Mod '

elisation de la dynamique dans un canal droit

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

3.1 Le régime visco-capillaire

3.1.1 Nombres adimensionnels

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

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



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

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

Typiquement, les valeurs du nombre capillaire données ci-dessus sont faibles et elles correspondent à deux régimes distincts. Pour $Ca < 10^{-6} - 10^{-5}$, l'hypothèse quasi-statique est généralement admise et la forme des interfaces est peu influencée par l'écoulement dans le bouchon (Bico & Quéré, 2002*a*; Ajaev & Homsy, 2006; Dong & Chatzis, 1995). Lorsque $10^{-6} - 10^{-5} < Ca < 10^{-2} - 10^{-1}$, les effets visqueux ne deviennent plus négligeables et la forme des interfaces est affectée localement par l'écoulement confiné entre ces dernières et les parois du canal. Les fortes dissipations hydrodynamiques qui y ont lieu sont responsables de la déformation des interfaces. Loin des parois, les forces de tension de surface dominent néanmoins et la courbure des interfaces reste constante. Des exemples typiques de ces phénomènes à nombres capillaires intermédiaires sont la forme d'une bulle d'air dans un écoulement (Wong *et al.*, 1995), la variation de l'angle de contact avec la vitesse de la ligne triple (Hoffman, 1975), ou encore le dépôt de liquide sur une fibre (Quéré, 1999). D'autres dissipations peuvent venir s'ajouter à cette dissipation hydrodynamique : dans le cas des liquides partiellement mouillants, on peut notamment mentionner les phénomènes d'élasticité de la ligne de contact et d'accrochage sur des défauts (Raphael & de Gennes, 1989; Joanny & Robbins, 1990) ou encore d'ondes capillaires (Zhou & Sheng, 1990). Enfin, lorsque le nombre capillaire devient grand ($Ca > 10^{-1}$), des transitions vers d'autres régimes d'écoulements peuvent avoir lieu (Colin, 2004), ou l'influence de l'inertie via le nombre de Weber peut se faire sentir (Quéré, 1991).

3.1.2 Le modèle visco-capillaire

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

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

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

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

3.1.3 Modélisation de la dissipation visqueuse

Le terme P_{visc} représente les dissipations visqueuses ayant lieu dans l'air en amont et en aval des bouchons et dans le liquide constituant ces derniers. La dissipation dans l'air peut être calculée en utilisant la loi de Poiseuille adaptée à la section rectangulaire des microcanaux. Pour cette géométrie, le coefficient de la loi de Poiseuille, noté α , s'obtient analytiquement au moyen de séries de Fourier et peut être approché par $\alpha = 12/h^2 \cdot [1 - 6 \cdot (h \cdot 2^5)/(w \cdot \pi^5)]^{-1} + O(h/w)$ (Brody *et al.*, 1996; Stone *et al.*, 2004; Ichikawa *et al.*, 2004). En réalité, on déterminera α au second ordre minimum. La dissipation visqueuse lors de l'écoulement du gaz dans le microcanal, notée \mathcal{P}_{visc}^{air} , s'écrit sous la forme

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

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

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

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

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

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

Précisons que, pour obtenir l'équation 3.4, on a fait l'hypothèse de nonglissement à la paroi, dont la légitimité en microfluidique est parfois discutée. Des expériences ont montré, dans le cadre d'écoulements monophasiques dans des microcanaux de taille caractéristique pouvant aller jusqu'à la dizaine de micromètres, des déviations par rapport à la prévision théorique de la loi de Poiseuille avec la condition de non-glissement (Anduze, 2000; Tretheway & Meinhart, 2002; Joseph & Tabeling, 2005). Cependant, les valeurs des longueurs de glissement obtenues diffèrent et la dimension caractéristique des microcanaux à partir de laquelle le glissement apparaît ne fait pas l'unanimité. On sait de plus que l'utilisation d'une surface hydrophobe (ou de manière équivalente d'un fluide peu mouillant tel que l'eau dans notre cas) favorise le glissement (Squires & Quake, 2005). Néanmoins, malgré ces remarques, on supposera l'hypothèse de nonglissement valide pour les conditions expérimentales en jeu ici.

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

3.1.4 Calcul des dissipations aux interfaces

Principe

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

$$P_{cap} = P_f - P_{visc}.$$
(3.5)

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

Application au liquide mouillant

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

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



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

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

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



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



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

Application aux liquides partiellement mouillants

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



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

Notons que sur ces graphes, l'effet de la température sur la tension de surface a également été pris en compte pour le calcul de la pression de référence et du nombre capillaire. Les viscosités et tensions de surface utilisées sont données dans la section 2.2.4. L'introduction d'une longueur de glissement aurait le même effet que l'influence de la température de la lampe du microscope sur la viscosité, puisqu'elle diminuerait la viscosité et permettrait donc d'aboutir également à une indépendance des termes capillaires vis à vis de la longueur des bouchons. Néanmoins, cet effet, qui n'aurait pas de conséquence sur les exposants d'éventuelles lois d'échelle, est négligé, la prise en compte seule de la température semblant être suffisante et raisonnable. Finalement, les termes capillaires obtenus pour les liquides partiellement mouillants sont reportés sur la figure 3.6. On utilise les pressions intermédiaires $(25-35-...-65 \text{ cm}_{H_2O})$ pour la solution aqueuse de glycérol. Les courbes obtenues montrent un comportement similaire pour les deux liquides lorsque les pressions de forçage deviennent importantes. Cela conforte la méthode de calcul du terme visqueux qui prend en compte la température du microscope. Néanmoins, pour les faibles pressions de forçage, les LPM 1 & 2 exhibent des tendances différentes, sans doute liées aux pressions seuils qui sont différentes pour les deux liquides. On peut également noter un problème avec l'eau et les bouchons forcés avec la pression P_3 (voir Fig. 3.5-a).



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

Comparaison des liquides

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



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

3.2 Modélisation des contributions capillaires

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

3.2.1 Modèle théorique pour le liquide mouillant

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

Lois de Tanner et de Bretherton en géométrie rectangulaire

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



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

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

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

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

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

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

où Γ est un facteur logaritmique, nécessaire à la résolution du calcul de la dissipation visqueuse au sommet de l'angle. On reviendra dans la discussion sur ce coefficient, dont la valeur dépend notamment du prémouillage du tube. Pour des tubes circulaires millimétriques, Bico & Quéré (2001) utilisent la valeur $\Gamma = 13$, dans la plage de valeurs généralement admises dans la littérature et pour les diverses formes de la loi de Tanner (Colin, 2004; de Gennes *et al.*, 2004). La loi de Tanner s'exprime donc sous la forme $\theta^{av} \simeq k_T C a^{1/3}$ où $k_T = (6\Gamma)^{1/3}$ est de l'ordre de 4-5 pour des tubes millimétriques. En utilisant les équations 3.6 et 3.7, et en développant le cosinus à l'ordre 2, il vient

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

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

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

$$\frac{2e_h}{h} = \frac{2e_w}{w} = k_B C a^{2/3}.$$
(3.9)

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

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

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

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

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

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

$$P_{cap} = kCa^{2/3}, (3.12)$$

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

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

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

Comparaison du modèle avec les expériences

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

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

soit

$$P_{cap} \sim Ca^{0.65 \pm 0.01},$$
 (3.15)

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

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

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

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

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

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



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

Influence du facteur de forme w/h et rôle des coins Le coefficient expérimental k obtenu pour le canal 1 ($w/h \simeq 4.7$) est inférieur à celui de la deuxième géométrie (canal 3, $w/h \simeq 8.4$). Il est difficile de connaître le rôle des coins et du facteur de forme dans les dissipations. Il est possible que la différence des rayons de courbure dans la largeur et l'épaisseur induise des gradients de pression capillaire qui influent sur le saut de pression à l'interface. Ces gradients de pression capillaire vont ainsi engendrer des écoulements des régions de plus faible courbure vers les régions de courbure supérieure. Cet effet est sans doute moindre pour les facteurs de forme de l'ordre de 1. Dans ce sens, en étudiant le déplacement de bulles dans des géométries carrées, Wong et al. (1995) ont obtenu des sauts de pression dynamiques aux interfaces voisins de ceux obtenus par Bretherton dans la géométrie circulaire $(\mathcal{P}_l - \mathcal{P}_g = 3.57 C a^{2/3})$. Pour la loi de Tanner, les coefficients expérimentaux en géométrie rectangulaire sont inférieurs à ceux de la géométrie circulaire, mais restent néanmoins voisins $(k_T = 3.4, \text{ Chebbi } (2003))$. En prenant ces valeurs, on obtient un coefficient $k = 3.57 + 3.4^2/2 = 9$. Bien que d'autres investigations soient nécessaires, on peut finalement remarquer que l'extrapolation des résultats expérimentaux à une géométrie carrée (w/h = 1)présentée sur le graphique (b) de la figure 3.9, conduit à une valeur de l'ordre de 11. Celle-ci se rapproche de la valeur précédente et de celles calculées à partir du modèle circulaire de Bico & Quéré (2001) en situation sèche, pour des dimensions submillimétriques. Finalement, le coefficient expérimental k dépend des dimensions du canal mais sa valeur ne semble pas affectée par l'absence de contrôle de l'épaisseur du film de prémouillage.

3.2.2 Modèle empirique en mouillage partiel

Calcul d'un coefficient de friction

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

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

$$CF = P_{cap} - P_{seuil}.$$
(3.17)

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

Estimation de la pression seuil

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



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

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

Le coefficient de friction

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

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

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

Discussion

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

3.3 Lois de transport en microcanal

3.3.1 Lois de transport

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

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

et pour le liquide partiellement mouillant

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

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

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

3.3.2 Application



FIG. 3.11: Comparaison des vitesses expérimentales et théoriques. Pour le liquide mouillant (gauche), la courbe en trait discontinu correspond à une pression P_1 ajustée à 1.2 cm_{H₂O} au lieu de 1.5 cm_{H₂O}. (droite)- LPM 2.

En utilisant les formes dimensionnelles des équations 3.20 et 3.21, les coefficients numériques obtenus expérimentalement, ainsi que la valeur de la pression seuil pour le liquide partiellement mouillant, on peut calculer les courbes V-Lthéoriques de la figure 3.11. Le graphique (a) correspond au liquide mouillant tandis que sur la figure (b), il s'agit des bouchons de LPM 2. Les vitesses des bouchons sont prédites très correctement. Des déviations apparaissent pour la plus faible pression dans le cas mouillant et pour les hautes pressions dans le cas partiellement mouillant. Dans ce dernier cas, les erreurs sont dues à des imprécisions sur la mesure de la position des interfaces, dont la netteté diminue au fur et à mesure que les vitesses deviennent grandes. Pour le liquide mouillant, la ligne en trait pointillé de la figure 3.11-a est calculée en ajustant la pression : on a utilisé une valeur de 1.2 cm_{H₂O} au lieu de 1.5 cm_{H₂O}. De même, pour les courbes V - L correspondant au canal 3 non présentées ici, un ajustement de la pression P_1 de 0.6 cm_{H2Q} a été pratiqué afin de faire coincider les courbes théoriques et expérimentales. Les erreurs sur ces pressions sont trop grandes pour être dues à une erreur de mesure sur la source de pression constante, mais peuvent être dues à des déviations sur les dimensions des canaux. Ainsi, pour le canal 1, une erreur de pression de 0.3 cm_{H_2O} peut être engendrée, pour le liquide mouillant, par un gradient de pression capillaire équivalent à une différence de hauteur du canal de 3 μ m, soit une déviation relative sur la hauteur de 5 %. Pour le canal 3 $(h = 25 \ \mu m)$, une différence de 1 μm suffit à modifier la pression de forçage de 0.6 cm_{H₂O}. Ces déviations sur la hauteur sont tout à fait plausibles.

3.3.3 Extrapolation à deux bouchons de liquide mouillant

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

Les images de la figure 3.12-a montrent ainsi la propagation de deux bouchons dans un microcanal. Les résultats expérimentaux sont reportés sur la figure 3.12b. Les dimensions du canal sont $w \times h = 260 \times 55 \ \mu\text{m}$ et les pressions appliquées sont 3, 6 et 8 cm_{H₂O}. On observe également un régime stationnaire. En calculant la vitesse moyenne des bouchons et en sommant leur longueur (L_1 et L_2 , cf Fig. 3.12a), on peut calculer une prédiction théorique de la vitesse en fonction de $L = L_1 + L_2$. Le terme visqueux P_{visc} se calcule à partir de cette longueur tandis que le terme capillaire P_{cap} de l'équation 3.20 est multiplié par le nombre de bouchons. En notant n le nombre de bouchons, et ΣL la longueur totale de liquide, le modèle correspondant s'écrit

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

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



FIG. 3.12: **a**- Deux bouchons se propageant dans un microcanal. On observe également un régime stationnaire. **b**- Courbes expérimentales et théoriques pour deux bouchons. Les courbes théoriques sont calculées par l'équation 3.22 en sommant les longueurs dans le terme visqueux, et en multipliant les effets capillaires par le nombre de bouchons. Ici, $P_{1;2;3} = 3$; 6; 8 cm_{H₂O}, $w \times h = 260 \times 55 \ \mu$ m).

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

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

3.4 Conclusion

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

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

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

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

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