $\epsilon(x)$	121
10	Méthode des incertitudes aléatoires	123
10.1	Présentation d'un résultat expérimental	123
10.2	Analyse statistique d'une série de mesures	123
10.3	Propagation des incertitudes	123

1 Matériaux utilisés

Les matériaux que l'on peut utiliser pour la constitution de puces microfluidiques ont des propriétés mécaniques éloignées. Comme on peut le voir dans le TAB. 5.1.

	RTV 615	Sylgard 184	h-PDMS	NOA	COC	Verre	Quartz
E [MPa]	1.8	1.5	10	1.4×10^3	3×10^3	50×10^3	97.2×10^3
$\alpha [^\circ \text{C}^{-1}]$	330×10^{-6}	340×10^{-6}	450×10^{-6}	220×10^{-6}	600×10^{-6}	0.5×10^{-6}	9×10^{-6}

TAB. 5.1: Propriétés des matériaux utilisés en microfluidique

Avec E le module de Young et α le coefficient de dilatation thermique.

1.1 PDMS

On peut retrouver du PDMS dans notre nourriture en tant qu'anti-moussant dans les huiles de cuisson ou les boissons (E900), dans les shampoings en tant que conditionneur capillaire pour augmenter le volume des cheveux (il a également tendance à boucher les pores du cuir chevelu et rendre les cheveux gras).

Le Polydiméthylsiloxane est un polymère¹ organominéral de la famille des siloxanes² (*c.f.* FIGURE 5.1). Naturellement hydrophobe, des traitements peuvent être effectués pour rendre ce matériaux hydrophile. On distingue trois grands type de PDMS :

- RTV 615 ;
- Sylgard 184 ;
- Hard PDMS (h-PDMS).

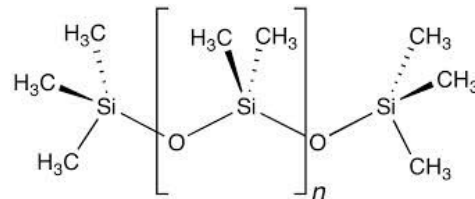


FIGURE 5.1: Formule chimique du PDMS

Le RTV et le Sylgard sont les polymères les plus utilisés. Leurs propriétés mécaniques dépendent de la température de cuisson utilisée [37] et de la température ambiante lors de l'utilisation du matériaux [71]. Le PDMS réside en un mélange de réticulant et de base avec un rapport massique de 1 : 10 (une dose de réticulant pour 10 doses de base).

Il faut faire attention aux matériaux en contact avec le PDMS RTV, en effet les solutions acides, basiques ou oxydées génèrent des gaz hydrogènes inflammables !

1. du grec *polus*, plusieurs et *meros*, partie. C'est une molécule constituée de la répétition de nombreuses sous-unités.

2. Siloxane est dérivé de Silicium, Oxygène et alkane. Les siloxanes polymérisés (*polysiloxanes*) sont appelés silicones.

1.2 NOA

La NOA (Norland Optical Adhesive) est un liquide adhésif qui réticule par une insolation aux rayons UVs. La lampe UV à Xenon utilisée est une HAMAMATSU LC8 L9588-01 avec un objectif condenseur HAMAMATSU E10052-01³. La lampe éclaire dans les longueurs d'ondes variant entre 300 et 450nm selon une forme en hexagone (*c.f.* FIGURE 5.2a). La puissance de la lampe est de **4500mW/cm² à 365nm**. De plus, l'énergie de l'éclairage dépend de la distance à la source, pour un éloignement de 38cm, l'énergie de l'éclairage est de seulement **1.2%** de l'éclairage max (*c.f.* FIGURE 5.2b).

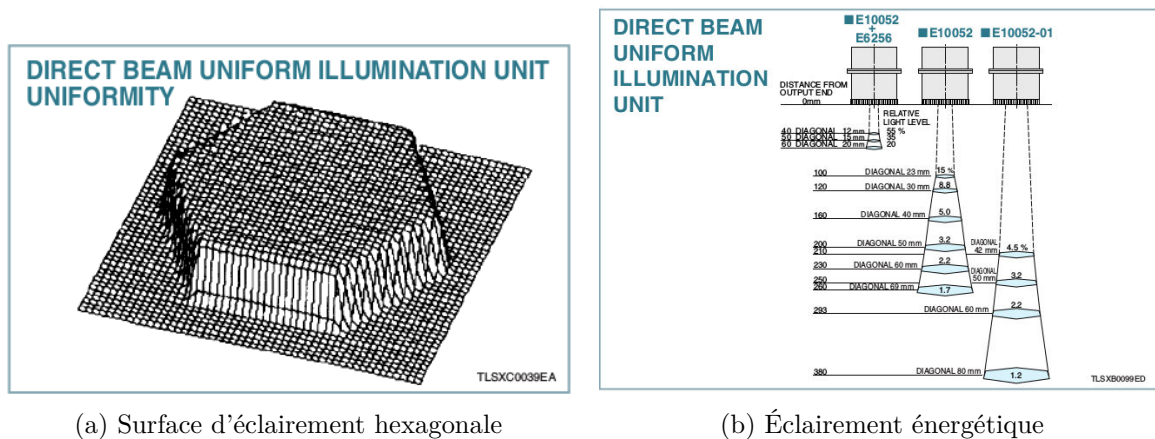


FIGURE 5.2: Datasheet de la lampe UV

2 Procédé de softlithographie

La softlithographie est un procédé où l'on dépose une résine à une hauteur calibrée, cette résine est ensuite réticulée localement par insolation UV. Ces structures permettent de créer des moules micrométriques (qui sont ensuite utilisés pour fabriquer des empreintes en PDMS ou NOA) ou des isolations chimiques pour créer des circuits électriques.

2.1 Calibration de la hauteur de résine par spin coating

Le spin coating ou enduction centrifuge est une technique largement utilisée dans le domaine de la microélectronique. Elle permet d'obtenir une couche mince et uniforme à la surface d'un substrat (ici un wafer en silicium). Le wafer est maintenu par du vide sur un plateau tournant à haute vitesse constante, la résine est alors étalée de façon uniforme par force centrifuge (*c.f.* FIGURE 5.3).

3. https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/LC8_TLSZ1008E.pdf - dernier accès le 19 décembre 2016

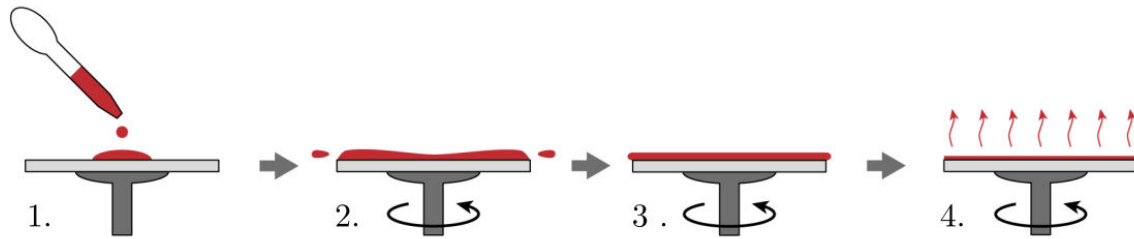


FIGURE 5.3: Étapes de spin coating : **1.** La résine est déposée sur le substrat ; **2.** Le wafer est mis en rotation à faible vitesse pour étaler la résine ; **3.** Une haute vitesse de rotation permet d’obtenir la hauteur de résine voulue ; **4.** Le wafer continue à tourner pendant l’évaporation du solvant de la résine.

2.2 Réticulation par insolation U.V.

Une fois que notre résine est étalée uniformément avec une hauteur voulue, il faut la réticuler à l’aide d’une lampe UV afin d’obtenir notre moule maître (*c.f.* FIGURE 5.4).

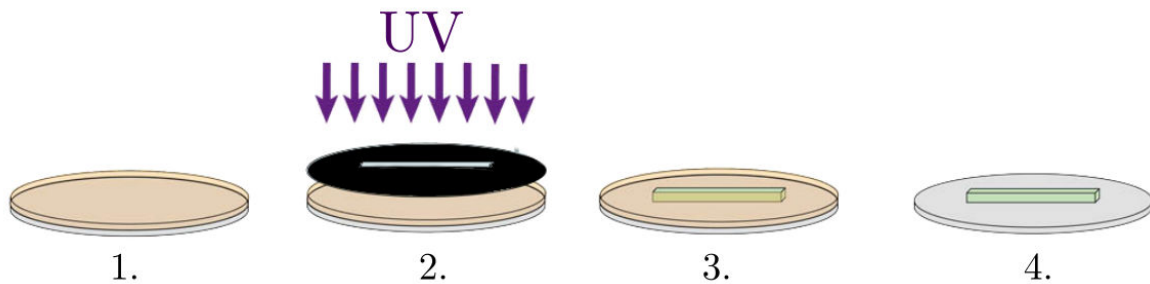


FIGURE 5.4: Étapes de réticulation par insolation UV : **1.** La résine est étalée de manière uniforme sur le wafer ; **2.** On insole le wafer aux U.V. à travers un masque ; **3.** Les parties exposées aux U.V. ont réticulé ; **4.** On enlève la partie non-réticulée à l’aide d’un solvant pour obtenir le moule maître.

3 Fabrication d’un moule en PDMS

Lorsque le moule maître est réalisé, on peut fabriquer une copie de ce moule en PDMS (*c.f.* FIGURE 5.5).

Avec cette réplique en PDMS on peut, soit créer une puce microfluidique en PDMS directement, soit créer une puce en NOA en utilisant la réplique comme moule.

4 Puce microfluidique en PDMS

Le scellage de la puce se fait par procédé plasma (*c.f.* FIGURE 5.6).

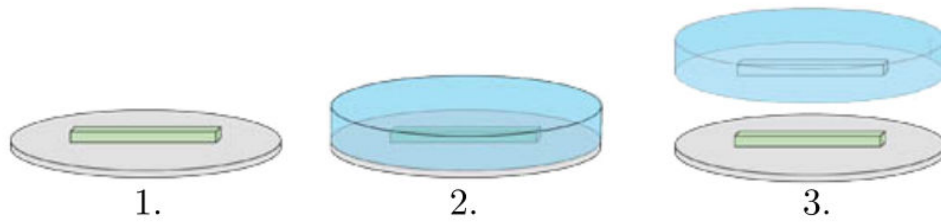


FIGURE 5.5: Étapes de copie de moule en PDMS : **1.** L'étape de moulage permet une production importante de puces microfluidiques à partir d'un même moule maître ; **2.** On verse un mélange de réticulant et de base en rapport massique de 1 : 10 ; **3.** Une fois le PDMS durci (après cuisson dans un four), il peut être démoulé. On obtient alors une réplique des micro-canaux dans la galette de PDMS

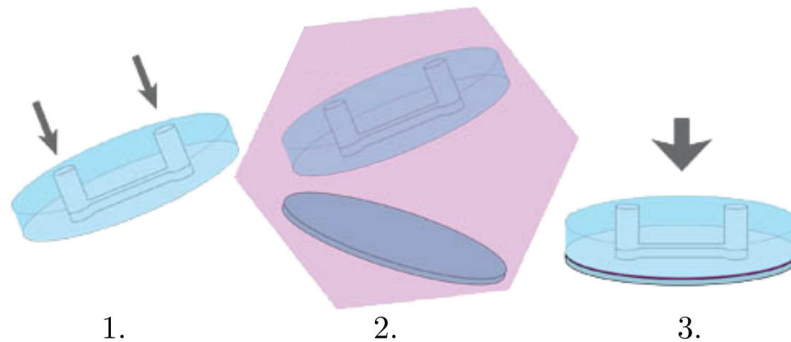


FIGURE 5.6: Étapes de scellage : **1.** Afin d'injecter des fluides dans la puce, on poinçonne les entrées/sorties de fluide ; **2.** On met la partie moulée en PDMS et une lame de verre (ou un morceau de PDMS) dans un plasma à oxygène afin d'activer les surfaces ; **3.** On met en contact les surfaces activées pour sceller notre puce

5 Puce microfluidique en NOA

Le moule en PDMS permet de créer un contre-moule pour les puces en NOA. Il est parfaitement adapté par sa flexibilité et sa transparence aux longueurs d'ondes U.V., les étapes de fabrications sont récapitulées en FIGURE 5.7.

On remarque que pour la méthode de fabrication en NOA par stamping, il y a toujours une fine couche de NOA dans le canal fabriqué, du côté de la lame de verre. Pour avoir une puce avec des parois en verre, il faudra fabriquer la puce en NOA par capillarité.

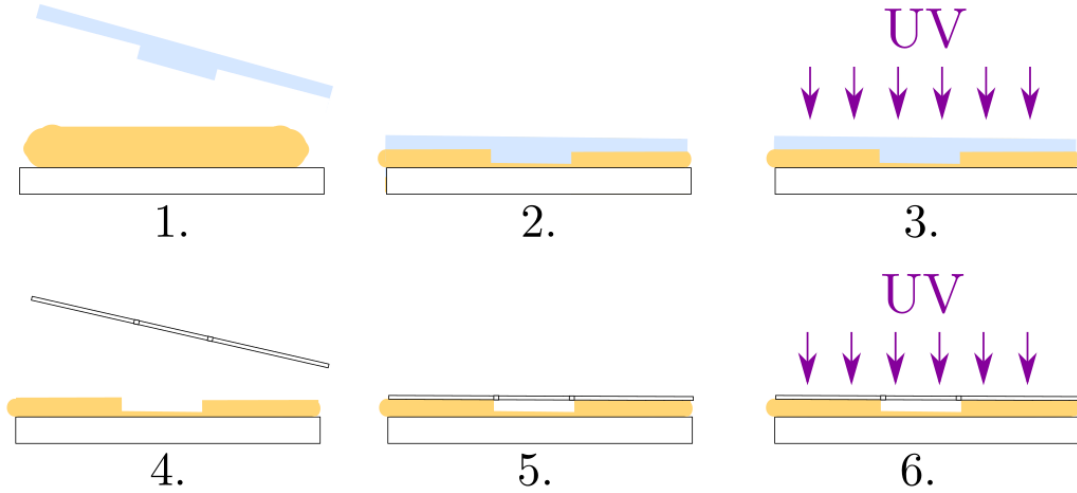


FIGURE 5.7: Étapes de stamping en NOA : **1.** On dépose une fine couche de NOA sur une lame de verre ; **2.** Dépose le contre-moule en PDMS sur la NOA ; **3.** On expose aux U.V. une première fois ; **4.** On prend une lamelle de verre percée aux entrées/sorties ; **5.** On fait contact entre la lamelle et la NOA pré-réticulée ; **6.** Une exposition aux U.V. finalise le scellage.

6 Adimensionnalisation

Dans tout écoulement, on peut trouver une longueur de référence, une vitesse caractéristique... Ainsi, en adimensionnalisant (divisant les variables par leurs valeurs caractéristiques) on peut faire ressortir les éléments importants présents dans une équation.

Désormais, ce ne sont plus les variables elles-mêmes qui sont importantes, mais des nombres adimensionnés.

Nous allons adimensionner les équations en vitesse et différentielle de la SECTION 1.1.6.

6.1 Adimensionnalisation de la vitesse

$$u_x(z) = \frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \left(h(x)z - \frac{z^2}{2} \right) + \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z + U_d$$

On définit une valeur caractéristique devant chaque variable

$$u_c u_x^* = \frac{\gamma}{\mu} \times \frac{h_c}{x_c^3} \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} \times \left(h_c h^* z_c z^* - \frac{z_c^2 z^{*2}}{2} \right) + \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z_c z^* + U_d$$

Les valeurs caractéristiques ne sont pas encore fixées, on prend alors les valeurs qui simplifient au mieux notre équation. Par exemple $h_c = z_c$ semble simplifier l'équation.

$$u_c u_x^* = \frac{\gamma}{\mu} \times \frac{h_c^3}{x_c^3} \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} \times \left(h^* z^* - \frac{z^{*2}}{2} \right) + \frac{h_c}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z^* + U_d$$

$$u_x^* = \frac{\gamma}{\mu u_c} \left(\frac{h_c}{x_c} \right)^3 \times \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} \times \left(h^* z^* - \frac{z^{*2}}{2} \right) + \frac{h_c}{\mu u_c} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z^* + \frac{U_d}{u_c}$$

On remarque que $u_c = U_d$ simplifie l'équation, on retrouve alors l'équation 2.7

$$u_x^* = \frac{\gamma}{\mu U_d} \left(\frac{h_c}{x_c} \right)^3 \times \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} \times \left(h^* z^* - \frac{z^{*2}}{2} \right) + \frac{h_c}{\mu U_d} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z^* + 1$$

6.2 Adimensionnalisation de l'équation différentielle

$$\frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} = \frac{1}{h(x)^3} \left[\frac{3\mu U_d}{\gamma} (h_\infty - h(x)) + \frac{3}{2\gamma} \frac{\partial \gamma}{\partial x} (h_\infty^2 - h(x)^2) \right]$$

On définit une valeur caractéristique devant chaque variable

$$\frac{h_c}{x_c^3} \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1}{h_c^3 h^{*3}} \left[\frac{3\mu U_d}{\gamma} (h_\infty - h_c h^*) + \frac{3}{2\gamma} \frac{\partial \gamma}{\partial x} (h_\infty^2 - h_c^2 h^{*2}) \right]$$

On voit que $h_c = h_\infty$ simplifie l'équation

$$\frac{h_\infty}{x_c^3} \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{h_\infty}{h_\infty^3 h^{*3}} \left[\frac{3\mu U_d}{\gamma} (1 - h^*) + \frac{3h_\infty}{2\gamma} \frac{\partial \gamma}{\partial x} (1 - h^{*2}) \right]$$

Comme $(1 - h^{*2}) = (1 - h^*)(1 + h^*)$

$$\frac{h_\infty^3}{x_c^3} \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1 - h^*}{h^{*3}} \left[\frac{3\mu U_d}{\gamma} (1 - h^*) + \frac{3h_\infty}{2\gamma} \frac{\partial \gamma}{\partial x} (1 - h^{*2}) \right]$$

On retrouve l'équation 2.8

$$\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1 - h^*}{h^{*3}} \frac{1}{\gamma^*} \left[\frac{3\mu U_d}{\gamma_c} \left(\frac{x_c}{h_\infty} \right)^3 + \frac{3}{2} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \frac{h_\infty}{\gamma_c} \left(\frac{x_c}{h_\infty} \right)^3 (1 + h^*) \right]$$

7 La théorie de Landau-Levich-Derjaguin (LLD) - 1942

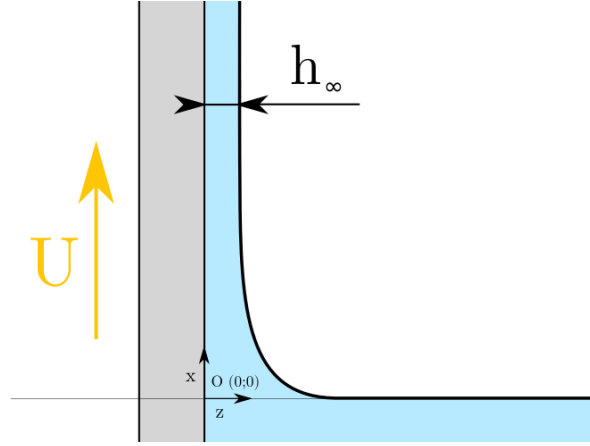


FIGURE 5.8: Schéma 2D d'un ménisque liquide sur un solide se déplaçant à une vitesse U selon y .

On peut voir en FIGURE 5.8 la modélisation 2D d'un dépôt de film par mouvement relatif entre un plan (en gris) et un liquide (en bleu). L'objectif est d'obtenir le profil du ménisque dynamique pour pouvoir déterminer les pertes visqueuses et remonter à l'épaisseur du film déposé.

La théorie de Landau, Levich, Derjaguin (LLD) s'intéresse à ce profil dans le cas de films minces et dans la limite de petits nombres capillaires [4, 21] pour un film liquide entre une plaque solide et de l'air. Bretherton [12] et Park and Homsy [52] ont adaptés ces calculs à une géométrie confinée. L'idée consiste à déterminer la forme du ménisque et à la raccrocher aux zones d'épaisseur constante h_∞ et infinie pour $x = 0$.

7.1 Conditions aux limites

Dans la limite des petits nombres capillaires, le raisonnement de Landau, Levich et Derjaguin se fonde sur le découpage du film liquide en trois régions selon le schéma de la FIGURE 5.9b : une région de liquide d'épaisseur uniforme h_∞ en haut de la plaque, un ménisque statique non perturbé au niveau de la surface libre, et un ménisque dynamique qui est la zone reliant ces deux régions.

Composante normale

Dans la **zone du ménisque statique**, la courbure de l'interface peut être écrite de la manière suivante :

$$\kappa = \frac{\partial^2 h / \partial x^2}{(1 + (\partial h / \partial x)^2)^{3/2}}$$

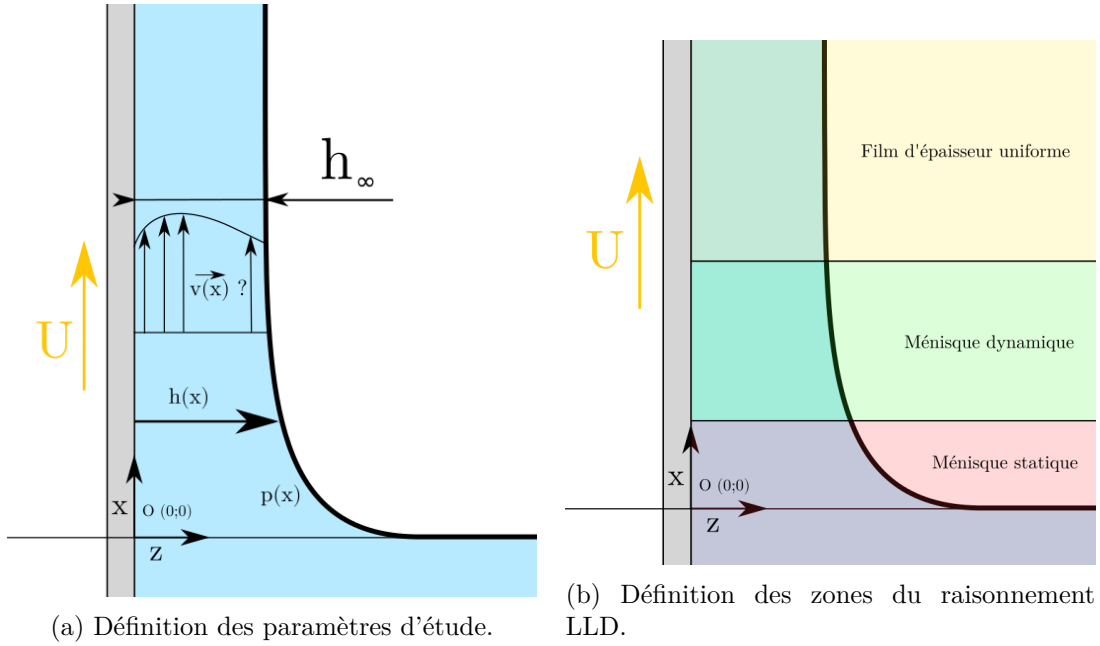


FIGURE 5.9: Schéma 2D d'un ménisque liquide sur un solide se déplaçant à une vitesse U selon y . Avec en bleu le liquide et en blanc le gaz (pour (a)).

Dans la **zone du ménisque dynamique**, l'épaisseur varie lentement, ce qui permet de négliger la dérivée première de l'épaisseur $h(x)$ du film et ainsi obtenir une expression de la courbure simplifiée :

$$\kappa = \frac{\partial^2 h(x)}{\partial x^2}$$

L'hypothèse de lubrification **H5** donne $\mu \bar{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{n} = 0$, ainsi pour la condition aux limites de la composante normale l'expression devient l'équation plus connue sous le nom de Loi de Laplace :

$$p_{\text{gaz}}^\Gamma - p_{\text{liquide}}^\Gamma = \kappa \gamma$$

Composante tangentielle

On se place dans un cas sans tensio-actifs et à température constante, il n'y a donc pas d'effet Marangoni générés par une modification de tension de surface.

$$\nabla_s(\gamma) = \mathbf{0}$$

Entre les deux fluides la condition aux limites à l'interface pour la composante tangentielle devient :

$$\mu_1 \frac{\partial u_x^1(z)}{\partial z} = \mu_2 \frac{\partial u_x^2(z)}{\partial z}$$

A l'interface entre l'air et l'eau, la contrainte tangentielle peut être considérée comme nulle, la viscosité dynamique de l'air étant très faible devant celle de l'eau, les pentes des

profils de vitesse est plus faible dans l'eau que dans l'air. Il existe donc un extremum de la vitesse à la *surface libre*.

$$\frac{\partial u_x(z)}{\partial z} = 0$$

Entre le liquide et le solide, les contraintes de viscosité interdisent le glissement du fluide par rapport à la surface solide. Les composantes tangentielles des vitesses du fluide et du solide doivent donc être égales, ce qui conduit à la relation (dans le référentiel du ménisque) :

$$u_x(z = 0) = U$$

7.2 Profil du ménisque statique

Dans la zone du ménisque statique, le profil est similaire à celui du ménisque lorsque la plaque n'est pas en mouvement (également appelé ménisque statique). On va tout d'abord déterminer le profil dans un cas statique, avant de passer au cas où la plaque est en mouvement avec une vitesse U .

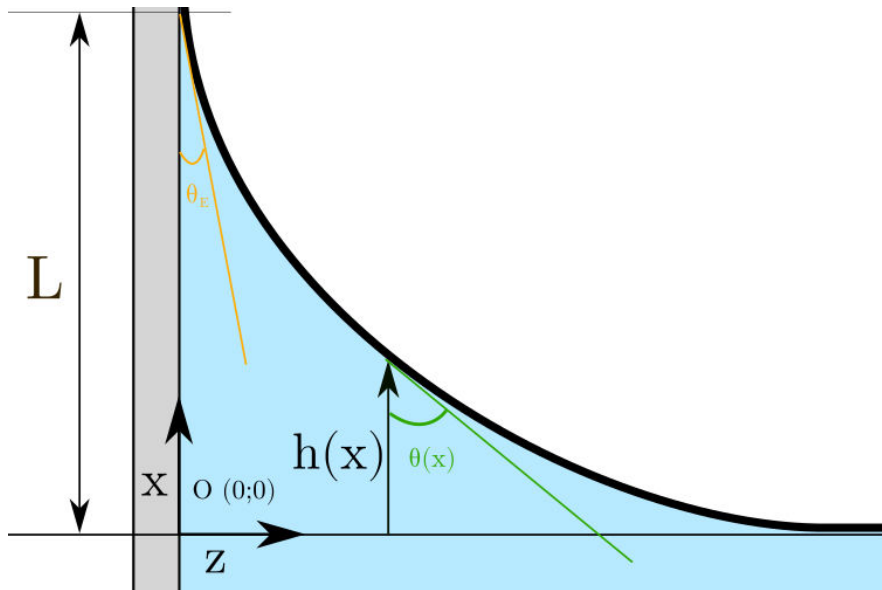


FIGURE 5.10: Schéma 2D d'un ménisque liquide sur un solide.

Conservation de la quantité de mouvement

La forme du ménisque statique résulte d'un équilibre entre les forces capillaires et la gravité. La conservation de la quantité de mouvement en statique $\mathbf{u} = \mathbf{0}$ devient l'équation classique de la statique des fluides :

$$\rho \mathbf{g} - \nabla p = \mathbf{0}$$

On projète cette équation sur l'axe $(O; \mathbf{x})$, puis on l'intègre entre l'interface et un point d'ordonnée nulle :

$$p(x=0) - p^\Gamma = -\rho g(0-x)$$

On remarque que pour $p(x=0, z) = p_{\text{atm}}$, car $\begin{cases} \kappa \xrightarrow{z \rightarrow +\infty} 0 \\ \frac{\partial p}{\partial z} = 0 \end{cases}$ donc $p(x=0, z=\infty) = p_{\text{atm}}$

Finalement on a :

$$p_{\text{gaz}}^\Gamma - p_{\text{liquide}}^\Gamma = \rho g x$$

Condition aux limites - composante normale

D'après la loi de Laplace, on a la relation :

$$p(x = x_\Gamma^+) - p(x = x_\Gamma^-) = \gamma \kappa$$

Profil du ménisque statique

On obtient le système d'équation :

$$\begin{cases} p_{\text{atm}} - p(x = x_\Gamma) = \rho g x \\ p_{\text{atm}} - p(x = x_\Gamma) = \gamma \kappa \end{cases} \Leftrightarrow \rho g x = \gamma \kappa$$

On intègre alors l'équation obtenue entre l'ordonnée $x = 0$ et une ordonnée quelconque x :

$$\int_0^x \rho g x \, dx = \int_0^x \gamma \frac{\partial^2 h(x) / \partial x^2}{(1 + (\partial h(x) / \partial x)^2)^{3/2}} \, dx$$

Sachant que :

$$\begin{aligned} \left(\frac{u'}{(1+u'^2)^{1/2}} \right)' &= \frac{u''(1+u'^2)^{1/2} - u'(2u'u'') \frac{1}{2}(1+u'^2)^{-1/2}}{(1+u'^2)^{1/2}} \\ &= \frac{u''}{(1+u'^2)^{1/2}} - \frac{u'^2 u''}{(1+u'^2)^{3/2}} \\ &= \frac{u''}{(1+u'^2)^{1/2}} - \frac{(1+u'^2-1)u''}{(1+u'^2)^{3/2}} \\ &= \frac{u''}{(1+u'^2)^{1/2}} - \frac{(1+u'^2)u''}{(1+u'^2)^{3/2}} + \frac{u''}{(1+u'^2)^{3/2}} \\ &= \frac{u''}{(1+u'^2)^{3/2}} \end{aligned}$$

On obtient en posant : $u = \frac{\partial h(x)}{\partial x}$

$$\rho g \left[\frac{x^2}{2} \right]_0^x = \gamma \left[\frac{\partial h(x)/\partial x}{(1 + (\partial h(x)/\partial x)^2)^{1/2}} \right]_0^x$$

La conditions aux limites étant $\frac{\partial h(x)}{\partial x}|_{x=0} = +\infty$ on peut alors écrire :

$$\rho g \frac{x^2}{2} = \gamma \left(\frac{\partial h(x)/\partial x}{(1 + (\partial h(x)/\partial x)^2)^{1/2}} - 1 \right)$$

En posant $\partial h(x)/\partial x = \tan(\theta)$ on obtient la relation suivante en $x = L$:

$$\rho g \frac{L^2}{2} = \gamma(\sin(\theta) - 1)$$

La hauteur du ménisque dépend finalement de l'angle de contact entre le liquide et le solide :

$$L = \sqrt{2}l_c (1 - \sin(\theta_E))^{1/2}$$

avec $l_c = \sqrt{\gamma/\rho g}$ [m] la longueur capillaire.

En intégrant une seconde fois, on obtient le profil du ménisque statique :

$$\int_x^L \rho g \frac{x^2}{2} dx = \int_x^L \gamma \left(\frac{\partial h(x)/\partial x}{(1 + (\partial h(x)/\partial x)^2)^{1/2}} - 1 \right) dx$$

...

$$h(x) = h_0 + l_c \operatorname{argcosh} \left(\frac{2l_c}{x} \right) - 2l_c \left(1 - \frac{x^2}{4l_c^2} \right)^{1/2}$$

avec h_0 définit tel que $h(x = L) = 0$.

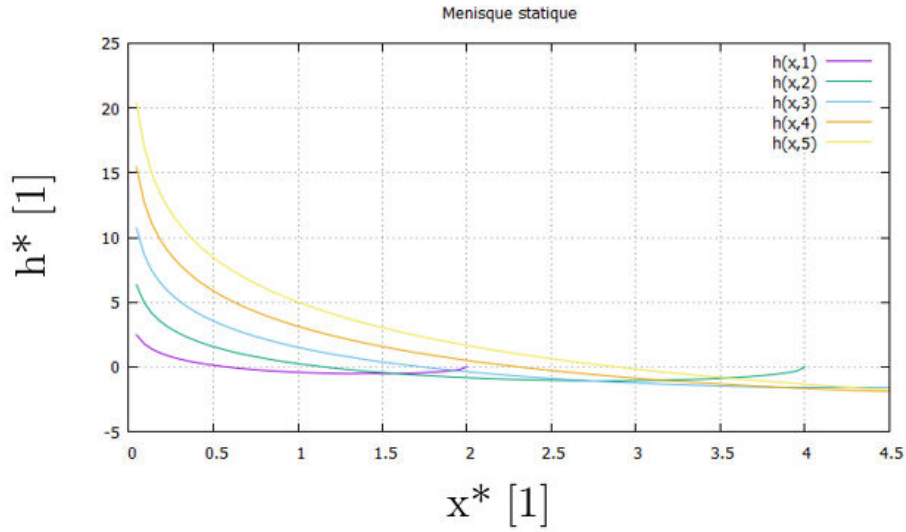
Le profil du ménisque statique peut alors être représenté pour une longueur capillaire donnée comme on peut l'observer en [FIGURE 5.11](#).

Ces courbes ayant été obtenues avec Gnuplot avec le code suivant :

```

1 gnuplot> argcosh(x) = log(x+sqrt((x**2)-1))
2 gnuplot> h(x,1) = 1 * argcosh(2*1/x) - 2*1 * (1 - (x*x/(4*1*1)))**0.5
3 gnuplot> set title 'Menisque statique'
4 gnuplot> set samples 100
5 gnuplot> set grid
6 gnuplot> plot [0:1] h(x,1), h(x,2), h(x,3), h(x,4), h(x,5), 0 with lines

```

FIGURE 5.11: Schéma 2D du ménisque statique pour différentes valeurs de κ^{-1} .

7.3 Profil du ménisque dynamique

Condition aux limites - composante normale

D'après la loi de Laplace et l'expression de la courbure dans la zone du ménisque dynamique, on a la relation :

$$p_{\text{atm}} - p_{\text{liquide}} = \gamma \frac{\partial^2 h(x)}{\partial x^2}$$

Condition aux limites - composante tangentielle

Dans la modélisation de LLD, il n'y a pas de gradient de tension superficielle. La relation à l'interface entre un liquide et un gaz devient alors :

$$\mu \frac{\partial u_x(z)}{\partial z} \Big|_{z=h(x)} = 0$$

Conservation de la quantité de mouvement

$$\begin{cases} \mu \frac{\partial^2 u_x(z)}{\partial z^2} = \frac{\partial p}{\partial x} + \rho g \\ \frac{\partial p}{\partial x} = -\gamma \frac{\partial^2 h(x)}{\partial x^2} \end{cases} \Leftrightarrow \mu \frac{\partial^2 u_x(z)}{\partial z^2} = -\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} + \rho g$$

On utilise ensuite la condition aux limites de la composante tangentielle entre les deux fluides (air et liquide) pour intégrer l'équation selon z entre l'interface et une position z quelconque. $CL : \frac{\partial u_x}{\partial z}(h(x)) = 0$

$$\begin{aligned}
\int_{h(x)}^z \mu \frac{\partial^2 u_x(z)}{\partial z^2} dz &= \int_{h(x)}^z \left(-\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} + \rho g \right) dz \\
\Leftrightarrow \left[\mu \frac{\partial u_x(z)}{\partial z} \right]_{h(x)}^z &= \left[\left(-\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} + \rho g \right) z \right]_{h(x)}^z \\
\Leftrightarrow \mu \frac{\partial u_x(z)}{\partial z} &= \left(-\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} + \rho g \right) (z - h(x))
\end{aligned}$$

Finalement, avec la condition aux limites de la composante tangentielle entre le liquide et la paroi solide, selon z entre la paroi et une position z quelconque. $CL : u_x(0) = U$

$$\begin{aligned}
\int_0^z \mu \frac{\partial u_x(z)}{\partial z} dz &= \int_0^z \left(-\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} + \rho g \right) (z - h(x)) dz \\
\Leftrightarrow [\mu u_x(z)]_0^z &= \left[\left(-\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} + \rho g \right) \left(\frac{z^2}{2} - h(x)z \right) \right]_0^z \\
\Leftrightarrow \mu (u_x(z) - U) &= \left(-\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} + \rho g \right) \left(\frac{z^2}{2} - h(x)z \right)
\end{aligned}$$

La vitesse peut être obtenue d'après l'expression précédente. Par conservation de la masse (dans la phase liquide), avec une masse volumique constante, on a conservation du volume. Soit pour un fluide en mouvement la conservation du débit volumique. Le débit volumique en 2D est défini comme suit :

$$\begin{aligned}
Q_{2D}(x) &= \int_0^{h(x)} u_x(z) dz = \int_0^{h(x)} U + \frac{1}{\mu} \left(-\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} + \rho g \right) \left(\frac{z^2}{2} - h(x)z \right) dz \\
&= \left[Uz + \frac{1}{\mu} \left(-\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} + \rho g \right) \left(\frac{z^3}{6} - h(x) \frac{z^2}{2} \right) \right]_0^{h(x)} \\
&= Uh(x) - \frac{1}{\mu} \left(-\gamma \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} + \rho g \right) \frac{h(x)^3}{3}
\end{aligned}$$

On obtient :

$$\begin{aligned}
Q_{2D}(x) &= Q_{2D}(h_\infty) \\
\Leftrightarrow Uh - \frac{1}{\mu} \left(-\gamma \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} + \rho g \right) \frac{h^3}{3} &= Uh_\infty - \frac{1}{\mu} \left(-\gamma \frac{\partial^3 h_\infty}{\partial x^3} + \rho g \right) \frac{h_\infty^3}{3} \\
\Leftrightarrow Uh + \frac{h^3}{3\mu} \left(\gamma \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} - \rho g \right) &= Uh_\infty - \frac{\rho g}{\mu} \frac{h_\infty^3}{3} \quad \text{car courbure nulle en } h_\infty \\
\Leftrightarrow h + \frac{h^3}{3\mu U} \left(\gamma \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} - \rho g \right) &= h_\infty - \frac{\rho g}{\mu U} \frac{h_\infty^3}{3}
\end{aligned}$$

Adimensionnalisation

$$h_\infty \times h^* + \frac{h_\infty^3}{3\mu U} \times h^{*3} \left(\frac{\gamma h_\infty}{x_c^3} \times \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} - \rho g \right) = h_\infty - \frac{\rho g}{3\mu U} h_\infty^3$$

$$\Leftrightarrow h^* + h^{*3} \left(\frac{\gamma}{3\mu U} \frac{h_\infty^3}{x_c^3} \times \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} - \frac{\rho g}{\mu U} \frac{h_\infty^2}{3} \right) = 1 - \frac{\rho g}{3\mu U} h_\infty^2$$

En posant $l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}}$ (la longueur capillaire) et $Ca = \frac{\mu U}{\gamma}$ (le nombre capillaire étant le rapport entre les forces visqueuses avec la composante normale des forces liées à la tension superficielle) l'équation peut s'écrire de manière simplifiée :

$$h^*(x) + h^{*3} \left(\frac{1}{3Ca} \left(\frac{h_\infty}{x_c} \right)^3 \times \frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} - \frac{h_\infty^2}{3Ca l_c^2} \right) = 1 - \frac{h_\infty^2}{3Ca l_c^2}$$

En posant $x_c = h_\infty (3Ca_c)^{-1/3}$ l'équation devient :

$$\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1 - h^*}{h^{*3}} + \frac{h_\infty^2}{3Ca l_c^2} \frac{h^{*3} - 1}{h^{*3}}$$

Finalement, les paramètres caractéristiques permettant l'adimensionnalisation sont : h_∞ et x_c . On peut alors définir les paramètres adimensionnés (comportant une étoile) :

$$h = h^* \times h_\infty \quad \Big| \quad x = x^* \times h_\infty (3\frac{\mu U}{\gamma})^{-1/3}$$

TAB. 5.2: Paramètres adimensionnés du problème

À travers κ , le deuxième terme de l'équation précédente constitue la contribution de la gravité. Celle-ci peut être négligée si les forces gravitaires sont négligeables devant les forces de tensions superficielles, soit $l_c \gg 1$. L'équation adimensionnée devient :

$$\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} = \frac{1 - h^*}{h^{*3}}$$

Condition d'intégration

Le raccord du ménisque dynamique avec le film d'épaisseur uniforme donne les conditions aux limites suivantes : $h^*(+\infty) \rightarrow 1$, $\frac{\partial h^*(+\infty)}{\partial y^*} \rightarrow 0$ et $\frac{\partial^2 h^*(+\infty)}{\partial x^{*2}} \rightarrow 0$.

Pour résoudre l'équation, on doit raccorder les ménisques statiques et dynamiques. **L'épaisseur où ce raccord intervient étant inconnue, Landau, Levich et Derjaguin ont proposé d'égaliser la courbure du ménisque dynamique en $x^* \rightarrow -\infty$ avec celle au sommet du ménisque statique en $x^* \rightarrow \frac{L}{h_\infty (3Ca_c)^{1/3}}$.**

Comme $\frac{\partial^3 h^*}{\partial x^{*3}} \rightarrow 0$ quand $x^* \rightarrow -\infty$, la courbure du ménisque dynamique $\frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}}$ tend vers **une constante** quand $x^* \rightarrow -\infty$.

Pour cette constante, Landau et Levich ont prédit $\frac{\partial^2 h^*(-\infty)}{\partial x^{*2}} = 0,63$ [4], Derjaguin $\frac{\partial^2 h^*(-\infty)}{\partial x^{*2}} = 0,64$ [21]. White et Tallmadge l'ont plus tard affiné en $\frac{\partial^2 h^*(-\infty)}{\partial x^{*2}} = 0,642$ [95].

La résolution numérique a été réalisée sous MATLAB avec une fonction *eq_diff.m* où l'on définit l'équation différentielle à résoudre et un script *LLD.m* résolvant cette équation différentielle :

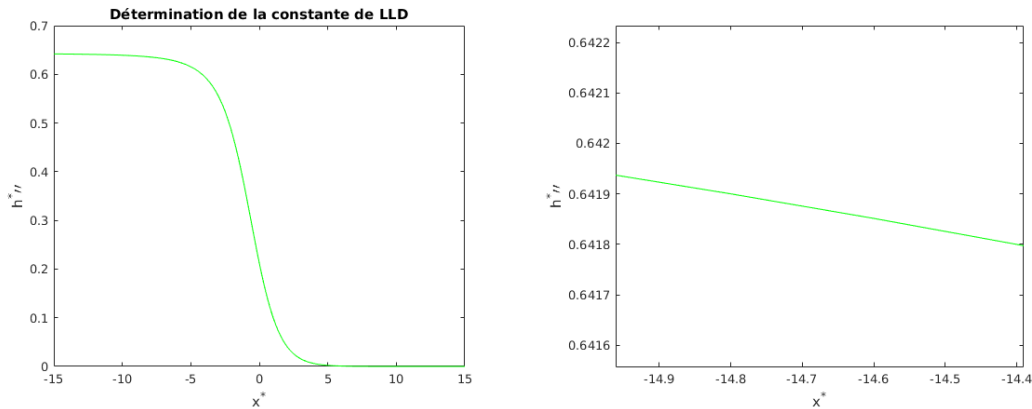


FIGURE 5.12: Variations de $\frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}}$.

$$\frac{\partial^2 h^*(-\infty)}{\partial x^{*2}} = 0,642$$

profil_LLD.m

```

1 %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
2 % Determination de la constante de la loi de Landau-Levich-Derjaguin
3 % et du profil de la bulle
4 %
5 % Author : Alexandre Mansur
6 % Date of last modification : 01/09/17
7 %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
8
9 clc
10 clear all
11
12 %% Profil avant de la bulle
13 % Parametres d integration
14 x_av = 15;
15 x_ar = 15;
16 CL = 1;
17 a=1;
18 plage_x = [x_av -x_av];
19 init = [1+(a*exp(-x_av)) a*exp(-x_av) a*exp(-x_av)];

```

```

20 precision = 1e-10;
21
22 options = odeset('RelTol',precision,'AbsTol',precision*[1 1 1]);
23 [X_av,H_av] = ode45(@eq_diff(X,H,CL), plage_x, init, options);
24 % H(:,1) <=> h(x)
25 % H(:,2) <=> dh/dx (x)
26 % H(:,3) <=> d2h/dx2 (x)
27
28
29 figure(1)
30 subplot(1,3,1);
31 plot(H_av(:,1), X_av, 'b')
32 legend('h*(x)')
33 ylabel('x*')
34 xlim([0 max(H_av(:,1))])
35
36 subplot(1,3,2);
37 plot(H_av(:,2), X_av, 'r')
38 legend('h*^prime(x*)')
39 title('Profil LLD')
40 xlabel('z*')
41
42 subplot(1,3,3);
43 plot(H_av(:,3), X_av, 'g')
44 legend('h*^prime^prime(x*)')

```

eq_diff.m

```

1 function dh = eq_diff(x,h,CL)
2 % dh = [dh1 dh2 dh3 dh4]
3 % dh1 etant la derivee au premier ordre de h
4 % on pose h(1)=h, h(2)=dh/dx, h(3)=d2h/dx2, h(4)=d3h/dx3
5 %
6 % on veut d3h/dx3 = CL * (1-h)/h^3
7
8 dh = zeros(3,1);
9
10 dh(1) = h(2);
11 dh(2) = h(3);
12 dh(3) = CL*(1-h(1))./(h(1).^3);
13
14 end

```

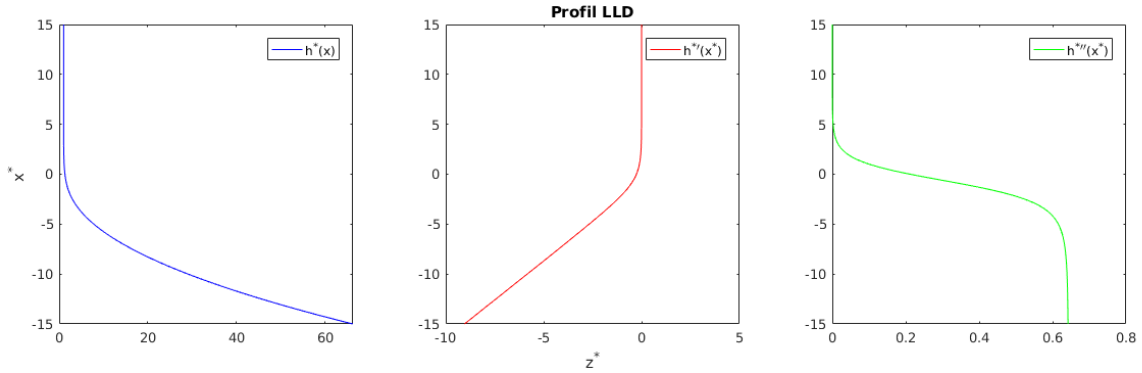


FIGURE 5.13: Résolution MATLAB

7.4 Loi de Landau-Levich-Derjaguin

Afin de retrouver la loi de LLD, on égalise les courbure du ménisque statique en $x \rightarrow L$ avec celle du ménisque dynamique en $x \rightarrow -\infty$ (respectivement en adimensionné $x^* \rightarrow \frac{L}{h_\infty(3Ca_c)^{1/3}}$ et $x^* \rightarrow -\infty$).

$$\left. \frac{\partial^2 h^{\text{statique}}(x)}{\partial y^2} \right|_{x \rightarrow L} = \left. \frac{\partial^2 h^{\text{dynamique}}(x)}{\partial x^2} \right|_{x \rightarrow -\infty}$$

soit, en adimensionné

$$\left. \frac{\partial^2 h^{*\text{statique}}}{\partial x^{*2}} \right|_{x^* \rightarrow \frac{L}{h_\infty(3Ca_c)^{1/3}}} = \left. \frac{\partial^2 h^{*\text{dynamique}}}{\partial x^{*2}} \right|_{x^* \rightarrow -\infty}$$

Courbure du ménisque statique

En reprenant l'expression de l'égalité des pression à l'interface $\rho g x = \gamma \kappa$ et la hauteur du ménisque en faisant l'hypothèse que le liquide est totalement mouillant ($\theta_E = 0$)

$$L = \sqrt{2} l_c$$

Finalement pour $x = L$ on obtient alors la courbure en haut du ménisque statique :

$$\kappa = \frac{\rho g}{\gamma} L = \frac{1}{l_c^2} \sqrt{2} l_c$$

$$\kappa^{\text{statique}} = \frac{\sqrt{2}}{l_c}$$

Courbure du ménisque dynamique

$$\text{L'adimensionnalisation} \begin{cases} h^* = \frac{h(x)}{h_\infty} \\ x^* = \frac{x}{h_\infty} (3Ca)^{1/3} \end{cases}$$

et l'approximation de variation lente de la courbure dans la zone du ménisque dynamique $\kappa = \frac{\partial^2 h}{\partial x^2}$ on a :

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 h^*}{\partial x^{*2}} &= \frac{\partial^2 h^*(-\infty)}{\partial x^{*2}} \\ \Leftrightarrow \frac{\partial^2 h/h_\infty}{\partial \left(\frac{x}{h_\infty} (3Ca)^{1/3} \right)^2} &= \frac{\partial^2 h^*(-\infty)}{\partial x^{*2}} \\ \Leftrightarrow h_\infty (3Ca)^{-2/3} \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} &= \frac{\partial^2 h^*(-\infty)}{\partial x^{*2}} \\ \Leftrightarrow \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} &= \frac{(3Ca)^{2/3}}{h_\infty} \frac{\partial^2 h^*(-\infty)}{\partial x^{*2}} \\ \kappa^{\text{dynamique}} &= \frac{(3Ca)^{2/3}}{h_\infty} \frac{\partial^2 h^*(-\infty)}{\partial x^{*2}} \end{aligned}$$

La résolution numérique a permis de déterminer le coefficient $\frac{\partial^2 h^*(-\infty)}{\partial x^{*2}} = 0,643$.

Égalité entre les courbures

L'égalité entre les courbures statiques et dynamiques donne la loi de Landau-Levich-Derjaguin, prédisant l'épaisseur déposée en fonction des nombres adimensionnés du problème :

$$\begin{aligned} \kappa^{\text{statique}} &= \kappa^{\text{dynamique}} \\ \Leftrightarrow \frac{\sqrt{2}}{l_c} &= \frac{(3Ca)^{2/3}}{h_\infty} \frac{\partial^2 h^*(-\infty)}{\partial x^{*2}} \\ \Leftrightarrow h_\infty &= \frac{3^{2/3}}{\sqrt{2}} \times 0,643 \times l_c \times Ca^{2/3} \end{aligned}$$

$$\boxed{h_\infty = 0,94 \times l_c \times Ca^{2/3}}$$

Soit avec les paramètres de l'étude : $h_\infty = 0,94 \frac{(\mu U)^{2/3}}{\gamma^{1/6} (\rho g)^{1/2}}$.

Cependant, lorsque l'on est confiné, le rayon du ménisque statique est gouverné par le confinement.

8 Détail de l'intégration du champ de vitesse dans le film de lubrification

$$\begin{aligned}
\frac{\partial^2 u_x(z)}{\partial z^2} &= -\frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \\
\Leftrightarrow \int_{h(x)}^z \partial \frac{\partial u_x(z)}{\partial z} &= - \int_{h(x)}^z \frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \partial z \\
\Leftrightarrow \left[\frac{\partial u_x(z)}{\partial z} \right]_{h(x)}^z &= - \left[\frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} z \right]_{h(x)}^z \\
\Leftrightarrow \frac{\partial u_x(z)}{\partial z} - \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} &= -\frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} (z - h(x)) \\
\Leftrightarrow \int_0^z \partial u_x(z) &= \int_0^z \left[\frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} (h(x) - z) + \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \right] \partial z \\
\Leftrightarrow [u_x(z)]_0^z &= \left[\frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \left(h(x)z - \frac{z^2}{2} \right) + \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z \right]_0^z \\
\Leftrightarrow u_x(z) - U_d &= \frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \left(h(x)z - \frac{z^2}{2} \right) + \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z \\
u_x(z) &= \frac{\gamma}{\mu} \frac{\partial^3 h(x)}{\partial x^3} \left(h(x)z - \frac{z^2}{2} \right) + \frac{1}{\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} z + U_d
\end{aligned}$$

9 Résolution numérique de l'équation de lubrification

Le point important dans la résolution numérique est la définition des **conditions limites**. En effet on ne peut pas définir numériquement des bornes infinies.

Théorie : $h_{\text{film plat}}^* = 1, \quad h_{\text{film plat}}^{*'} = 0, \quad h_{\text{film plat}}^{*''}$

Numérique : $h^*(x) = 1 + \epsilon(x), \quad h^{*'}(x) = \epsilon'(x), \quad h^{*''}(x) = \epsilon''(x)$

9.1 Détermination de la fonction $\epsilon(x)$

Pour une équation de lubrification de la forme :

$$h^{*'''} = \alpha \frac{1 - h^*}{h^{*3}}$$

On sait qu'en théorie : $h^*(\infty) = 1, \quad h^{*'}(\infty) = 0, \quad h^{*''}(\infty)$. Un développement limité s'impose afin de connaître à quelle vitesse $h^{*''}$ tend vers zéro lorsque h^* tend vers 1.

On pose alors $h^* = 1 + \epsilon$. Finalement le changement de variable amène aux relations :

$$h^* = 1 + \epsilon$$

$$h^{*'} = \epsilon'$$

$$h^{*''} = \epsilon''$$

l'équation de lubrification devient :

$$\epsilon^{'''} = \alpha \frac{-\epsilon}{(1 + \epsilon)^3}$$

sachant que $\epsilon_{\text{film plat}} = 0$, on peut faire une simplification de l'équation différentielle autour de l'infinie qui donne :

$$\boxed{\epsilon^{'''} = -\alpha\epsilon}$$

Cette équation a donc une solution de la forme exponentielle : $\epsilon(x) = \lambda e^{px}$

$$\epsilon(x) = \lambda e^{px}$$

$$\epsilon'(x) = p\lambda e^{px}$$

$$\epsilon''(x) = p^2\lambda e^{px}$$

$$\epsilon^{'''}(x) = p^3\lambda e^{px}$$

L'équation caractéristique associée est alors : $p^3 = \alpha e^{i(\pi+2\pi k)}, k \in \mathbb{N}$

$$\Leftrightarrow p = \alpha^{1/3} e^{i(\frac{\pi}{3} + \frac{2\pi}{3}k)}, k \in \mathbb{N}$$

Soit les valeurs de p suivantes :

$$p_1 = \alpha^{1/3} \times e^{i\frac{\pi}{3}}$$

$$p_2 = \alpha^{1/3} \times e^{i\pi}$$

$$p_3 = \alpha^{1/3} \times e^{i\frac{5\pi}{3}}$$

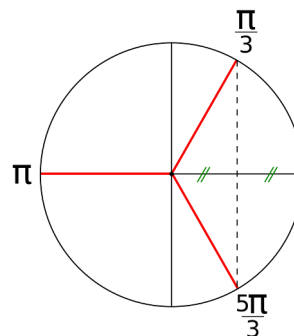


FIGURE 5.14: Représentation des pôles sur le cercle trigonométrique.

Le profil de la bulle peut alors s'écrire de la manière suivante :

$$h^*(x) = 1 + \lambda_1 e^{\alpha^{1/3} \times e^{i\frac{\pi}{3}} \times x} + \lambda_2 e^{\alpha^{1/3} \times e^{i\pi} \times x} + \lambda_3 e^{\alpha^{1/3} \times e^{i\frac{5\pi}{3}} \times x}$$

$$\Leftrightarrow h^*(x) = 1 + \lambda_1 e^{\alpha^{1/3} \times (\frac{1}{2} + i\frac{\sqrt{3}}{2}) \times x} + \lambda_2 e^{-\alpha^{1/3} \times x} + \lambda_3 e^{\alpha^{1/3} \times (\frac{1}{2} - i\frac{\sqrt{3}}{2}) \times x}$$

Profil avant de la bulle

Le film plat est situé en $x \rightarrow \infty$, il faut donc pour respecter la condition : $h_{\text{film plat}}^* = 1$ que les parties réelles des racines soient négatives, soit :

$$\lambda_1 = \lambda_3 = 0$$

On a alors les conditions limites numériques suivantes :

$$h^* = 1 + \lambda_2 e^{-\alpha^{1/3} \times x}$$

$$h^{*'} = (-\alpha^{1/3}) \lambda_2 e^{-\alpha^{1/3} \times x}$$

$$h^{*''} = (-\alpha^{1/3})^2 \lambda_2 e^{-\alpha^{1/3} \times x}$$

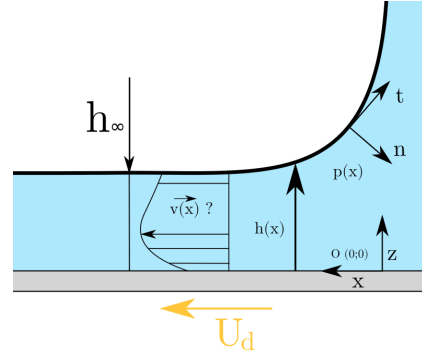


FIGURE 5.15: Schéma du profil avant de la bulle.

Profil arrière de la bulle

Désormais le film plat se situe en $-\infty$. Le pôle de la partie arrière de la bulle doit être celui à partie réelle positive en ce qui concerne la partie imaginaire, soit :

$$\lambda_2 = 0$$

On a alors les conditions limites numériques suivantes :

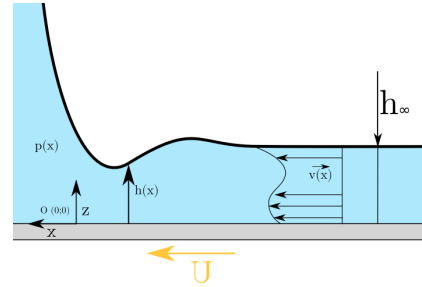


FIGURE 5.16: Schéma du profil arrière de la bulle.

$$h^* = 1 + \lambda_1 e^{\alpha^{1/3} \times (\frac{1}{2} + i\frac{\sqrt{3}}{2}) \times x} + \lambda_3 e^{\alpha^{1/3} \times (\frac{1}{2} - i\frac{\sqrt{3}}{2}) \times x}$$

$$h^{*'} = \alpha^{1/3} \left[(\frac{1}{2} + i\frac{\sqrt{3}}{2}) \lambda_1 e^{\alpha^{1/3} (\frac{1}{2} + i\frac{\sqrt{3}}{2}) x} + (\frac{1}{2} - i\frac{\sqrt{3}}{2}) \lambda_3 e^{\alpha^{1/3} (\frac{1}{2} - i\frac{\sqrt{3}}{2}) x} \right]$$

$$h^{*''} = \alpha^{2/3} \left[(\frac{1}{2} + i\frac{\sqrt{3}}{2})^2 \lambda_1 e^{\alpha^{1/3} (\frac{1}{2} + i\frac{\sqrt{3}}{2}) x} + (\frac{1}{2} - i\frac{\sqrt{3}}{2})^2 \lambda_3 e^{\alpha^{1/3} (\frac{1}{2} - i\frac{\sqrt{3}}{2}) x} \right]$$

$$h^* = 1 + \lambda Re \left(e^{\alpha^{1/3} e^{i\frac{\pi}{3}} \times x} \right) = 1 + \lambda e^{\alpha^{1/3} \cos(\frac{\pi}{3}) x} \times Re \left(e^{i\alpha^{1/3} \sin(\frac{\pi}{3}) x} \right)$$

$$h^{*'} = \lambda Re \left((\alpha^{1/3} e^{i\frac{\pi}{3}}) e^{\alpha^{1/3} e^{i\frac{\pi}{3}} \times x} \right) = \alpha^{1/3} \lambda Re \left(e^{\alpha^{1/3} e^{i\frac{\pi}{3}} \times x + i\frac{\pi}{3}} \right)$$

$$h^{*''} = \lambda Re \left((\alpha^{1/3} e^{i\frac{\pi}{3}})^2 e^{\alpha^{1/3} e^{i\frac{\pi}{3}} \times x} \right) = \alpha^{2/3} \lambda \left(e^{\alpha^{1/3} e^{i\frac{\pi}{3}} \times x + i\frac{2\pi}{3}} \right)$$

Qui se simplifie en :

$$\begin{aligned}h^* &= 1 + \lambda e^{\alpha^{1/3} \frac{x}{2}} \times \cos\left(\alpha^{1/3} \frac{\sqrt{3}}{2} \times x + \Phi\right) \\h^{*'} &= \alpha^{1/3} \lambda e^{\alpha^{1/3} \frac{x}{2}} \times \cos\left(\alpha^{1/3} \frac{\sqrt{3}}{2} \times x + \frac{\pi}{3} + \Phi\right) \\h^{*''} &= \alpha^{2/3} \lambda e^{\alpha^{1/3} \frac{x}{2}} \times \cos\left(\alpha^{1/3} \frac{\sqrt{3}}{2} \times x + \frac{2\pi}{3} + \Phi\right)\end{aligned}$$

Ces équations peuvent désormais être résolues numériquement, avec MATLAB par exemple.

10 Méthode des incertitudes aléatoires

Lors de la mesure d'une grandeur physique x , l'erreur est la différence entre la valeur mesurée x et la valeur vraie X . La valeur vraie est en général inconnue.

10.1 Présentation d'un résultat expérimental

L'écriture rapportant la mesure d'une grandeur physique x est :

$$\text{valeur mesurée de } x = \bar{x} \pm \delta x$$

où \bar{x} est la meilleure estimation de la valeur vraie X et δx l'incertitude sur la mesure (incertitude absolue). En l'absence d'erreurs systématiques, la valeur vraie de x se trouve probablement dans (ou proche de) l'intervalle allant de $\bar{x} - \delta x$ à $\bar{x} + \delta x$.

L'évaluation d'une incertitude expérimentale à partir de l'étude statistique directe de la grandeur physique recherchée est présentée dans la SECTION 10.2. Dans la SECTION 10.3, on donne les méthodes de calcul d'une incertitude dans le cas où une formule mathématique relie la grandeur physique étudiée aux diverses grandeurs effectivement mesurées.

10.2 Analyse statistique d'une série de mesures

Si on réalise n mesures de x , avec les résultats x_1, x_2, \dots, x_n , on écrira le résultat final sous la forme :

$$x = \bar{x} \pm \frac{\sigma_x}{\sqrt{n}}$$

10.3 Propagation des incertitudes

On connaît les grandeurs expérimentales x, y, \dots avec les incertitudes $\delta x, \delta y, \dots$. Quelle est l'incertitude δq sur la grandeur $q = f(x, y, \dots)$?

$$q = f(x, y, \dots)$$

alors

$$\delta q = \sqrt{\left|\frac{\partial f}{\partial x}\right|^2 (\delta x)^2 + \left|\frac{\partial f}{\partial y}\right|^2 (\delta y)^2 + \dots}$$

Bibliographie

- [1] Koji Abe, Koji Suzuki, and Daniel Citterio. Inkjet-printed microfluidic multianalyte chemical sensing paper. *Analytical chemistry*, 80(18) :6928–6934, 2008.
- [2] Vladimir S Ajaev and GM Homsy. Modeling shapes and dynamics of confined bubbles. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 38 :277–307, 2006.
- [3] Omer Atasi, Benoit Haut, Sam Dehaeck, Adrien Dewandre, Dominique Legendre, and Benoit Scheid. How to measure the thickness of a lubrication film in a pancake bubble with a single snapshot? *Applied Physics Letters*, 113(17) :173701, 2018.
- [4] L. Landau B. Levich. Dragging of a liquid by a moving plate. *Acta Physicochim. URSS*, 17 :42, 1942.
- [5] Jean-Christophe Baret. Surfactants in droplet-based microfluidics. *Lab on a Chip*, 12(3) :422–433, 2012.
- [6] Charles N Baroud, Francois Gallaire, and Rémi Dangla. Dynamics of microfluidic droplets. *Lab on a Chip*, 10(16) :2032–2045, 2010.
- [7] GK Batchelor. Brownian diffusion of particles with hydrodynamic interaction. *Journal of Fluid Mechanics*, 74(1) :1–29, 1976.
- [8] David J Beebe, Glennys A Mensing, and Glenn M Walker. Physics and applications of microfluidics in biology. *Annual review of biomedical engineering*, 4(1) :261–286, 2002.
- [9] Nupura S Bhise, Joao Ribas, Vijayan Manoharan, Yu Shrike Zhang, Alessandro Polini, Solange Massa, Mehmet R Dokmeci, and Ali Khademhosseini. Organ-on-a-chip platforms for studying drug delivery systems. *Journal of Controlled Release*, 190 :82–93, 2014.
- [10] MJ Boussinesq. Sur l’existence d’une viscosité superficielle, dans la mince couche de transition séparant un liquide d’un autre fluide contigu. *Ann. Chim. Phys*, 29 :349–357, 1913.
- [11] Howard Brenner. *Interfacial transport processes and rheology*. Elsevier, 2013.
- [12] FP Bretherton. The motion of long bubbles in tubes. *Journal of Fluid Mechanics*, 10(02) :166–188, 1961.

- [13] Henrik Bruus. *Theoretical microfluidics*, volume 18. Oxford university press Oxford, 2008.
- [14] Isabelle Cantat. Liquid meniscus friction on a wet plate : Bubbles, lamellae, and foams. *Physics of Fluids*, 25(3) :031303, 2013.
- [15] Lorene Champougny. *Génération et rupture de films liquides minces*. PhD thesis, Université Paris-Saclay, 2015.
- [16] Rémi Dangla, François Gallaire, and Charles N Baroud. Microchannel deformations due to solvent-induced pdms swelling. *Lab on a Chip*, 10(21) :2972–2978, 2010.
- [17] Prabir Daripa and Gelu Paşa. The effect of surfactant on the motion of long bubbles in horizontal capillary tubes. *Journal of Statistical Mechanics : Theory and Experiment*, 2010(02) :L02002, 2010.
- [18] Nikolai D Denkov, Slavka Tcholakova, Konstantin Golemanov, KP Ananthpadmanabhan, and Alex Lips. The role of surfactant type and bubble surface mobility in foam rheology. *Soft Matter*, 5(18) :3389–3408, 2009.
- [19] B Derjaguin and L Landau. The theory of stability of highly charged lyophobic sols and coalescence of highly charged particles in electrolyte solutions. *Acta Physicochim. URSS*, 14(633-52) :58, 1941.
- [20] B Derjaguin and E Obuchov. Ultramicrometric analysis of solvate layer and elementary expansion effects. *Acta Physicochimica URSS*, 5(1), 1936.
- [21] BVCR Derjaguin. Thickness of liquid layer adhering to walls of vessels on their emptying and the theory of photo-and motion-picture film coating. In *CR (Dokl.) Acad. Sci. URSS*, volume 39, pages 13–16, 1943.
- [22] Fred Fairbrother and Alfred E Stubbs. 119. studies in electro-endosmosis. part vi. the “bubble-tube” method of measurement. *Journal of the Chemical Society (Resumed)*, pages 527–529, 1935.
- [23] JP Fang and P Joos. The dynamic surface tension of sds—dodecanol mixtures : 1. the submicellarsystems. *Colloids and surfaces*, 65(2-3) :113–120, 1992.
- [24] JP Fang and P Joos. The dynamic surface tension of sds—dodecanol mixtures 2. micellar sds—dodecanol mixtures. *Colloids and surfaces*, 65(2-3) :121–129, 1992.
- [25] Piotr Garstecki, Michael J Fuerstman, Howard A Stone, and George M Whitesides. Formation of droplets and bubbles in a microfluidic t-junction—scaling and mechanism of break-up. *Lab on a Chip*, 6(3) :437–446, 2006.
- [26] Josiah Willard Gibbs. *The scientific papers of J. Willard Gibbs*, volume 1. Longmans, Green and Company, 1906.

- [27] HL Goldsmith and SG Mason. The microrheology of dispersions. In *Rheology*, pages 85–250. Elsevier, 1967.
- [28] SR Hodges, OE Jensen, and JM Rallison. The motion of a viscous drop through a cylindrical tube. *Journal of fluid mechanics*, 501 :279–301, 2004.
- [29] Chao-June Huang, Yi-Hsin Chen, Chih-Hao Wang, Tse-Chuan Chou, and Gwo-Bin Lee. Integrated microfluidic systems for automatic glucose sensing and insulin injection. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 122(2) :461–468, 2007.
- [30] Axel Huerre. *Migration de gouttes en microfluidique : caractérisation et applications*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, 2015.
- [31] Axel Huerre, Olivier Theodoly, Alexander M Leshansky, Marie-Pierre Valignat, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien. Droplets in microchannels : dynamical properties of the lubrication film. *Physical review letters*, 115(6) :064501, 2015.
- [32] Axel Huerre, Marie-Pierre Valignat, AC Maggs, Olivier Theodoly, and Marie-Caroline Jullien. Laplace pressure based disjoining pressure isotherm in non symmetric conditions. *Applied Physics Letters*, 111(22) :221601, 2017.
- [33] Dongeun Huh, Benjamin D Matthews, Akiko Mammoto, Martín Montoya-Zavala, Hong Yuan Hsin, and Donald E Ingber. Reconstituting organ-level lung functions on a chip. *Science*, 328(5986) :1662–1668, 2010.
- [34] Joeska Husny and Justin J Cooper-White. The effect of elasticity on drop creation in t-shaped microchannels. *Journal of non-newtonian fluid mechanics*, 137(1-3) :121–136, 2006.
- [35] Joeska Husny, Hengyi Jin, Erol C Harvey, and Justin Cooper-White. The creation of drops in t-shaped microfluidic devices with the ”modified“laser–liga technique : I. fabrication. *Smart materials and structures*, 15(1) :S117, 2005.
- [36] Nick Jaensson and Jan Vermant. Tensiometry and rheology of complex interfaces. *Current opinion in colloid & interface science*, 2018.
- [37] ID Johnston, DK McCluskey, CKL Tan, and MC Tracey. Mechanical characterization of bulk sylgard 184 for microfluidics and microengineering. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 24(3) :035017, 2014.
- [38] Régis Joulié. *Mécanique des fluides appliquée*. Ellipses/Marketing, 1998.
- [39] Toshimitsu Kanai and Masaki Tsuchiya. Microfluidic devices fabricated using stereolithography for preparation of monodisperse double emulsions. *Chemical Engineering Journal*, 290 :400–404, 2016.
- [40] Alireza Karbalaei, Ranganathan Kumar, and Hyoung Cho. Thermocapillarity in microfluidics — a review. *Micromachines*, 7(1) :13, 2016.

- [41] Rohit Karnik, Frank Gu, Pamela Basto, Christopher Cannizzaro, Lindsey Dean, William Kyei-Manu, Robert Langer, and Omid C Farokhzad. Microfluidic platform for controlled synthesis of polymeric nanoparticles. *Nano letters*, 8(9) :2906–2912, 2008.
- [42] George S Kell. Density, thermal expansivity, and compressibility of liquid water from 0. deg. to 150. deg.. correlations and tables for atmospheric pressure and saturation reviewed and expressed on 1968 temperature scale. *Journal of Chemical and Engineering Data*, 20(1) :97–105, 1975.
- [43] Joseph Kestin, Mordechai Sokolov, and William A Wakeham. Viscosity of liquid water in the range- 8 c to 150 c. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 7(3) :941–948, 1978.
- [44] Ju-Han Kim, Hyun-Sik Hwang, Si-Woo Hahm, and Dahl-Young Khang. Hydrophobically recovered and contact printed siloxane oligomers for general-purpose surface patterning. *Langmuir*, 26(15) :13015–13019, 2010.
- [45] Anne R Kopf-Sill and GM Homsy. Bubble motion in a hele–shaw cell. *The Physics of fluids*, 31(1) :18–26, 1988.
- [46] K Kwapiszewska, A Michalczuk, M Rybka, R Kwapiszewski, and Z Brzózka. A microfluidic-based platform for tumour spheroid culture, monitoring and drug screening. *Lab on a Chip*, 14(12) :2096–2104, 2014.
- [47] E Lajeunesse and GM Homsy. Thermocapillary migration of long bubbles in polygonal tubes. ii. experiments. *Physics of Fluids*, 15(2) :308–314, 2003.
- [48] D Langevin. Rheology of adsorbed surfactant monolayers at fluid surfaces. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 46 :47–65, 2014.
- [49] Chantal LARPENT. *Tensioactifs*. Ed. Techniques Ingénieur, 1995.
- [50] Ying-Chih Liao, Yen-Ching Li, Yu-Chih Chang, Chih-Yung Huang, and Hsien-Hung Wei. Speeding up thermocapillary migration of a confined bubble by wall slip. *Journal of Fluid Mechanics*, 746 :31–52, 2014.
- [51] Victor A Lifton. Microfluidics : an enabling screening technology for enhanced oil recovery (eor). *Lab on a Chip*, 16(10) :1777–1796, 2016.
- [52] M Loewenberg and EJ Hinch. Numerical simulation of a concentrated emulsion in shear flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 321 :395–419, 1996.
- [53] Ali Mazouchi and GM Homsy. Thermocapillary migration of long bubbles in cylindrical capillary tubes. *Physics of Fluids*, 12(3) :542–549, 2000.
- [54] Vincent Miralles, Axel Huerre, Florent Malloggi, and Marie-Caroline Jullien. A review of heating and temperature control in microfluidic systems : techniques and applications. *Diagnostics*, 3(1) :33–67, 2013.

- [55] Vincent Miralles, Emmanuelle Rio, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien. Investigating the role of a poorly soluble surfactant in a thermally driven 2d microfoam. *Soft matter*, 12(33) :7056–7062, 2016.
- [56] Vincent Miralles, Emmanuelle Rio, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien. Investigating the role of a poorly soluble surfactant in a thermally driven 2d microfoam. *Soft matter*, 12(33) :7056–7062, 2016.
- [57] James E Monogan. *Political analysis using R*. Springer, 2015.
- [58] Takasi Nisisako, Toru Torii, and Toshiro Higuchi. Droplet formation in a microchannel network. *Lab on a Chip*, 2(1) :24–26, 2002.
- [59] Teri W Odom, J Christopher Love, Daniel B Wolfe, Kateri E Paul, and George M Whitesides. Improved pattern transfer in soft lithography using composite stamps. *Langmuir*, 18(13) :5314–5320, 2002.
- [60] Jordan T Petkov, Theodor D Gurkov, Bruce E Campbell, and Rajendra P Borwankar. Dilatational and shear elasticity of gel-like protein layers on air/water interface. *Langmuir*, 16(8) :3703–3711, 2000.
- [61] Lucien Quaranta. *Dictionnaire de physique expérimentale : Tome I - La Mécanique*. Ed. Pierron, 2002.
- [62] N Quennouz, M Ryba, J-F Argillier, Benjamin Herzhaft, Yannick Peysson, and Nicolas Pannacci. Microfluidic study of foams flow for enhanced oil recovery (eor). *Oil & Gas Science and Technology—Revue d'IFP Energies nouvelles*, 69(3) :457–466, 2014.
- [63] J Ratulowski and H-C Chang. Marangoni effects of trace impurities on the motion of long gas bubbles in capillaries. *Journal of Fluid Mechanics*, 210 :303–328, 1990.
- [64] Benjamin Reichert. Dynamique d'une goutte 2d dans une cellule de hele-shaw. 2017.
- [65] Benjamin Reichert, Axel Huerre, Olivier Theodoly, Marie-Pierre Valignat, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien. Topography of the lubrication film under a pancake droplet travelling in a hele-shaw cell. *Journal of Fluid Mechanics*, 850 :708–732, 2018.
- [66] BA Remington, SV Weber, SW Haan, JD Kilkenny, SG Glendinning, RJ Wallace, Wh H Goldstein, BG Wilson, and JK Nash. Laser-driven hydrodynamic instability experiments. *Physics of Fluids B : Plasma Physics*, 5(7) :2589–2595, 1993.
- [67] Emmanuelle Rio. Stabilité des mousses : quelques expériences montrant l'influence de la rhéologie de surface. HDR, 2013.
- [68] Gil Nonato C. Santos and Alfonso C. Danac. *RBS Science and Technology Series - Investigatory Physics*, volume 4. Rex Book Store Inc., 2006.

- [69] Jeffrey D Scargle. Publication bias (the "file-drawer problem") in scientific inference. *arXiv preprint physics/9909033*, 1999.
- [70] Benoît Scheid, Jérôme Delacotte, Benjamin Dollet, Emmanuelle Rio, Frédéric Restagno, EA Van Nierop, Isabelle Cantat, Dominique Langevin, and Howard A Stone. The role of surface rheology in liquid film formation. *EPL (Europhysics Letters)*, 90(2) :24002, 2010.
- [71] Fellner Schneider, T Fellner, J Wilde, and U Wallrabe. Mechanical properties of silicones for mems. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 18(6) :065008, 2008.
- [72] Karin Schroen, Olesya Bliznyuk, Kelly Muijlwijk, Sami Sahin, and Claire C Berton-Carabin. Microfluidic emulsification devices : from micrometer insights to large-scale food emulsion production. *Current Opinion in Food Science*, 3 :33–40, 2015.
- [73] LE Scriven. Dynamics of a fluid interface equation of motion for newtonian surface fluids. *Chemical Engineering Science*, 12(2) :98–108, 1960.
- [74] Bertrand Selva, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien. Temperature-induced migration of a bubble in a soft microcavity. *Physics of fluids*, 23(5) :052002, 2011.
- [75] Bertrand Selva, Julien Marchalot, and Marie-Caroline Jullien. An optimized resistor pattern for temperature gradient control in microfluidics. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 19(6) :065002, 2009.
- [76] Rhutesh K Shah, Ho Cheung Shum, Amy C Rowat, Daeyeon Lee, Jeremy J Agresti, Andrew S Utada, Liang-Yin Chu, Jin-Woong Kim, Alberto Fernandez-Nieves, Carlos J Martinez, et al. Designer emulsions using microfluidics. *Materials Today*, 11(4) :18–27, 2008.
- [77] Amy Q Shen, Blake Gleason, Gareth H McKinley, and Howard A Stone. Fiber coating with surfactant solutions. *Physics of Fluids*, 14(11) :4055–4068, 2002.
- [78] K Mysels KJ Shinoda. Frankel. soap films : Studies of their thinning, 1959.
- [79] Jayaprakash Sivasamy, Teck-Neng Wong, Nam-Trung Nguyen, and Linus Tzu-Hsiang Kao. An investigation on the mechanism of droplet formation in a microfluidic t-junction. *Microfluidics and nanofluidics*, 11(1) :1–10, 2011.
- [80] O Skurtys and JM Aguilera. Applications of microfluidic devices in food engineering. *Food Biophysics*, 3(1) :1–15, 2008.
- [81] Todd M Squires and Stephen R Quake. Microfluidics : Fluid physics at the nanoliter scale. *Reviews of modern physics*, 77(3) :977, 2005.
- [82] Vijay Srinivasan, Vamsee K Pamula, and Richard B Fair. An integrated digital microfluidic lab-on-a-chip for clinical diagnostics on human physiological fluids. *Lab on a Chip*, 4(4) :310–315, 2004.

-
- [83] Vijay Srinivasan, Vamsee K Pamula, Michael G Pollack, and Richard B Fair. Clinical diagnostics on human whole blood, plasma, serum, urine, saliva, sweat, and tears on a digital microfluidic platform. In *Proc. MicroTAS*, pages 1287–1290, 2003.
- [84] KJ Stebe and D Barthes-Biesel. Marangoni effects of adsorption—desorption controlled surfactants on the leading end of an infinitely long bubble in a capillary. *Journal of Fluid Mechanics*, 286 :25–48, 1995.
- [85] CV Sternling and LE Scriven. Interfacial turbulence : hydrodynamic instability and the marangoni effect. *AIChE Journal*, 5(4) :514–523, 1959.
- [86] Patrick Tabeling. *Introduction to microfluidics*. OUP Oxford, 2005.
- [87] Saleh Tanveer. The effect of surface tension on the shape of a hele–shaw cell bubble. *The Physics of fluids*, 29(11) :3537–3548, 1986.
- [88] Geoffrey Taylor and PG Saffman. A note on the motion of bubbles in a hele-shaw cell and porous medium. *The Quarterly Journal of Mechanics and Applied Mathematics*, 12(3) :265–279, 1959.
- [89] Shia-Yen Teh, Robert Lin, Lung-Hsin Hung, and Abraham P Lee. Droplet microfluidics. *Lab on a Chip*, 8(2) :198–220, 2008.
- [90] Gary F Teletzke, H Ted Davis, and LE Scriven. Wetting hydrodynamics. *Revue de Physique Appliquee*, 23(6) :989–1007, 1988.
- [91] Olivier Theodoly, Z-H Huang, and M-P Valignat. New modeling of reflection interference contrast microscopy including polarization and numerical aperture effects : application to nanometric distance measurements and object profile reconstruction. *Langmuir*, 26(3) :1940–1948, 2009.
- [92] Gregory A Tokaty. *A history and philosophy of fluid mechanics*. Courier Corporation, 1994.
- [93] Vincent van Duinen, Sebastiaan J Trietsch, Jos Joore, Paul Vulto, and Thomas Hankemeier. Microfluidic 3d cell culture : from tools to tissue models. *Current opinion in biotechnology*, 35 :118–126, 2015.
- [94] J Th G Verwey. Overbeek, theory of stability of lyophobic colloids, 1954.
- [95] DA White and JA Tallmadge. Theory of drag out of liquids on flat plates. *Chemical Engineering Science*, 20(1) :33–37, 1965.
- [96] George M Whitesides. The origins and the future of microfluidics. *Nature*, 442(7101) :368, 2006.
- [97] Harris Wong, CJ Radke, and S Morris. The motion of long bubbles in polygonal capillaries. part 1. thin films. *Journal of Fluid Mechanics*, 292 :71–94, 1995.

- [98] Harris Wong, CJ Radke, and S Morris. The motion of long bubbles in polygonal capillaries. part 2. drag, fluid pressure and fluid flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 292 :95–110, 1995.
- [99] JH Xu, SW Li, J Tan, YJ Wang, and GS Luo. Preparation of highly monodisperse droplet in a t-junction microfluidic device. *AIChE journal*, 52(9) :3005–3010, 2006.

RÉSUMÉ

La dynamique d'une bulle/goutte confinée à l'échelle micrométrique dépend des conditions limites à son interface (Cantat, PoF 2013). On reporte deux configurations expérimentales classiques (sans tensio-actifs) :

- une bulle stress-free mise en mouvement par un gradient de pression dans la phase externe (Bretherton, JFM 1961) ;
- une bulle mise en mouvement par une contrainte interfaciale de Marangoni provenant d'un gradient thermique (Mazouchi et al., PoF 2000).

Afin d'étudier l'influence de ces conditions limites, nous avons mis au point un système microfluidique permettant de contrôler la contrainte interfaciale de la bulle/goutte par une contrainte thermocapillaire de Marangoni. L'objectif est de combiner les deux configurations de mise en mouvement énoncées précédemment, en imposant un gradient de pression et un gradient de température externe, avec une approche théorique et expérimentale. Nous avons développé un modèle permettant d'englober les deux contributions et de le comparer aux expérimentations.

MOTS CLÉS

Microfluidique, goutte, bulle, Bretherton, Mazouchi, effet Marangoni.

ABSTRACT

The motion of a confined bubble/droplet is known to be influenced by the boundary conditions at the interface between the dispersed and continuous phases (Cantat, PoF 2013). Two classical experimental configurations (without any surfactants) have been reported :

- a stress-free bubble pushed by an external phase, known as the Bretherton problem (Bretherton, JFM 1961);
- a bubble pushed by Marangoni stress at the interface stemming from a constant temperature gradient, known as the Mazouchi problem (Mazouchi et al., PoF 2000).

In order to study the influence of those boundary conditions, we have developed a microfluidic system allowing to monitor the bubble/droplet interfacial stress with a thermocapillary Marangoni stress.

Our goal is to combine both of these configurations, by imposing an external pressure gradient and an external temperature gradient, with both theoretical and experimental approaches. We will present a new theoretical framework allowing to encompass both these contributions to the bubble/droplet motion, as well as corresponding experimental realisations.

KEYWORDS

Microfluidics, droplet, bubble, Bretherton, Mazouchi, Marangoni effect.

