HAL
open science

Dynamiques d'imbibition en milieu confiné

Bertrand Levaché

To cite this version:

Bertrand Levaché. Dynamiques d'imbibition en milieu confiné. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2014. Français. NNT : . pastel-00966910v1

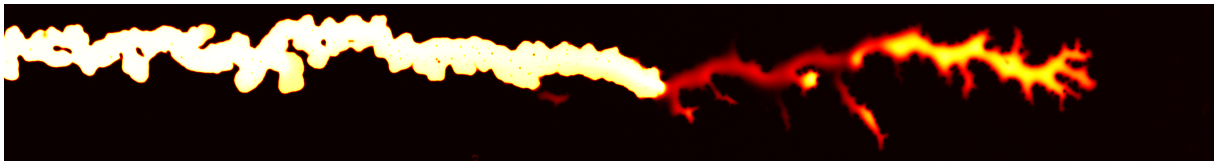
HAL Id: pastel-00966910

https://pastel.hal.science/pastel-00966910v1

Submitted on 27 Mar 2014 (v1), last revised 23 Jul 2014 (v2)

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

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



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité PHYSIQUE DES LIQUIDES

Ecole doctorale :
SCIENCES MÉCANIQUES, ACOUSTIQUE, ÉLECTRONIQUE & ROBOTIQUE DE PARIS
(ED 391)

DYNAMIQUES D'IMBIBITION EN MILIEU CONFINÉ

Présenté par

BERTRAND LEVACHÉ

Pour obtenir le grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Soutenue le : 03 MARS 2014

Devant la commission d'examen formée de :

M. Denis BARTOLO	Directeur de Thèse
M. Maurice BOURREL	Directeur de Thèse
M. Axel BUGUIN	Examinateur
Mme. Elise LORENCEAU	Rapporteur
M. Ignacio PAGONABARRAGA MORA	Examinateur
M. Enric SANTANACH CARRERAS	Invité
M. Christophe YBERT	Rapporteur

REMERCIEMENTS

N'ayant pu remercier comme je le souhaitais toutes les personnes m'ayant accompagné pendant ma thèse, j'utilise ces quelques lignes pour finaliser ces remerciements.

Je souhaite remercier en premier lieu mon directeur de thèse, Denis Bartolo. Merci beaucoup Denis pour la confiance que tu m'as accordé depuis maintenant presque 5 ans que l'on se connait. Grâce à toi, j'ai pu découvrir ce qu'était véritablement la recherche et tout l'engagement personnel qu'elle nécessite. Merci également pour les nombreuses discussions que l'on a pu avoir, notamment celles sur la technique où j'ai pris plaisir à imaginer avec toi de nombreuses idées "à tester" (même si un grand nombre d'entre elles ne l'ont finalement jamais été). Je voulais aussi te remercier pour la manière dont tu m'as guidé, et surtout la grande liberté que tu m'as laissé quand je voulais tester de nouvelles méthodes, tout en sachant me dire stop quand j'allais trop loin. Enfin merci pour tous le reste, en particulier les repas de groupe où, même si je parlais beaucoup moins que toi (profite en bien, avec Céleste ça risque d'être très différent), j'ai toujours passé de très bon moment.

Un grand merci également à toute l'équipe du "Bartolab". Les anciens thésards, Nicolas et Naïs, qui m'ont accueilli dans le groupe et avec qui j'ai eu de très bons moments. Les thésards actuels avec qui j'ai passé toute ma thèse : Raphaël (je sais que tu as soutenu avant moi mais c'est plus simple), Antoine, Nicolas et Jean-Baptiste pour les nombreux échanges et discutions que l'on a pu avoir au labo aussi bien qu'en dehors. J'ai vraiment passé 3-4 superbes années au sein du groupe et du laboratoire et c'est en grande partie grâce à vous. Un grand merci également à Céleste, "The best stagiaire ever" (j'ai fait court sur le titre mais j'espère qu'il te conviendra), non seulement pour ta joie de vivre mais aussi pour tout le travail et la patience dont tu as fait preuve durant le stage. Je suis vraiment heureux que

tu prennes la suite et je te souhaites le meilleur pour ta thèse.

Merci au trois joyeux fous : Sophie, Jojo et Raph du bureaux de rédaction pour les nombreuses rigolades, la cacao trop fort, les discutions sur les truites,... ils ont rendu cette période vraiment agréable.

Merci à tous le PMMH pour m'avoir accueilli, pour la bonne ambiance et la grande qualité scientifique du laboratoire. Merci à Frédérique, Amina et Claudette pour toute la gestion administrative qui m'ont grandement simplifié la vie. Merci également au laboratoire MMN dans lequel j'ai passé pratiquement la moitié de ma thèse et en particulier à Fabrice pour l'aide que tu m'as apporté pour les aspects technologiques.

Merci à tous mes amis de PC, du rugby et d'ailleurs, qui rendent ma vie si agréable. Merci aux anciens Porcelet (que je ne préfères pas citer individuellement pour ne pas risque d'en oublier) pour les grands matchs, 3ème mi-temps, soirée, ... qu'on a passé ensemble ! N'hésitez pas à venir à Pau, vous y serez toujours les bienvenue. Merci à toi Julie pour ces 1 ans et demi passé ensemble, et notamment un GRAND MERCI auquel je rajoute Gwen pour le pot de thèse. Merci enfin à toute ma famille pour le support dont vous avez fait preuve durant mes looooooonnnngues études, c'est vraiment magique d'avoir une famille telle que vous où l'on s'entend si bien.

Résumé

Ce travail de thèse expérimental porte sur les dynamiques d'imbibition en milieu confiné. Cette situation survient lorsque un fluide mouillant les parois d'un solide vient déplacer un second fluides non-miscible. La divergence des contraintes visqueuses au niveau de la ligne de contact avec le solide complexifie la description de la forme et de la dynamique d'invasion du ménisque qui ne peut se résumer, même aux échelles macroscopique du confinement solide, à l'avancement d'un front liquide homogène. L'absence de longueur caractéristique intrinsèque aux fluides nécessite de tenir compte des couplages entre écoulement et forme des interfaces à toutes les échelles, depuis le nanomètre (interactions moléculaires) jusqu'à l'échelle du confinement (une centaine de micromètres dans nos expériences). Ce caractère multi-échelle est au centre des travaux effectués durant cette thèse.

A l'aide du développement de nouveaux outils micro-fluidiques, nous étudions quantitativement l'imbibition dans une géométrie de type Hele-Shaw. Une étude à la fois expérimentale et numérique nous permet de mettre en évidence l'existence d'une nouvelle transition d'entrainement. Une étude complète du modèle numérique nous permet ensuite d'unifier ce nouveau mode avec celui reporté jusqu'à présent dans la littérature. Nous nous intéressons aussi à l'imbibition dans des réseaux poreux modèle. Nous identifions alors expérimentalement un nouveau mode d'invasion généralisant l'entrainement obtenu précédemment. Ce scénario est piloté par l'écoulement en film de coin autour des obstacles constituant le poreux. Nous proposons alors un critère géométrique simple pour discriminer les différents modes d'invasions.

Abstract

This experimental thesis deals with imbibition in confined media. This situation occurs when a fluid which preferentially wets the solid displaces another immiscible fluid. The divergence of the viscous stress at the contact line with the solid complicates the description of both the shape and the invasion dynamic of the meniscus that can no longer be described, even at the macroscopic length scale of the solid confinement, by only the displacement of a homogeneous liquid front. The absence of any intrinsic fluids length scale requires to take into account the coupling between the interface shape and the flow at all scales, from nanometers (molecular interaction) to solid confinement scale (hundred micrometers in our experiments). Multi-scale behavior will be the central point of this thesis.

Using new microfluidics tools, we first made a quantitative study of imbibitions in Hele-Shaw geometry. We demonstrate a new class of liquid entrainment transition both experimentally and numerically. In addition, an extensive analysis of our numerical model shows that it consistently describes all scenarios that have been reported so far. We then study imbibitions in model porous media. We demonstrate a new invasion process, where the flow occurs along the corner of the porous' obstacles, that generalizes the previous entrainment. We finally propose a geometric criterion that discriminates between the different invasion scenarios.

Table des matières

Résume - Abstract **5**

Table des matières **9**

1 Introduction **13**
1.1 Contexte pétrolier 14
1.2 Milieu poreux : caractérisation et écoulement de fluides 15
1.3 Écoulement diphasique en milieu poreux 17
1.3.1 Cas du drainage : $\theta_e > 90°$ 19
1.3.2 Cas de l'imbibition : $\theta_e < 90°$. 24
1.4 Déplacement d'un ménisque sur un solide 29
1.4.1 Ligne au recul : transition de mouillage 30
1.4.2 Ligne à l'avancée : transition de démouillage 30
1.5 Principaux résultats et structure du manuscrit 34

2 Expériences micro-fluidiques : instrumentation et imagerie **37**
2.1 Introduction 38
2.1.1 Objectif 38
2.1.2 Méthodologie 38
2.1.3 Cahier des charges 40
2.2 Géométrie du dispositif micro-fluidique 40
2.2.1 Pourquoi la micro-fluidique ? 40
2.2.2 Choix de la zone d'observation 40
2.2.3 Injection biphasique sans mélange initial 42
2.2.4 Dimensionnement des canaux 43

2.3 Choix du matériau 44
2.3.1 Cas du Polydiméthylsiloxane (PDMS) 44
2.3.2 Cas du verre 44
2.3.3 Cas de la NOA81 44
2.4 Processus général de fabrication 45
2.4.1 Réalisation du pré-moule 45
2.4.2 Fabrication des couches de NOA81 45
2.4.3 Assemblage du dispositif 46
2.5 Protocoles de fabrication 46
2.5.1 Méthode soft imprint 46
2.5.2 Méthode par capillarité 49
2.5.3 Méthode par utilisation de surfaces adhésives 52
2.5.4 Conclusion 55
2.6 Contrôle des propriétés de mouillages 55
2.6.1 Engineering the surface properties of microfluidic stickers . 56
2.6.2 Auto-fluorescence 64
2.7 Contrôle des écoulements 65
2.7.1 Connectiques 65
2.7.2 Méthode d'injection 65
2.7.3 Tube d'injection 67
2.7.4 Choix des fluides 68
2.7.5 Conclusion 69
2.8 Système d'acquisition 70
2.8.1 Objectif 70
2.8.2 Optique de visualisation 70
2.8.3 Choix de l'éclairage 72
2.8.4 Caméra d'acquisition 73
2.8.5 Méthode de mise au point 74
2.8.6 Conclusion 75
2.9 Analyse d'image 76
2.9.1 Objectifs 76
2.9.2 Utilisation pratique de la loi de Beer-Lambert 76
2.9.3 Calibration de la solution 78
2.9.4 Correction spatiale 80
2.9.5 Correction temporelle 80
2.9.6 Benchmark et précision 83
2.10 Conclusion 84

3 Expérience de Saffman-Taylor revisitée : dynamique d'imbibition et transition d'entrainement de liquides 85
3.1 Introduction 86
3.2 Drainage 87
3.2.1 Protocole expérimental 87
3.2.2 Dynamique d'invasion 87
3.2.3 Influence du nombre capillaire 89
3.3 Imbibition 89
3.3.1 Dynamique d'invasion 89
3.3.2 Caractérisation des hétérogénéités d'épaisseurs 91
3.3.3 Distribution des épaisseurs d'eau dans l'écoulement 94
3.3.4 Hauteur moyenne 97
3.3.5 Analyse morphologique des doigts 98
3.3.6 Diagramme de stabilité du ménisque 99
3.4 Description théorique de la déstabilisation des ménisques 102
3.4.1 Forme des ménisques stationnaires 102
3.4.2 Méthode de résolution 104
3.4.3 Formes des interfaces et transition capillaire 106
3.4.4 Diagramme de stabilité du ménisque 107
3.5 Conclusion 111

4 Vers une description unifiée des transitions d'entrainement de liquides 113
4.1 Introduction 114
4.2 Influence du rapport de viscosité. 117
4.2.1 Étude numérique 117
4.2.2 Diagramme de stabilité des ménisques 120
4.2.3 Écoulement dans un coin d'angle constant 121
4.2.4 Retour aux expériences 122
4.3 Influence des interactions microscopiques liquides substrat : angle de contact et longueur de glissement 127
4.3.1 Influence de la longueur de glissement 127
4.3.2 Influence de l'angle de contact à l'équilibre 128
4.4 Conclusion 131

5 Dynamique d'imbibition dans des poreux modèles 133
5.1 Introduction 134
5.2 Transition d'entrainement en géométrie poreux 135
5.2.1 Choix du motif poreux et protocole expérimental 135
5.2.2 Motif d'imbibition dans un poreux modèle. 137
5.2.3 Caractérisation des hétérogénéités d'épaisseur d'eau 137

5.2.4 Distribution des hauteurs d'eau 141
5.3 Dynamique d'invasion 143
5.3.1 Régime de drainage 143
5.3.2 Régime d'imbibition 145
5.3.3 Influence de la géométrie sur la transition d'entrainement . 149
5.3.4 Transition d'entrainement en milieu hétérogène : vers un critère quantitatif. 149

Bibliographie **155**

CHAPITRE 1

Introduction

1.1 Contexte pétrolier

Depuis le début de son utilisation industrielle dans les années 1850, le pétrole est devenu aujourd'hui un des piliers de notre économie moderne. Principale source d'énergie dans le monde ($> 32\,\%$ de la consommation mondiale d'énergie), il est également à l'origine de très nombreux produits dérivés tels que les matières plastiques, les textiles, les intermédiaires de synthèse pour la chimie et la pharmacie, etc. Cette grande diversité d'utilisation contribue à la croissance incessante de la consommation mondiale de pétrole. Elle a ainsi augmenté de plus de 44 % entre 1985 et 2011. Si la production mondiale a pu suivre jusqu'à présent cette demande grandissante, on observe depuis quelques années un épuisement des zones de production traditionnelles avec une diminution d'environ 5 % par an de leur capacité de production. Pour compenser ce déclin, deux solutions sont utilisées par l'industrie pétrolière : la découverte et l'exploitation de nouveaux champs moins accessibles, et l'amélioration des taux de récupération dans les puits existants. Cette dernière solution est particulièrement intéressante puisque l'on estime aujourd'hui qu'augmenter la récupération des réservoirs d'un seul pourcent permettrait de récupérer l'équivalent de quatre années de la production mondiale actuelle.

L'exploitation d'un réservoir se fait en trois étapes. La première, appelée "récupération primaire", consiste à utiliser l'éruption naturelle des puits après forage. Une fois que la pression interne du puits devient insuffisante pour produire, la seconde étape consiste à contrebalancer le déclin des productions par le maintien de la pression du réservoir, et donc à pousser le pétrole vers les puits producteurs à l'aide de l'injection d'eau ou de gaz hydrocarbonés non miscibles. Ce procédé est appelé "récupération secondaire". Ces deux étapes, utilisées depuis la fin du XIXe siècle, ne permettent de récupérer en moyenne que 32 % du pétrole en place, ce chiffre chutant même sous les 10 % pour les pétroles de viscosité supérieure à 100 cP. Pour augmenter ce taux, des méthodes de récupération dites "tertiaires" ont été développées afin, d'une part, d'améliorer le drainage en optimisant le balayage macroscopique du pétrole et, d'autre part, de mettre en œuvre, à l'échelle microscopique cette fois, des processus physico-chimiques aptes à déloger l'huile résiduelle prisonnière du réservoir. Pour les pétroles les moins visqueux, on atteint alors des récupérations allant jusqu'à 70 %. Ces récupérations restent cependant inférieures à 30 % dès que la viscosité augmente.

Dans cette thèse, on s'intéressera à ces huiles dites lourdes dont la viscosité est comprise entre 100 cP et 10000 cP et pour lesquelles les méthodes de récupération tertiaire actuelles ne sont pas optimales. L'une de ces méthodes consiste à inclure des additifs (polymère, tensio-actif, alcali) dans l'eau avant de l'injecter dans le réservoir, et ce afin de modifier les interactions physico-chimiques avec le pétrole et ainsi d'augmenter la récupération. Le type de milieu dans lequel est piégé

l'huile joue alors un rôle très important, tant au niveau de la géométrie que de la physico-chimie.

En pratique, le pétrole est contenu dans des milieux poreux possédant des caractéristiques spécifiques à chacun. On comprend alors toute la difficulté de développer des méthodes fonctionnant pour l'ensemble de ces milieux. Dans cette optique, il apparaît alors primordial de comprendre les mécanismes et phénomènes intervenant lors de l'invasion d'un fluide dans un poreux rempli d'un second fluide. Ces questions ont ainsi fortement stimulé et financé, non seulement la recherche industrielle, mais aussi la recherche académique durant ces 30 dernières années. La question parait simple mais résiste toujours à une description claire et universelle. La raison principale provient du caractère multi-échelle du poreux et des écoulements non-linéaires dus au confinement géométrique. Le déplacement de l'interface macroscopique entre les fluides dépend ainsi des écoulements à toutes les échelles, jusqu'à celle du nm où la physico-chimie des interfaces et des mélanges prend le relais. Ce couplage entre écoulements confinés et géométrie multi-échelle rend le problème intrinsèquement complexe. C'est dans ce contexte que va se situer cette thèse.

1.2 Milieu poreux : caractérisation et écoulement de fluides

Description d'un matériau poreux

Un matériau poreux est un milieu contenant des interstices définies par une matrice qui est en général solide et fixe (figure 1.1). Les interstices désignent à la fois les pores, zones de connexion entre plus de deux éléments de la matrice, et les liens reliant ces pores entre eux. Cette distinction permet de définir le rapport d'aspect du poreux, correspondant au rapport de la taille des pores sur la taille des liens. On verra par la suite que ce paramètre a une grande influence sur les dynamiques d'écoulement à l'intérieur du poreux.

Un très grand nombre de matériaux sont ainsi considérés comme des poreux. On retrouve aussi bien des matières naturelles (sable, certaines roches, capillaires sanguins,...) qu'artificielles (béton, gel, mousse,...). On comprend ainsi au travers de ces nombreux exemples tout l'intérêt que peut apporter la compréhension des phénomènes d'écoulement à l'intérieur de ce type de milieu.

Écoulement monophasique dans un poreux : loi de Darcy

Pour simplifier, on s'intéresse dans un premier temps à ce qu'il se passe dans le cas de l'écoulement d'un fluide Newtonien dans un poreux.

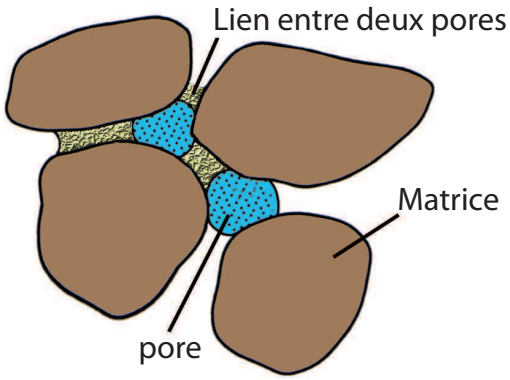


FIGURE 1.1 – Schéma d'un poreux à l'échelle des pores.

Lors d'une expérience pionnière sur les écoulements en milieux poreux réalisée en 1856 [24], Henry Darcy a mis en évidence une loi reliant le débit Q d'écoulement d'un fluide dans un matériau poreux à la différence de pression appliquée entre les entrées :

$$Q = \frac{KA}{\mu}\frac{\Delta P}{L}; \tag{1.1}$$

où μ est la viscosité du fluide, A et L sont respectivement l'aire spécifique et la longueur du milieu poreux et K sa perméabilité. Ce dernier paramètre, également appelé perméabilité absolue, décrit la capacité du matériau à être traversé par un fluide, sans altération de sa structure. Il est une caractéristique intrinsèque du matériau, dépendant uniquement de sa géométrie. Cette équation macroscopique (1.1) est communément appelée loi de Darcy. Elle s'applique à un milieu poreux homogène et isotrope, entièrement rempli d'un fluide newtonien, et pour des écoulements à faibles nombres de Reynolds de telle sorte que le fluide satisfasse à l'équation de Stockes. Cette loi est définie de façon macroscopique. On peut cependant l'appliquer de façon plus locale à des échelles où le milieu reste homogène et tant que les conditions précédentes restent valides. Il est également possible de l'appliquer jusqu'à l'échelle du pore, cependant la perméabilité K est non homogène et dépend alors de l'endroit où on l'applique. Cette façon de procéder est assez simple conceptuellement puisque le problème reste linéaire, mais sa résolution dans des géométries complexes et multi-échelles n'en reste pas pour le moins complexe.

1.3 Écoulement diphasique en milieu poreux

Paramètres de contrôle

La vitesse typique d'écoulement de l'eau dans les gisements de pétrole est de quelques mètres par jours ($V \sim 10\,\mu$m/s). Le nombre de Reynolds $Re = \rho U L/\eta$ (où ρ, η, U sont respectivement la densité, la viscosité et la vitesse du fluide, et L une distance caractéristique du problème), est alors d'environ $Re \sim 10^{-2}$. Par la suite, on négligera ainsi toujours les effets inertiels.

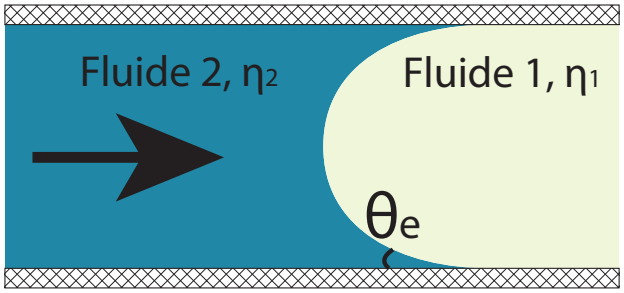


FIGURE 1.2 – Schéma montrant les conventions utilisées. On appellera par la suite le fluide 1, "fluide statique" et le 2, "fluide mobile". L'angle de contact à l'équilibre est défini dans le fluide mobile.

Pour les écoulements diphasiques, trois autres nombres sans dimension permettent alors de caractériser l'écoulement :

- **le nombre capillaire** qui compare la pression de Laplace aux contraintes visqueuses dues aux gradients de vitesses à des échelles comparables à la courbure de l'interface :
$$Ca_i = \frac{\eta_i U}{\gamma}, \tag{1.2}$$
où i correspond à l'un des deux fluides, avec η_i la viscosité de ce fluide i, γ la tension de surface entre les deux fluides et U la vitesse des fluides.
- **le rapport de viscosité**, également appelé rapport de mobilité :
$$M = \frac{\eta_1}{\eta_2}, \tag{1.3}$$
où η_1 correspond au fluide statique et η_2 au fluide mobile.
- **l'angle de contact à l'équilibre** du système fluide$_2$/solide/fluide$_1$:
$$\theta_e. \tag{1.4}$$

Ces trois nombres sans dimension, résultant uniquement de l'hydrodynamique, rendent le problème beaucoup plus complexe que dans le cas monophasique. De

plus, pour des écoulements très confinés, la situation peut être encore plus complexe si la taille des pores devient comparable à la longueur de glissement, ou à d'autres échelles fixées par la physico-chimie des interfaces. Par la suite, on considèrera que la taille des pores est très supérieure à ces échelles ($\gg$ 10nm), toutes les interactions moléculaires seront ainsi prises en compte par l'angle de contact à l'équilibre. On distinguera alors deux cas :

- **le drainage** : pour $\theta_e > 90°$, c'est à dire lorsque le fluide en place mouille préférentiellement le poreux.
- **l'imbibition** : pour $\theta_e < 90°$, c'est à dire lorsque le fluide mobile mouille préférentiellement le poreux.

Écoulement biphasique en cellule de Hele-Shaw : instabilité de Saffman-Taylor

Un phénomène auquel nous serons particulièrement confronté dans la suite de cette thèse est l'instabilité de digitation visqueuse, observée pour la première fois par P. G. Saffman and J. Taylor en 1958 [66]. Celle-ci apparait lorsqu'un fluide peu visqueux déplace un autre fluide beaucoup plus visqueux. Au lieu d'avancer sous la forme d'une interface plane, le front se déstabilise et prend la forme de multiples doigts (figure 1.3). La compétition entre la croissance de ces différents doigts conduit alors à une solution stationnaire où un doigt unique se propage à vitesse constante U et occupe une fraction λ de la largeur du canal. Plus précisément, les

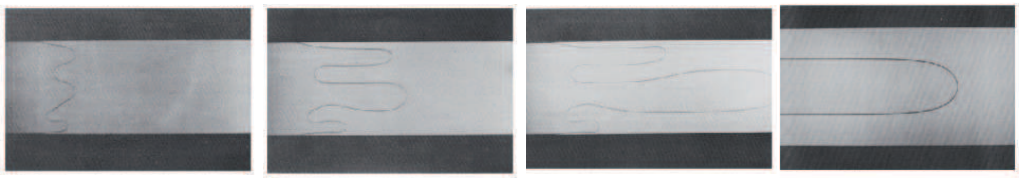


FIGURE 1.3 – Images de la déstabilisation d'un front entre deux liquides par l'instabilité de Saffman Taylor. Issues de [74].

premières études numériques ont montré [78] que cette dynamique de croissance, en cellule de Hele-Shaw, est pilotée par un unique nombre sans dimension $1/B = 12Ca/\epsilon^2$, où ϵ est le rapport d'aspect de la cellule. La description utilisée prend en compte le champ de vitesse moyenné sur l'épaisseur de la cellule. Cette vision 2D des écoulements conduit à une courbe unique de λ en fonction de $1/B$, celle-ci saturant à $\lambda \to 1/2$ pour $1/B \to \infty$ [56]. Les expériences de P. Tabeling et al [73, 74] ont cependant montré qu'il existait plusieurs familles de ces courbes et que seule la prise en compte du dépôt d'un film mince de liquide statique lors de la propagation du doigt permettait de retrouver les prédictions 2D. L'influence de

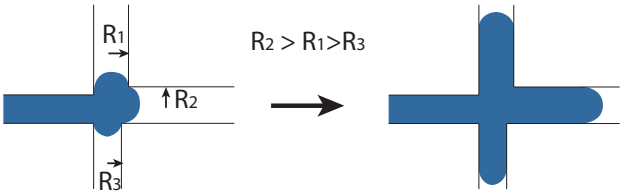
ce film mince, suggérée initialement par C. W. Park et GM. Homsy [59], montre l'importance des écoulements 3D en milieu confiné. Cette observation s'avèrera être au centre de cette thèse.

Au delà de la description de cette instabilité, ce dispositif a été aussi largement utilisé pour étudier la dynamique de croissance Laplacienne, par exemple dans des géométries à ϵ variable (figure 1.4).

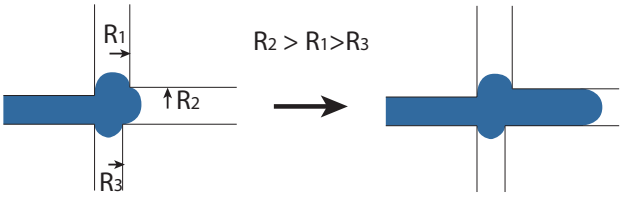
FIGURE 1.4 – Image de la croissance Laplacienne d'un doigt visqueux dans une géométrie en cône. La variation de ϵ entraine un dédoublement de chacun des doigts, phénomène d'instabilité connu sous le nom de *tip-splitting*. Issue de [38].

1.3.1 Cas du drainage : $\theta_e > 90°$

Historiquement, le régime de drainage est celui qui a intéressé en premier l'industrie pétrolière. Le pétrole des puits d'huiles conventionnelles, qui ont été les premiers exploités, mouille en effet plus le poreux que ne le fait l'eau. Cet intérêt, couplé à la grande richesse des phénomènes en jeu, a donné lieu à de nombreuses recherches dès les années 1930. Jusqu'en 1980, ces études privilégiaient une approche macroscopique du problème du fait de l'utilisation de carottes (échantillons synthétiques ou naturels de milieu poreux), qui ne permettaient pas la visualisation directe des phénomènes ayant lieu à l'échelle des pores. Les années 1980 ont vu l'apparition des premiers systèmes micro-fluidiques permettant l'observation des écoulements à petites échelles. De nombreuses études se sont alors portées sur la description et la compréhension des motifs d'invasion lors de l'injection d'une phase dans un poreux rempli par une seconde phase non-miscible. Ces études se sont particulièrement attardées sur l'observation détaillée des comportements des interfaces entre les fluides à l'échelle du pore et les ont reliés au comportement du front macroscopique du fluide mobile dans le poreux.



(a) Invasion d'un canal par le fluide mobile à haut capillaire en régime de drainage. Le fluide pénètre tous les canaux adjacents, peu importe la géométrie.



(b) Invasion d'un canal par le fluide mobile à bas capillaire en régime de drainage. Le fluide mobile pénètre en premier le canal dont la taille est la plus grande, correspondant au saut de pression capillaire le plus bas.

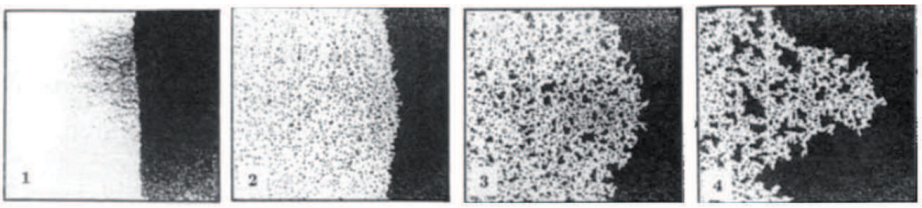
FIGURE 1.5 – Modes d'invasion à l'échelle d'un pore en régime de drainage.

A l'échelle du pore, ces études ont montré l'existence de deux modes d'avancée du ménisque. Le premier correspond au cas où le nombre capillaire est grand : les effets visqueux l'emportent à l'échelle du pore sur les effets de surface. Lorsque le fluide mouillant arrive à une intersection, il pénètre tous les canaux adjacents (figure 1.5(a)) et la géométrie du poreux n'a aucune influence. Le second mode d'invasion correspond aux bas nombres capillaires. Dans ce régime, pour pénétrer dans un canal rempli de fluide mouillant, la pression du fluide non-mouillant doit franchir une barrière de pression correspondant à la pression capillaire P_c et dépendant de la taille du canal à envahir :

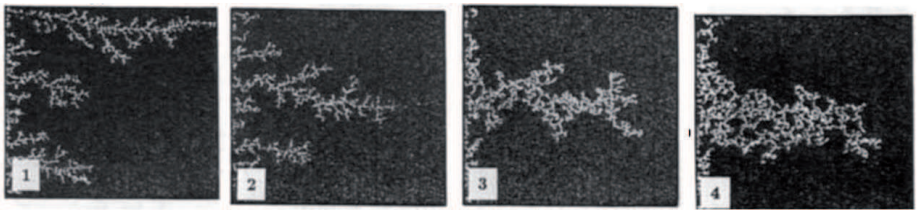
$$P_c \sim \frac{2\gamma}{R} \tag{1.5}$$

où R est le rayon du canal. Ainsi, lorsque le fluide mobile arrive à un embranchement entre plus de trois canaux (ie un pore), il emprunte toujours en premier celui dont la taille est la plus grande (figure 1.5(b)). Si sa pression n'est pas suffisante pour pénétrer dans un des canaux, il est alors bloqué.

Ces modes de propagation microscopique conduisent à des fronts d'invasion macroscopiques totalement différents. La figure 1.6 montre des images d'expériences pour différentes valeurs de M et Ca, le fluide mobile étant injecté depuis la gauche. Trois formes de front ont été observées :



(a) Passage d'une invasion type front visqueux vers une invasion type digitation capillaire. Le rapport de viscosité est $M = 10^{-2}$ et le nombre capillaire varie de $Ca = 10^{-1}$ à $10^{-5.2}$.



(b) Passage d'une invasion type digitation visqueuse vers une invasion type digitation capillaire. Le rapport de viscosité est $M = 10^{4.7}$ et le nombre capillaire varie de $Ca = 10^{-6.3}$ à $10^{-9.1}$.

FIGURE 1.6 – Images présentant les formes de fronts observées dans le régime de drainage, tirées de [47].

- un front plat (image 1.6(a), à gauche) : la frontière entre les deux fluides est plate et il n'y a pratiquement pas de fluide statique piégé. Ce mode à lieu pour des nombres capillaires élevés et un rapport de viscosité faible. Il correspond au premier mode de déplacement microscopique.
- un front sous la forme de doigts visqueux (image 1.6(b), à gauche) : le fluide mobile envahit le poreux en créant des doigts à l'intérieur du fluide en place. Ces doigts sont tous orientés vers la sortie du poreux. Ce mode a lieu pour des nombres capillaires élevés, on est donc toujours dans le premier mode de déplacement microscopique. Le rapport de viscosité est en revanche élevé, ce qui rend le front instable pour les mêmes raison que dans le cas de l'instabilité de Saffman-Taylor [66].
- un front sous la forme de doigts capillaires (image 1.6(a) et 1.6(b), à droite) : le fluide mobile envahit le poreux sous la forme de doigts avançant de façon désordonnée dans le poreux et formant parfois des boucles. De grandes quantités de fluide statique se retrouvent piégées lors de l'invasion. Ce mode a lieu pour des nombres capillaires faibles et pour tous les M. Il correspond au second mode de déplacement microscopique.

R. Lenormand a ainsi établi un diagramme de phase situant ces différentes formes de front d'invasion dans le plan (Ca,M) [44] (figure 1.7). Pour des nombres capillaires élevés, on retrouve les deux formes de fronts : plat (1) pour des M

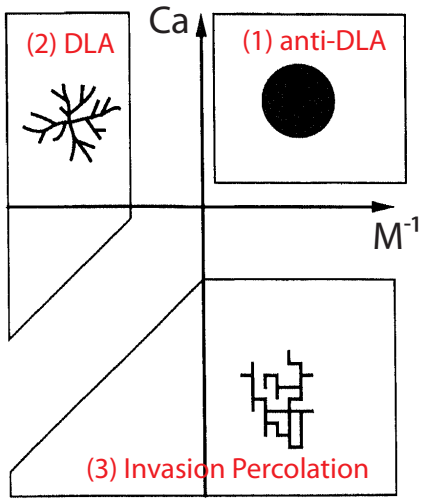


FIGURE 1.7 – Diagramme de phase établie par R. Lenormand pour le régime de drainage [44]. On identifie trois domaines dans le plan (M,Ca) correspondant aux différentes formes de front obtenues à l'échelle du réseau. Ces formes de front sont également associées à des modèles statistiques permettant de les représenter. À grand nombre capillaire, les forces visqueuses dominent les forces capillaires et gouvernent l'écoulement : alors qu'à bas M, le front est instable et représenté par un modèle de Diffusion-Limited Aggregation (DLA) ; il est stable pour les grands M, et représenté alors par un modèle anti-DLA. Lorsque l'on diminue le nombre capillaire, les forces visqueuses deviennent négligeables et on identifie un régime de digitations capillaires correspondant bien au modèle d'Invasion-Percolation. Le rapport de viscosité est ici l'inverse de celui défini en 1.3.

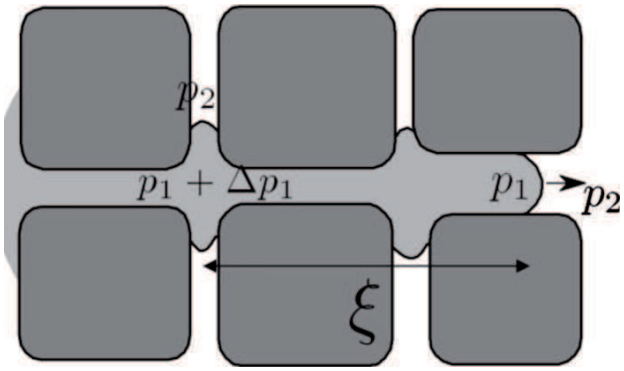


FIGURE 1.8 – Schéma issu de [20]. Lorsqu'un doigt de fluide mobile (gris) avance dans le poreux, il envahit en priorité les canaux de grandes tailles. Cependant, au cours l'avancée du fluide, la pression en amont augmente à cause des effets visqueux jusqu'à dépasser, à partir d'une certaine distance, la pression capillaire des canaux de petites tailles qui sont alors envahis.

faibles et doigts visqueux (2) pour les M élevés. Par ailleurs, des études [60, 33, 57] ont montré que ces types d'invasions étaient très bien décrits à l'aide de modèles statistiques de types *Diffusion-Limited Aggregation* (DLA) pour (2) et anti-DLA pour (1). Pour des nombres capillaires faibles, on retrouve la forme de front de type doigts capillaires (3). Ce type d'invasion est très bien décrit à l'aide d'un modèle de type *Invasion Percolation* [47, 87].

Ces trois régimes décrivent les comportements asymptotiques lors de l'invasion, c'est à dire lorsque l'on peut négliger les effets visqueux par rapport aux capillaires ou inversement. Les cas où il n'est plus possible de négliger un des deux effets ont également été largement étudiés. Dans ces cas, il a été montré qu'un modèle de type *gradient percolation* [65] permettait de bien décrire les observations expérimentales [86, 9, 32]. Récemment, C. Cottin et al ont revisité le cas (2) vers (3) à l'aide d'outils micro-fluidiques modernes [20]. Ils ont ainsi pu décrire très quantitativement la compétition existant entre les forces capillaires, qui tendent à éviter certaines zones du poreux, et les forces visqueuses, qui augmentent la pression globale en amont de l'invasion et tendent à tout remplir (figure 1.8).

Ce régime de drainage en milieu poreux est ainsi très bien compris. Non seulement les différentes invasions pour les cas asymptotiques (1.7) sont comprises et fidèlement reproduites par des modèles statistiques, mais les passages de l'une à l'autre sont aussi très bien étudiés. Pour terminer, on peut citer la revue de K. J. Måløy et al [67] qui se sont intéressés au cas du drainage d'un milieu granulaire. En particulier leurs expériences consistaient à injecter de l'air dans une solution

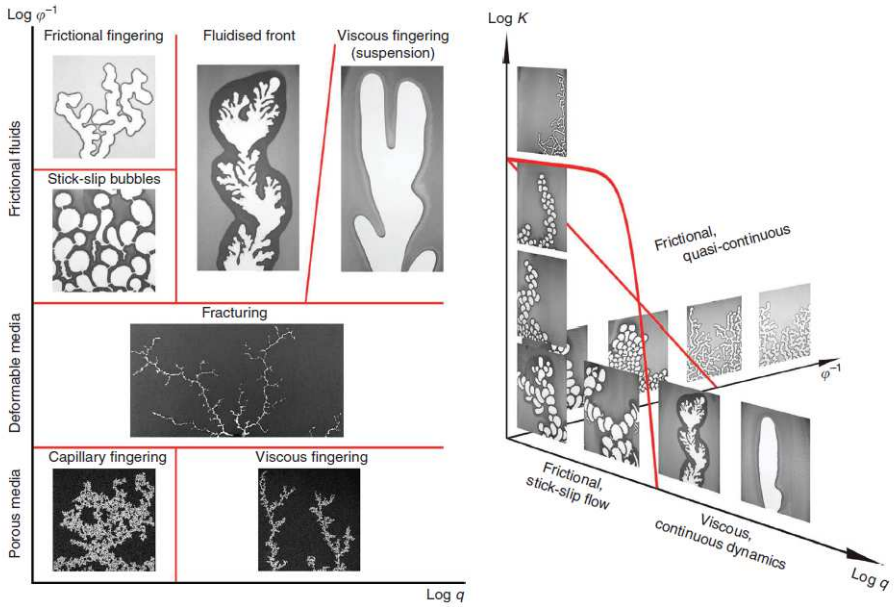


FIGURE 1.9 – Diagramme de phase des motifs d'invasion obtenus lors de l'injection d'air à un débit q dans une solution d'eau/glycérol contenant une fraction ϕ de billes de verre, tiré de [67].

d'eau/glycérol contenant des billes de verre, ces billes faisant office de "poreux mobile". Ils reportent alors toute une nouvelle zoologie de motifs d'invasions (figure 1.9) liée à la décompaction du milieu et aux modes de dissipation liés à la friction solide entre les grains. Dans la suite, nous ignorerons ces complexités additionnelles et supposerons implicitement que les parois solides confinant les fluides sont fixes.

1.3.2 Cas de l'imbibition : $\theta_e < 90°$.

De même que pour le drainage, de nombreuses études se sont intéressées à la description de l'avancée du ménisque à l'échelle du pore pour le régime de l'imbibition [48, 46, 84, 81, 72]. Dans ce cas, la différence principale avec le drainage est que la pression capillaire est maintenant un moteur de l'écoulement. Lorsque le fluide mouillant arrive à l'entrée d'un canal, il envahit spontanément celui-ci sous l'effet de la pression capillaire (figure 1.10). Celle-ci étant proportionnelle à l'inverse du rayon, le fluide envahira toujours le canal le plus fin en premier. Ce mode d'avancée dû à la pression capillaire permet à présent de distinguer deux cas :

– la différence de pression entre les fluides due à un forçage extérieur est

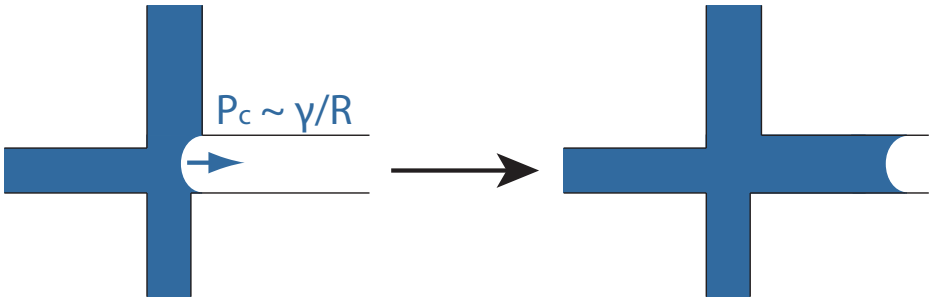
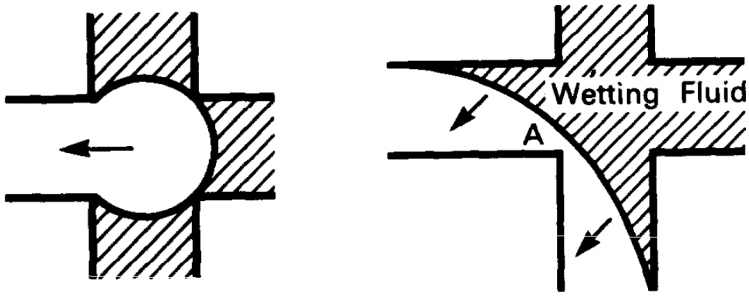


FIGURE 1.10 – Schéma illustrant l'invasion spontanée d'un canal dû à la pression capillaire dans le régime de l'imbibition.



(a) Cas où trois canaux adjacents sont remplis de fluide mouillant

(b) Cas où deux canaux adjacents sont remplis de fluide mouillant

FIGURE 1.11 – Modes de déplacement du fluide mouillant à l'entrée d'un pore pour le cas du régime d'imbibition lorsque le forçage extérieur est inférieur à la pression capillaire [48].

largement supérieure à la pression capillaire des canaux (Ca élevée). Dans ce cas, le fluide mouillant envahit tous les canaux simultanément et la géométrie du poreux n'importe pas.

– la différence de pression est inférieure ou du même ordre que les pressions capillaires (Ca faible), l'avancée du fluide mobile se fait alors en suivant les canaux les plus petits. Ce mode de propagation a été particulièrement étudié : plusieurs scénarios à l'entrée d'un pore ont notamment été observés (figure 1.11).

Ces deux cas de figures vont, de la même façon que pour le drainage, entraîner des fronts d'invasions macroscopiques totalement différents. On montre en figure 1.12 des expériences d'imbibition d'huile dans de l'air ($M \ll 1$ et $\theta_e \sim 0$) réalisées pour différents nombres capillaires. Pour des Ca élevés (à gauche), le front d'in-

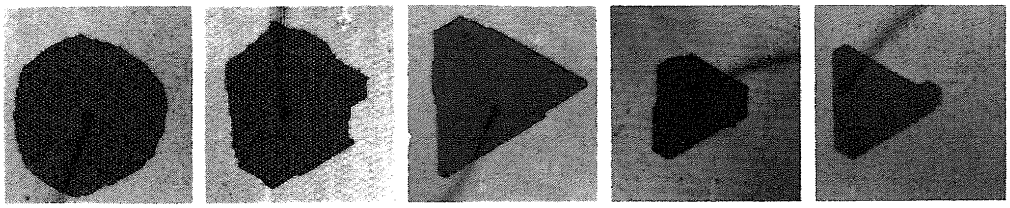
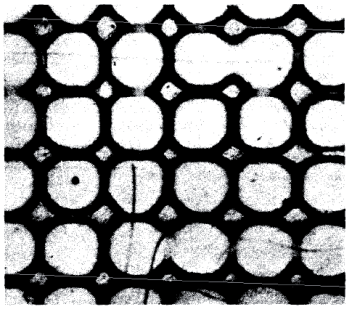
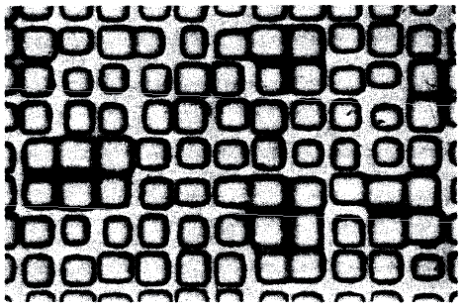


FIGURE 1.12 – Expériences d'imbibitions d'huile dans de l'air ($M \ll 1$ et $\theta_e \sim 0$) dans un réseau poreux triangulaire présentant une faible dispersion de tailles de pores. Le nombre capillaire passe de $Ca = 10^{-3}$ (gauche) à $Ca = 10^{-6}$ (droite). Issus de [44].



(a) Géométrie où les pores sont grands devant la taille des canaux. L'huile n'envahit pas les pores.

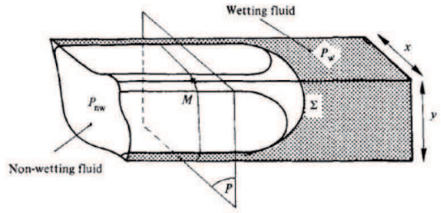


(b) Géométrie où la taille des pores et des canaux sont similaires. Tous les obstacles sont entourés d'huile et des clusters d'huile se forment dans le poreux.

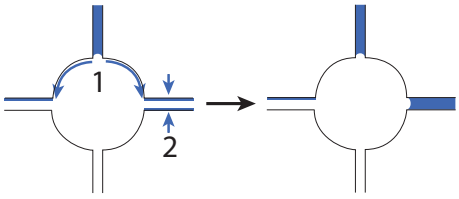
FIGURE 1.13 – Expériences d'imbibition d'huile dans de l'air ($M \ll 1$ et $\theta_e \sim 0$) réalisées à bas capillaire $Ca \sim 10^{-9}$ [46].

vasion est isotrope et ne tient pas compte de la géométrie du réseau. Le forçage est supérieur aux pressions capillaires. Pour des Ca plus faible (à droite), le front d'invasion suit parfaitement la géométrie du réseau et l'invasion du poreux se fait suivant les mécanismes de la figure 1.11. Le forçage est inférieur aux pressions capillaires.

Ces études ont également permis d'observer des motifs d'invasion totalement différents des deux précédents. La figure 1.13 montre deux exemples d'expériences d'imbibition d'huile dans de l'air ($M \ll 1$ et $\theta_e \sim 0$) réalisées à très bas capillaire $Ca \sim 10^{-9}$. On peut y voir notamment que l'huile envahit principalement les zones en contact avec le solide. Pour expliquer ces nouveaux motifs d'invasion, ces études ont remarqué que lors de la circulation de deux fluides non-miscibles



(a) Circulation de deux fluides non miscibles dans un canal. Le non-mouillant circule au centre et le mouillant dans les coins. Issu de [48].



(b) Lorsque le fluide mouillant arrive en entré du pore, il s'écoule le long des parois (1) et vient créer des films dans les canaux adjacents. Ces films gonflent puis coalescent (2) remplissant alors le canal : mécanisme de *snap-off*.

FIGURE 1.14 – Modes de déplacement du fluide mouillant dans le poreux pour le cas d'un régime d'imbibition à bas capillaire.

dans un canal, le fluide mouillant préférait s'écouler dans les coins ou le long des parois, et le non-mouillant au centre du canal (figure 1.14(a)). Ces écoulements le long des parois permettent alors de comprendre pourquoi l'huile n'envahit pas le centre des pores pour l'expérience de la figure 1.13(a). Lorsque le fluide mouillant arrive en entrée du pore (figure 1.14(b)), il se propage le long des parois et entre alors dans les canaux adjacents (flèche 1). Ces films le long des parois d'un canal gonflent ensuite, et lorsque deux d'entre eux se touchent (flèche 2), ils coalescent et remplissent alors entièrement le canal. Ce mécanisme de coalescence de films est appelé *snap-off* [81] et c'est également lui qui est à l'origine des clusters d'huiles de l'expérience de la figure 1.13(b). Enfin, on comprend qu'une géométrie où les tailles des pores sont bien plus larges que les tailles des canaux va favoriser ce type de mécanisme.

En se basant sur ces observations, R. Lenormand a proposé deux diagrammes de phase pour le régime de l'imbibition (figure1.15) en distinguant les grands rapports d'aspects des petits. Pour les grands nombres capillaires (phase (1) et (2)), on retrouve des fronts d'invasion macroscopiques ne dépendant pas de la géométrie du poreux, le moteur de l'écoulement étant dû au forçage extérieur. La séparation entre les phases (1) et (2) est due à une instabilité de digitation visqueuse de la même façon que dans le cas du drainage. Les phases (3) correspondent au cas où les fronts suivent les géométries des poreux, le moteur de l'avancée étant la pression capillaire. Les phases (4) correspondent à des écoulements le long des parois avec de temps en temps des mécanismes de *snap-off* entraînant la création de clusters de fluide mouillant. Tout comme dans le cas du drainage, ces différentes phases ont également pu être reproduites à l'aide de modèles statistiques [46].

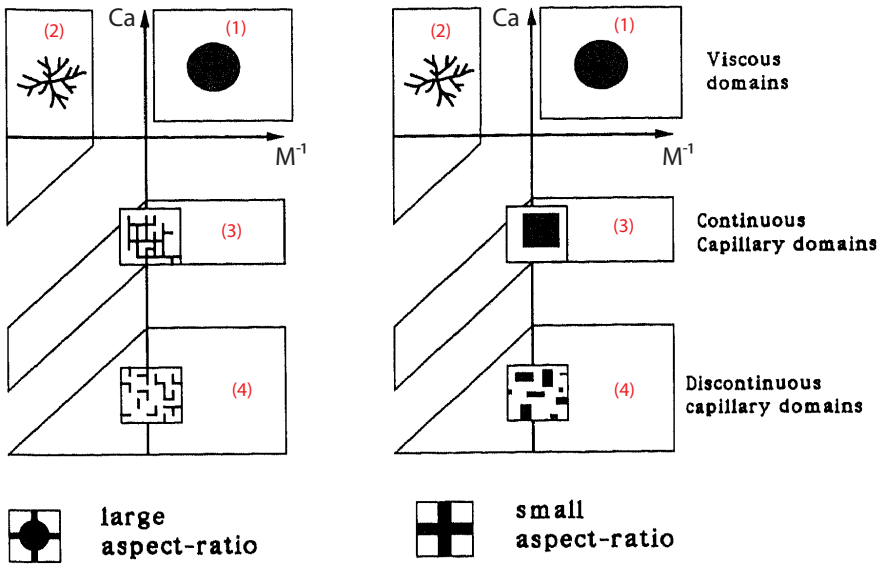


FIGURE 1.15 – Diagramme de phase établi par R.Lenormand pour le régime d'imbibition [44]. Les phases à haut Ca sont identiques à celles obtenues pour le régime de drainage. A bas capillaire, on observe maintenant deux phases distinctes correspondant à des modes différents d'invasion à l'échelle du pore. De plus, le rapport d'aspect a un impact important sur la morphologie macroscopique de l'invasion.

Si les différentes observations expérimentales permettent de valider l'existence des phases du diagramme 1.15 pour des $M \ll 1$, il est important de noter plusieurs choses :

- toutes les expériences ont été faites dans le régime $M \ll 1$, il n'y a donc rien qui prouve que ce diagramme est valide pour des $M \gg 1$. En particulier, rien ne dit que les phases (2), (3) et (4) existent bien dans cette région.
- De même, ces expériences sont pratiquement toutes réalisées avec l'injection d'huile dans de l'air, l'angle de contact étant alors très proche de $\theta_e \sim 0°$. Cet angle de 0° est assez particulier car il donne lieu à un phénomène de films de mouillage le long des parois. On peut ainsi se demander si le diagramme serait modifié dans le cas d'un angle fini.
- Enfin, si le phénomène d'écoulement dans les coins ou le long des parois permet d'expliquer les motifs discontinus de la phase (4), aucune preuve expérimentale n'a, jusqu'à maintenant, étayée cette hypothèse. De plus, l'occurrence de ce phénomène uniquement pour des Ca faibles et dans le cas d'un angle de contact proche de 0° n'a jamais été étudiée.

L'objectif d'une partie de cette thèse sera ainsi de répondre à ces différentes questions.

QUESTIONS

- Le diagramme de R. Lenormand pour l'imbibition est-il toujours valide dans le cas $M \gg 1$?
- Quel va être l'effet d'un angle de contact fini sur ce diagramme ?
- Peut-on apporter une preuve expérimentale directe de l'existence des écoulements dans les coins et le long des parois ? Quelles sont leurs origines ? Peut-on expliquer leur disparition à grand nombre capillaire ?

1.4 Déplacement d'un ménisque sur un solide

Pour comprendre comment se déplace le front macroscopique à l'échelle du poreux, l'idée utilisée jusqu'à présent consistait à observer le déplacement à l'échelle du pore afin d'établir des règles d'envahissement de canaux. On généralisait alors ces règles à l'avancée du fluide à grande échelle. Comprendre le déplacement biphasique à l'échelle du pore revient en pratique à étudier l'envahissement dans un canal sans obstacle.

Si l'écoulement d'un fluide seul dans un canal est connu et très bien décrit à l'aide uniquement de l'hydrodynamique classique à grande échelle, l'introduction d'une seconde phase rend le problème extrêmement complexe et mal connu encore aujourd'hui. La présence d'une interface entre les deux fluides et plus particulièrement le déplacement de cette interface proche de la paroi ne permet plus de décrire le problème uniquement à l'aide de lois macroscopiques, les échelles microscopiques doivent être également prises en compte. En effet, il est connu depuis une quarantaine d'années [37] que la description du déplacement de l'interface entre deux fluides sur une surface, à l'aide de l'hydrodynamique classique à grande échelle, entraîne une divergence de l'énergie dissipée dans le coin. Pour résoudre ce paradoxe, de nombreux modèles introduisent alors des paramètres microscopiques tels que la longueur de glissement, ou l'existence de films moléculaires. Le problème devient alors multi-échelle et très complexe du fait de la présence et du lien entre les descriptions macroscopiques et microscopiques.

Ce problème est notamment primordial dans le cadre des transitions de mouillage dynamique. En effet, il a été observé que, lorsqu'un ménisque se déplace sur un solide, il existe une vitesse limite au delà de laquelle l'interface entre les liquides devient instable. Plus précisément, deux cas ont été observés et distingués, le premier lorsque la ligne de contact recule, le second lorsqu'elle avance.

1.4.1 Ligne au recul : transition de mouillage

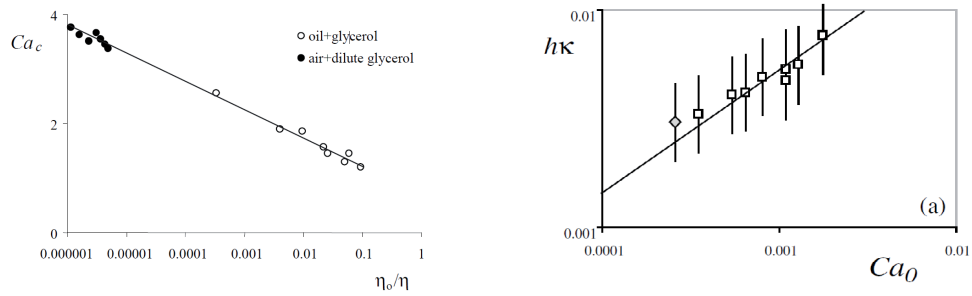
La transition de mouillage (ie lors du recul d'une ligne de contact) a été pour la première fois observée et décrite expérimentalement par F. Gaucher et H. Ward en 1922 sur des fibres [34] puis par F. Morey en 1940 [58]. Ils ont observé que lorsqu'un solide est tiré hors d'un bain de liquide, il existait une vitesse seuil à partir de laquelle un film mince du liquide recouvre le solide. Cette transition a été décrite théoriquement en premier par L. Landeau et B. Levich [51] à l'aide de lois macroscopiques. Lorsqu'un coin de liquide recul, l'angle dynamique que forme ce coin avec le solide diminue. Si la vitesse dépasse celle pour laquelle cet angle tombe à zéro, un film mince de liquide est entraîné. Cette transition était cependant mal décrite, en effet des expériences récentes [61, 63, 25] ont montré que l'angle dynamique n'est pas tout à fait nul au moment de la transition. Seule une théorie hydrodynamique multi-échelles récente de J. Eggers [30] et Snoeijer et al [69] a permit de décrire quantitativement cette transition.

1.4.2 Ligne à l'avancée : transition de démouillage

Si les premières expériences sur le démouillage d'un liquide sur un solide datent des années 1970 [18], la transition de démouillage reste à l'heure actuelle très peu comprise [17].

Entrainement d'air entre deux fluides

Les premières expériences quantitatives sur l'entraînement d'un fluide sont dues à E. Lorenceau et al [53, 52]. Ils se sont intéressés au problème de l'impact d'un liquide sur un réservoir du même liquide, problème semblable à celui qui nous intéresse mais mieux compris, et ont ainsi pu confirmer le modèle théorique de J. Eggers [29]. Ils ont, en particulier, vérifié la dépendance logarithmique, en rapport de viscosité, du nombre capillaire critique Ca_c auquel a lieu la transition : $Ca_c \propto \log M$ (figure 1.16(a)). Il ont également montré l'existence d'une loi de puissance entre Ca et l'épaisseur de film entraîné : $h \propto Ca^{2/3}$ (figure 1.16(b)).



(a) Courbe représentant le nombre capillaire critique $Ca_c = \eta V c/\gamma$ auquel a lieu l'entraînement en fonction du rapport de viscosité (échelle semi-logarithmique). Issue de [53].

(b) Courbe montrant la dépendance en loi de puissance entre l'épaisseur de film entraîné h et le nombre capillaire. Issus de [52].

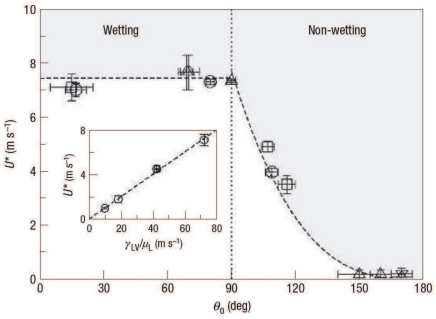
FIGURE 1.16 – Mesures réalisées par E. Lorenceau et al pour une expérience d'impact d'un liquide sur un bain du même liquide. Le fluide extérieur est soit de l'air soit un autre liquide de viscosité plus faible que celle du bain.

Entrainement sur un substrat solide

Pour revenir au problème de l'entraînement sur un substrat solide, Duez et al [28] ont étudié, en 2007, l'impact d'une sphère solide sur un liquide (figure 1.17(a)). Contrairement aux idées reçues jusque là [82, 83], ils ont pu montrer l'impact fort de l'angle de contact à l'équilibre et de la viscosité du liquide sur la transition d'entraînement d'air (figure 1.17(b)). En se basant sur l'idée que cette transition pouvait être vue comme une transition de mouillage pour l'air, ils ont établi un modèle leur permettant de retrouver quantitativement la dépendance du seuil d'entraînement avec l'angle de contact à l'équilibre et la viscosité du liquide : $U^* \propto \gamma/\eta\,(\pi - \theta_0)^3$ pour $\theta_0 > \pi/2$ et $U^* \propto \gamma/\eta$ pour $\theta_0 < \pi/2$.

Plus récemment, des travaux ont montré que, contrairement à ce que prévoient les théories, l'air a une grande influence sur le seuil d'entraînement [14, 13]. A.

(a) Image de l'impact d'une sphère sur une surface de liquide. A gauche, le liquide mouille la sphère ($\theta_0 \sim 15°$) et il n'y a pas d'entraînement d'air. A droite, le liquide est non-mouillant ($\theta_0 \sim 100°$) et il y a entraînement d'air.



(b) Courbe représentant la vitesse critique d'entraînement U^* en fonction de l'angle de contact à l'équilibre θ_0. Inset : dépendance de U^* avec le rapport γ/η du liquide. Dans les deux cas, la dépendance est parfaitement retrouvée par le modèle théorique.

FIGURE 1.17 – Figure issue de [28] étudiant les effets du mouillage et de la viscosité du liquide sur l'entraînement d'un film d'air lors de l'impact d'une sphère sur un liquide.

Marchand et al [55] ont ainsi réalisé une expérience modèle d'une plaque que l'on plonge dans un bain de liquide afin d'étudier l'influence de l'air. Ils observent alors, en contradiction avec les résultats précédents, une dépendance bien plus faible de U^* avec la viscosité du liquide. Ils expliquent cela par l'effet du confinement de l'air dans le coin et montrent alors une dépendance bien plus forte du capillaire d'entraînement avec le rapport de viscosité (figure 1.18) que ce qui était attendu par les théories existantes [53, 22, 29].

Avant de continuer, on peut remarquer que toutes ces études se sont intéressées au cas de l'entraînement d'un fluide peu visqueux dans un fluide plus visqueux ($M \ll 1$). De plus, les systèmes expérimentaux sont toujours des systèmes ouverts, aucune étude quantitative n'a été menée dans un milieu confiné.

Entrainement en milieu confiné

Pour trouver des exemples d'avancée d'un fluide en milieu confiné, on peut par exemple s'intéresser aux expériences classiques de Saffman-Taylor en cellule de Hele-Shaw. Il est connu, depuis bientôt 30 ans [74], que lors de l'avancée du fluide mobile, un film mince de fluide statique est déposé le long des parois. Ainsi, en dépit du fait que l'on se situe dans un cas où $M \gg 1$, on peut penser que l'origine de ce film est dû à un phénomène de transition de démouillage similaire aux études précédentes. On peut noter également que ces expériences ont, en très

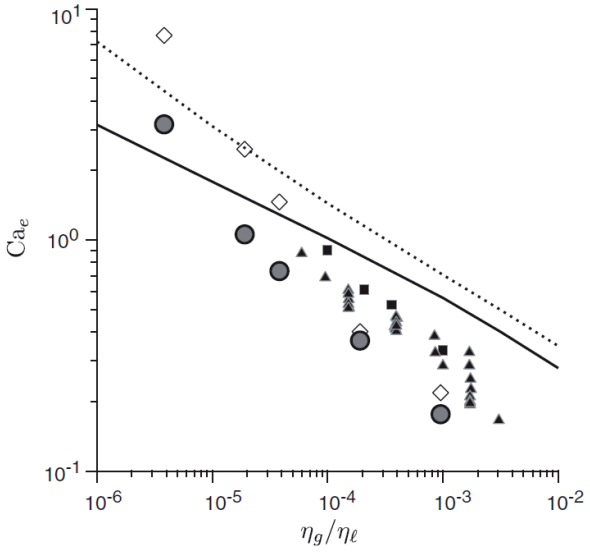


FIGURE 1.18 – Influence du rapport de viscosité sur le nombre capillaire critique $Ca_c = \eta_l U^*/\gamma$ où η_l est la viscosité du liquide. Issu de [55].

grande majorité, utilisé de l'air comme fluide mobile et donc un angle statique proche de $\theta_e \sim 180°$, ce qui laisserait supposer, selon les théories précédentes, un seuil à vitesse pratiquement nulle.

Très récemment, S. A. Setu et al [8] ont réalisé des expériences de digitation visqueuse en cellule de Hele-Shaw. Ils ont utilisé pour cela des solutions de colloïdes-polymères démixés leur donnant un rapport de viscosité de $M \sim 2$, un angle de contact à l'équilibre de $\theta_e \sim 0°$ et une tension interfaciale extrêmement faible $\gamma = 30\,\mathrm{nN.m^{-1}}$. Ils ont alors observé, à l'aide de microscopie confocale, une transition entre un état où le ménisque est stable et un état où le fluide mobile se détache de la paroi et est entraîné au centre du canal (figure 1.19). Ceci confirme que l'on a bien une transition de démouillage en milieu confiné. Leur étude ne s'est cependant pas focalisée sur l'apparition de cette transition, mais sur l'effet de celle-ci sur la digitation visqueuse. Ils ont ainsi montré que la transition d'entraînement avait une influence sur le seuil de déclenchement de l'instabilité de digitation visqueuse, mais ne modifiait pas qualitativement la forme de celle-ci.

R. Ledesma-Aguilar et al [41, 43, 40, 42] se sont également intéressés à cette transition et expliquent alors son apparition par la capacité de la ligne de contact à suivre le forçage extérieur de l'écoulement. Ils montrent notamment l'impact très important des paramètres de surface.

Pour conclure sur cette transition de démouillage, on a vu qu'il n'existe aucune étude sur ce qu'il se passe lorsque $M \gg 1$, notamment le cas où θ est faible, n'a

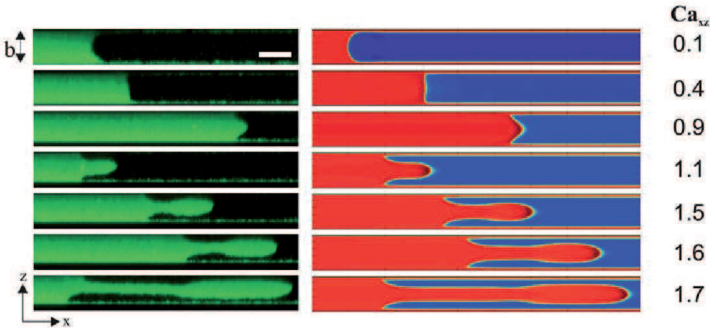


FIGURE 1.19 – *A gauche* : images réalisées en microscopie confocale montrant la transition d'entraînement en milieu confiné. *A droite* : simulation numérique reproduisant parfaitement cette transition. Issues de [8].

jamais été expérimenté. En milieu confiné, la présence de cette transition rend les écoulements, habituellement considérés comme bidimensionnels, intrinsèquement tridimensionnels. On peut alors se demander comment ces transitions 3D vont impacter nos dynamiques d'invasion à l'échelle du poreux.

QUESTIONS

- Est-il possible d'observer la transition d'entraînement en milieu confiné pour $M \gg 1$ et des angles de contact faibles ?
- Le seuil d'entraînement en milieu confiné suit-il toujours les lois observées dans la littérature ?
- Comment cette transition influe sur les dynamiques d'invasion en milieu poreux ?

1.5 Principaux résultats et structure du manuscrit

Nous présentons ici brièvement les principaux résultats obtenus dans les quatre chapitres suivants.

Instrumentation et imagerie

Dans le chapitre 2, nous présentons les outils micro-fluidiques et d'analyse d'images que nous avons mis en place afin de réaliser des expériences d'imbibition

quantitatives.

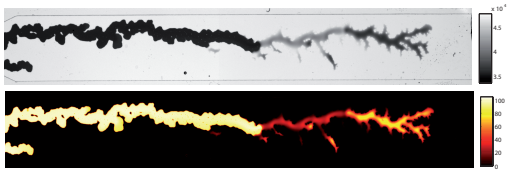
Dans un premier temps, nous expliquons la méthode de fabrication d'un dispositif micro-fluidique qui nous a permit de faire varier indépendamment tous les nombres sans dimension qui pilotent la dynamique d'imbibition, à savoir :

- les rapports d'aspect géométriques,
- le rapport de viscosité,
- le nombre capillaire,
- l'angle de contact à l'équilibre entre les fluides.

Afin de contrôler l'angle de contact, nous avons mis au point une méthode de traitement de surface qui sera expliquée à l'aide d'un article que nous avons publié dans la revue "Lab on a chip".

Dans un second temps, nous détaillons les techniques d'analyse d'images nous permettant d'accéder aux géométries 3D des patterns d'imbibition obtenus dans des dispositifs à géométries modèles.

(a) Image d'un poreux modèle dont seule la partie inférieure a subi un traitement de surface. Lors de l'injection d'eau dans de le dispositif rempli d'air, on observe deux motifs d'invasion complètement différents.



(b) *En haut* : image brute obtenue lors de l'imbibition en cellule de Hele-Shaw d'une huile silicone dans de l'eau. *En bas* : cartographie des épaisseurs locales d'eau dans le canal obtenues après application de la méthode d'analyse d'image.

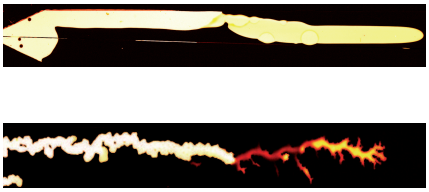
FIGURE 1.20 – Images illustrant les différents outils de fabrication et d'analyse d'images développés au chapitre 2.

Transition d'entraînement en milieu confiné

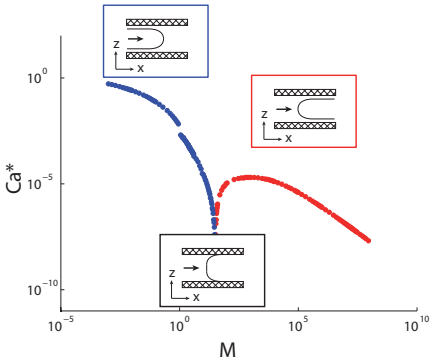
Dans le chapitre 3, nous présentons des résultats expérimentaux et numériques permettant de mettre en évidence l'existence d'une nouvelle transition d'entrainement lorsqu'une interface liquide-liquide est mise en mouvement sur un solide. Par ailleurs, nous détaillons les conséquence de ce mode de déstabilisation sur les motifs d'imbibition typiques obtenus dans une géométrie de cellule de Hele-Shaw.

Dans le chapitre 4, nous présentons une étude numérique complète permettant d'unifier les différents modes de déstabilisation des ménisques en mouvement sur un solide obtenus dans la littérature et dans le chapitre 3. Une seconde série d'expériences qualitatives complète celle du chapitre 3 et confirme le caractère

générique de notre modèle numérique.



(a) *En haut* : image de la déstabilisation du ménisque vers un régime de doigt au centre du canal. *En bas* : image de la déstabilisation du ménisque vers un régime de film mince le long des parois du canal.

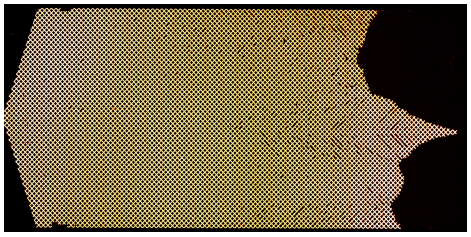


(b) Diagramme de stabilité du ménisque en avancée sur un solide obtenu à l'aide du modèle numérique. Il montre les zones d'existence des trois formes d'invasion observées expérimentalement.

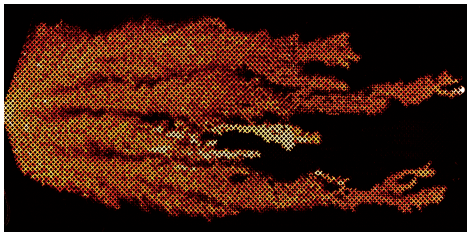
FIGURE 1.21 – Images illustrant les résultats des expériences et des outils numériques utilisés dans les chapitres 3 et 4.

Dynamique d'invasion en milieu poreux

Dans le chapitre 5, nous présentons les premiers résultats sur la dynamique d'invasion en milieu poreux modèle. Nous identifions en particulier un nouveau mode d'invasion qui généralise ceux introduits dans les chapitres 3 et 4. Ce scénario est piloté par l'écoulement en film de coin autour des obstacles constituant le poreux modèle. Un critère géométrique simple est ensuite proposé afin de caractériser l'apparition des différents modes d'invasion.



(a) Imbibition pour $M = 5$



(b) Imbibition pour $M = 100$

FIGURE 1.22 – Images de motifs d'invasion dans un régime d'imbibition obtenus dans un poreux modèle.

CHAPITRE 2

Expériences micro-fluidiques : instrumentation et imagerie

2.1 Introduction

2.1.1 Objectif

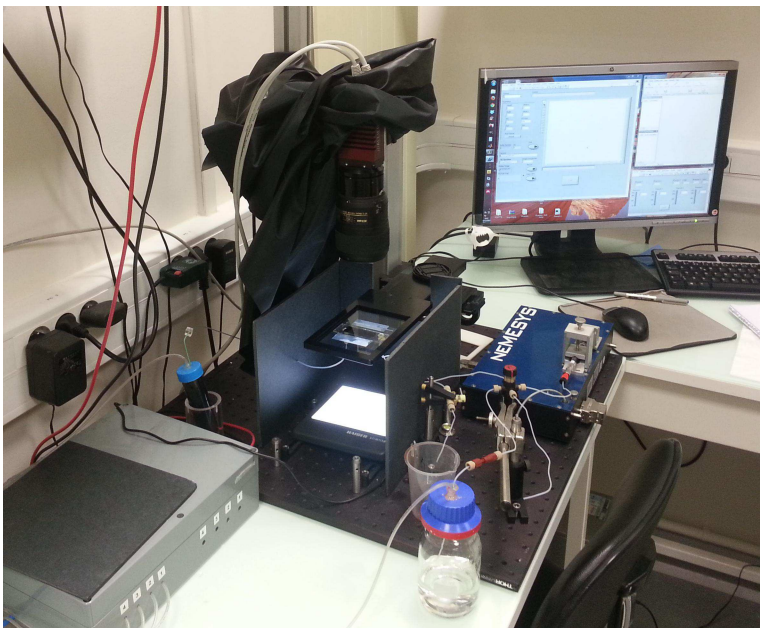


FIGURE 2.1 – Photographie montrant le dispositif expérimental.

Ce chapitre présente la partie technologique de la thèse sous forme d'un manuel détaillant la création d'une expérience en micro-fluidique. L'objectif est de donner une méthodologie pour que toute personne lisant ce chapitre puisse créer pas à pas sa propre expérience micro-fluidique en ayant une idée des problèmes qu'elle va rencontrer et quelles solutions elle pourra y apporter.

2.1.2 Méthodologie

Le montage expérimental développé au cours de la thèse est montré en figure 2.1. On y trouve, au centre, la puce micro-fluidique sur laquelle sont connectés différents outils d'injections. Les appareils permettant la capture des images sont disposés en périphérie de cet ensemble. Ce montage illustre parfaitement l'organisation générale des expériences en micro-fluidique où tout est centralisé autour de la puce.

La figure 2.2 schématise la façon dont est construit ce type d'expérience. La mise au point de la puce micro-fluidique en est l'étape centrale et c'est dans cette

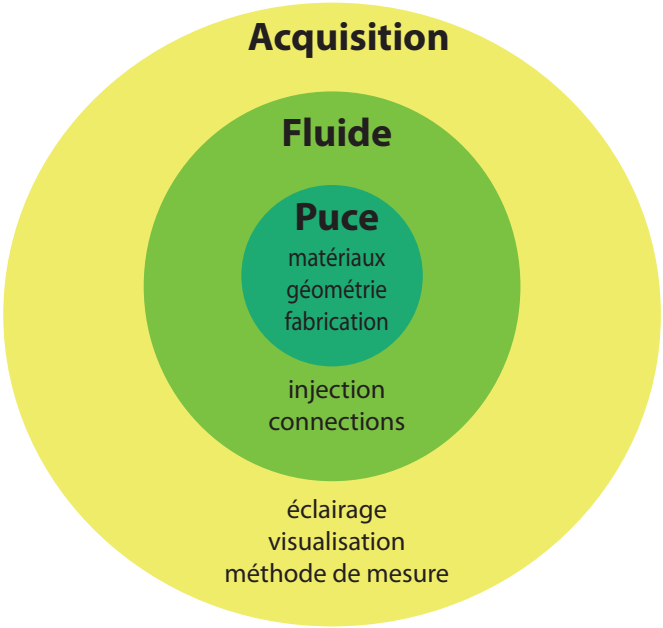


FIGURE 2.2 – Schéma montrant l'organisation générale d'une expérience en micro-fluidique.

partie que se situe l'ensemble de la physique du problème. Cette étape a pour objectif de :

- choisir une géométrie adaptée au problème,
- définir le matériau de la puce ainsi que la méthode de fabrication,
- contrôler si besoin les propriétés du matériau,
- établir un protocole d'injection des fluides.

Une fois cet élément essentiel terminé, on poursuit la construction de l'expérience par la partie fluidique dont le but est :

- de choisir les fluides à utiliser et les méthodes pour les faire s'écouler (pression ou débit),
- d'injecter les fluides dans le dispositif micro-fluidique.

La dernière étape concerne l'exploitation de l'expérience. Elle doit nous permettre d'acquérir les données liées aux effets physiques que l'on étudie. Ses objectifs sont :

- de mettre en place un montage optique pour visualiser les écoulements,
- de choisir un éclairage adéquat,
- de permettre une mesure précise des paramètres physiques.

La suite de ce chapitre reprend l'organisation de la figure 2.2. On y développe dans un premier temps la fabrication de la puce micro-fluidique, puis, dans un second temps, les éléments permettant le contrôle des fluides et, enfin, les outils

d'acquisition de données.

2.1.3 Cahier des charges

Avant de commencer la première étape, il faut établir le cahier des charges auquel l'expérience doit répondre. Dans notre cas, l'objectif est de faire s'écouler dans des milieux poreux deux fluides, l'un visqueux et l'autre mouillant le milieu. De cet objectif ressortent plusieurs points importants pour l'expérience :

1. La géométrie du dispositif doit être facilement modulable pour contrôler le motif des poreux modèles.
2. La résistance mécanique du dispositif doit être élevée pour résister à l'injection de fluides à viscosités élevées.
3. Les propriétés de mouillage du dispositif doivent être contrôlables.
4. La visualisation doit être multi-échelle pour permettre l'observation à la fois de l'intégralité du dispositif et des écoulements à l'échelle des pores

2.2 Géométrie du dispositif micro-fluidique

2.2.1 Pourquoi la micro-fluidique ?

Les outils micro-fluidiques permettent de fabriquer des canaux dont les dimensions sont inférieurs à $100\,\mu$m. Ces échelles se situent largement en dessous de la longueur capillaire des fluides usuels tels que l'eau ou les huiles silicones (où $l_c \approx 1\,\text{cm}$). On peut ainsi négliger les effets de la gravité.

De plus, la micro-fluidique, grâce aux techniques lithographiques utilisées, permet de produire un grand nombre d'objets dont les formes et dimensions sont bien contrôlées, et ceci de façon répétable. Cet outil est donc parfaitement adapté à la conception des milieux poreux et c'est pourquoi nous avons choisi de l'utiliser.

2.2.2 Choix de la zone d'observation

La première étape de fabrication consiste à choisir la géométrie dans laquelle les fluides vont s'écouler. Ce choix rend en effet impossible l'utilisation de certaines techniques de fabrication.

Pour notre étude on souhaite observer l'écoulement de fluides dans une zone poreuse en s'affranchissant autant que possible des effets des bords. On choisit donc une zone rectangulaire la plus étendue possible (figure 2.3), la seule limitation venant de la taille du support de fabrication, ici, une lame de microscope dont les dimensions sont de 72×26 mm. La schématisation du poreux se fait à l'aide d'un réseau régulier de carrés de mêmes dimensions (zoom de la figure 2.3). Le

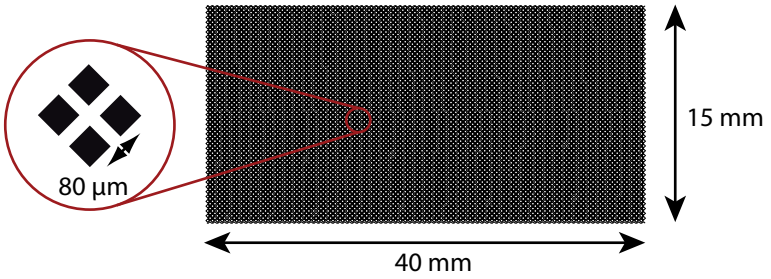


FIGURE 2.3 – Schéma de la chambre d'observation de la puce micro-fluidique. Celle-ci représente un poreux modèle dont la taille des canaux est de 80μm.

choix d'un poreux aussi régulier ne concerne pas la fabrication et sera discuté au chapitre 4.

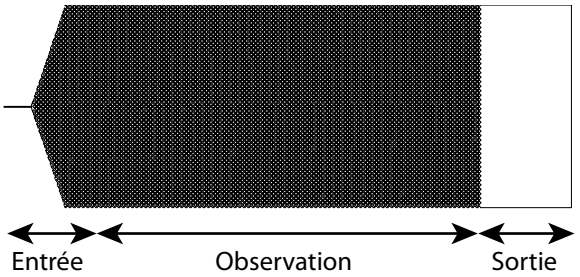


FIGURE 2.4 – Schéma de la zone d'observation complète de la puce micro-fluidique. Celle-ci est composée d'une zone d'entrée en cône, une chambre d'observation et enfin une zone de sortie rectangulaire.

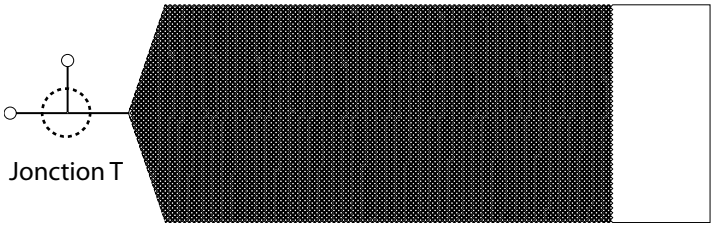
Pour finaliser la zone d'observation, il faut ajouter des zones d'entrée et de sortie pour les fluides. Pour l'évacuation, on prolonge simplement la zone rectangulaire sans y mettre de plot. De cette manière, on ne perturbe pas l'écoulement proche de la sortie. Pour l'injection, l'instabilité de Saffman-Taylor rend impossible l'utilisation de la même technique. Cette instabilité crée en effet un doigt dont la forme dépend des propriétés des fluides utilisés et on ne peut pas avoir une condition initiale reproductible lorsque l'on fait varier un paramètre des fluides. On choisit en conséquence une injection des fluides par un canal unique de largeur petite devant la zone d'observation et reliée à cette même zone par une géométrie en forme de cône (figure 2.4). Ceci nous permet d'améliorer grandement la reproductibilité sur l'état de l'interface entre les fluides à l'entrée du cône. L'écoulement dans la zone d'observation est cependant perturbé sur une distance d'environ la largeur du canal et il faudra en tenir compte lors des expériences.

La géométrie finale de la zone d'observation est schématisée en figure 2.4.

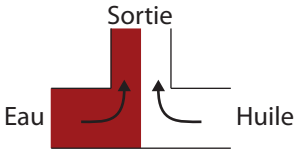
✓ **Géométrie de la zone d'observation**

2.2.3 Injection biphasique sans mélange initial

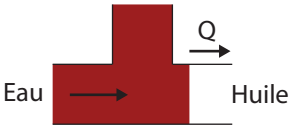
La réalisation de l'état initial est compliquée par l'utilisation de deux fluides non miscibles. En effet, l'expérience nous oblige à les mettre en contact au niveau du système de visualisation, sans mélange préalable et sans piéger de bulle d'air entre les deux. Pour résoudre ce problème, on rajoute en amont de la zone d'étude une jonction en T comme schématisé sur la figure 2.5(a).



(a) Ajout d'une jonction en T à l'entrée de la zone d'observation.



(b) Préparation de l'interface plane.



(c) Début de l'envahissement de l'eau dans la zone d'observation.

FIGURE 2.5 – Protocole d'injection des fluides pour établir une condition initiale propre et reproductible.

Le protocole d'injection est alors le suivant. On commence par injecter l'huile en pression contrôlée dans le canal vide par la sortie pour remplir la zone d'observation. Une fois l'huile arrivée au niveau de la zone en cône, on injecte l'eau en pression contrôlée et les deux fluides sont évacués vers une sortie poubelle sur laquelle est fixée une vanne (Fig2.5(b)). Cette étape permet de former une interface plane entre l'eau et l'huile. On passe ensuite l'eau en débit contrôlé pour que celle-ci se mette à envahir la zone d'observation lorsque l'on ferme la vanne poubelle (Fig2.5(c)). L'objectif d'injecter l'eau d'abord en pression contrôlée, puis en débit, est d'éviter de piéger des bulles d'air dans le canal.

Cette méthode similaire à celle utilisée dans [8] permet de créer un front plat sans mélange et sans piéger de bulles d'air juste avant de rentrer dans la zone d'observation. On obtient ainsi une condition initiale parfaitement contrôlée et

reproductible.

✓ **Injection des fluides et condition initiale**

2.2.4 Dimensionnement des canaux

L'utilisation de tailles extrêmement petites a pour conséquence majeure d'augmenter grandement la résistance hydrodynamique des canaux. Celle-ci relie dans un canal le débit à la différence de pression :

$$\Delta P = R_{hydro} \times Q$$

Pour un canal à section rectangulaire de largeur W, de hauteur h et de longueur L, cette résistance est donnée [23] par :

$$R_{hydro} \approx \frac{12\eta L}{Wh^3}$$

Ainsi, à débit fixé, une diminution de la hauteur des canaux par 2 multiplie la résistance et donc la pression par 8. On comprend alors que, plus on diminue la taille de nos canaux, plus les matériaux dans lesquels on les fabrique doivent avoir une résistance mécanique élevée pour ne pas se déformer et plus la fabrication doit être robuste pour ne pas casser.

A pression contrôlée, une augmentation de la résistance hydrodynamique entraine une diminution du débit et donc de la vitesse du fluide. On doit donc faire attention que celle-ci ne diminue pas trop pour ne pas que l'expérience dure un temps infini. Ceci est particulièrement critique pour l'étape de remplissage en huile car celle-ci peut être très visqueuse ce qui augmente fortement la résistance hydrodynamique.

Dans notre cas, la source de pression est limitée à 1 bar, la viscosité maximale utilisée est de $\eta = 3500\,\text{cp}$ et la chambre d'observation a pour dimension une hauteur de $h = 100\,\mu\text{m}$, une largeur de $W = 15\,\text{mm}$ et une longueur de 50 mm. La résistance hydrodynamique est alors de $R_{hydro} = 1.4.10^{14}\,\text{Pa.s.m}^{-3}$ ce qui donne une vitesse en bout de chambre de $U \approx 500\,\mu\text{m/s}$. Le temps de remplissage est donc inférieur à 100 s ce qui est acceptable par rapport à une durée moyenne d'expérience de 15 min.

En anticipant sur le contrôle des écoulements, on s'intéresse à la résistance du tube d'injection en amont de la puce micro-fluidique. Celui-ci a un diamètre de $d = 500\,\mu\text{m}$ qui donne une résistance par unité de longueur de : $r_{tube} = \frac{128\eta}{\pi d^4} \approx 2.28.10^{15}\,\text{Pa.s.m}^{-4}$. On voit alors que pour une longueur d'environ 6 cm, la résistance du tube devient équivalente à celle du canal. On doit donc faire attention à ne pas mettre une trop grande longueur de tube pour éviter d'augmenter la pression à l'intérieur du dispositif et/ou le temps de l'expérience.

✓ **Dimensions du canal micro-fluidique**

2.3 Choix du matériau

Maintenant que la géométrie a été choisie, il faut fabriquer le dispositif micro-fluidique. Pour cela de nombreuses techniques ont été développées durant les dix dernières années et sont utilisables pour une gamme de matériaux très variés (téflon, verre, PMMA, PDMS,...). Dans notre groupe, trois matériaux sont principalement utilisés : le PDMS, le verre et une résine photoréticulable appelé communément NOA81 (Norland Optical Adhesive). Dans cette thèse, on s'intéresse uniquement à ces trois matériaux et plus particulièrement à la NOA81.

2.3.1 Cas du Polydiméthylsiloxane (PDMS)

La réalisation de dispositif en PDMS à la fin des années 1990 est à l'origine de la démocratisation de la micro-fluidique et sa technique de fabrication est aujourd'hui parfaitement maitrisée. Cependant ce matériau présente plusieurs contre-indications pour notre expérience. Il possède un module élastique assez faible : $E \approx 360 - 870$KPa, il va donc fortement se déformer lorsque la pression va augmenter. Pour la même raison, un dispositif ayant la géométrie de la chambre de visualisation réalisée en PDMS s'effondrerait sur lui-même à cause de son propre poids. Enfin, dernière contre-indication, le PDMS gonfle en présence de la majorité des huiles ce qui entraine que la géométrie change au cours du temps. L'ensemble de ses raisons font que ce matériau n'est pas utilisable pour notre expérience.

2.3.2 Cas du verre

Contrairement au PDMS, le verre est lui non seulement rigide mais également totalement inerte pour les fluides usuels. Cependant, la technique de fabrication des dispositifs en verre, notamment l'étape de fermeture, est encore aujourd'hui assez complexe à réaliser et peu de personnes la maitrisent totalement. La fabrication d'un tel dispositif passe ainsi généralement par une société tiers et le coût est très élevé (> 500 euros/unité). Il n'est donc pas envisageable de changer régulièrement la géométrie des dispositifs ce qui est un des points du cahier des charges.

2.3.3 Cas de la NOA81

Le développement de dispositif en NOA81 a été réalisé en 2008 par Denis Bartolo et Al [12]. Ce matériau présente un module d'élasticité d'environ : $E \approx 1\,\text{GPa}$. Il ne se déforme ainsi pratiquement pas jusqu'à des pressions d'au moins 10bars

[12] ce qui est suffisant pour notre expérience. De plus, ce matériau possède à la fois une bonne résistance chimique aux fluides usuels et ne gonfle pas en présence d'huile, nous ne sommes donc pas restreint sur les fluides utilisables. Enfin, les techniques de fabrication pour ce matériau sont très simples, bien maitrisées et le coût pour chaque dispositif est de l'ordre de l'euro. Nous pouvons ainsi changer à souhait la géométrie du canal.

On a ici un matériau qui répond entièrement au contraintes mécaniques, chimiques et géométriques fixées par le cahier des charges. Il reste cependant la contrainte sur l'état de mouillage à résoudre, celle-ci sera l'objet d'une prochaine partie.

✓ **Choix du matériau**

2.4 Processus général de fabrication

Au cours de la thèse nous avons utilisé trois protocoles de fabrication de dispositif en NOA81 appelés méthodes : soft imprint, par capillarité et par utilisation de surfaces adhésives. Ces méthodes, optimisées au cours des trois années de thèse, généralisent, simplifient et rendent plus robustes celles introduites dans [12].

Afin de faciliter la compréhension et l'utilisation de ces techniques, nous expliquons dans un premier temps la façon générale de procéder pour fabriquer un dispositif en NOA81. Puis, nous donnons pour chaque méthode une fiche de mode opératoire suivie de conseils et d'explications spécifiques à chacune d'entres elles.

2.4.1 Réalisation du pré-moule

La première étape consiste à réaliser des blocs de PDMS qui serviront de moules lors de la fabrication des surfaces de NOA81. On distingue deux types de blocs : d'une part, ceux qu'on appelle timbre et qui contiennent le motif du canal en négatif. Ils sont généralement obtenus par réplication d'un moule de SU-8 réalisé par photolithographie. D'autre part, ceux nommés "flat" qui sont des surfaces planes de PDMS obtenues par réplication d'un disque de silicium.

2.4.2 Fabrication des couches de NOA81

La seconde étape de fabrication consiste à réaliser les parties supérieures et inférieures du dispositif. Pour cela, on fabrique une couche de NOA81 en commençant par comprimer une goutte de NOA81 entre un substrat et un bloc de PDMS. Une fois assuré de ne plus avoir de bulle d'air piégée dans la NOA81, on insole l'ensemble sous des UV de longueur d'onde 360 nm. Cette étape permet de durcir la NOA81 tout en gardant réactive la surface en contact avec le PDMS.

En effet, celui-ci est perméable au di-oxygène et ce dernier inhibe la réaction de photo-polymérisation de la NOA81. Une fois le PDMS retiré, on récupère, déposée sur un substrat, une couche de NOA81 dont la surface est encore réactive.

2.4.3 Assemblage du dispositif

Il reste maintenant à assembler les deux parties du dispositif. Au préalable, il faut percer une des deux surfaces pour permettre l'injection des fluides une fois l'assemblage terminé. Pour les méthodes soft imprint et par capillarité, la fermeture se fait simplement à l'aide des surfaces encore réactives. On les presse l'une contre l'autre en vérifiant bien le contact aux endroits devant être collés puis on insole à l'aide d'UV à 360 nm. Pour la méthode par utilisation de surfaces adhésives, l'assemblage se fait à l'aide d'un scotch double face d'épaisseur contrôlée.

2.5 Protocoles de fabrication

2.5.1 Méthode soft imprint

La méthode soft imprint est celle proposée initialement par D. Bartolo et al [12] pour fabriquer un dispositif en NOA81. Au cours de la thèse, nous avons modifié certains points de ce protocole afin de le rendre plus efficace et pratique. La fiche en page 42 résume le protocole de fabrication obtenu. Par la suite, nous donnerons des détails et astuces sur les différentes étapes afin de faciliter la réalisation des dispositifs.

Pré-fabrication :

- il faut toujours que les **blocs de PDMS soit plus larges que la taille du substrat** afin de faciliter l'assemblage final et ne pas avoir de bourrelet de NOA81.
- les **blocs de PDMS doivent être assez fins** ($< 10\,\mathrm{mm}$) pour rester souples et ainsi faciliter le démoulage lors de la fabrication des surfaces de NOA81. De la même façon, il ne faut pas mettre trop de réticulant dans le PDMS afin de ne pas le rendre trop rigide. En général on utilise un rapport de 1 pour 10 entre le réticulant et le silicone pour du PDMS Sylgard 184 (Dow Corning).
- **Conservez les timbres et flats de PDMS sous vide**. Cela permet d'accélérer la disparition des bulles d'air piégées lors de la fabrication.

Fabrication des surfaces de NOA81 :

- **Besoin :** le bloc de PDMS peut être aussi bien un timbre qu'un flat de PDMS selon si on souhaite réaliser une surface texturée ou plane de NOA81. Le choix du substrat est uniquement limité par le fait que la NOA81 doit pouvoir coller dessus.

- **Étape 1 :** il faut faire attention à ce que le contour du substrat colle bien au PDMS afin que la NOA81 ne s'infiltre pas dessous.
- **Étape 2 à 4 :** Faire chauffer la NOA81 à 70°C avant son utilisation pour faciliter l'étalement. Déposer ensuite la NOA81 sur toute la longueur du substrat et appliquer le timbre de PDMS de sorte à étaler la NOA81 dans le sens de la largeur afin de minimiser l'emprisonnement de bulles d'air. Si des bulles d'air sont malgré tout piégées, on peut essayer de les chasser en appuyant légèrement sur le PDMS. Sinon, le fait d'attendre une dizaine de minutes va permettre au PDMS de les absorber.
- **Étape 5 :** le temps d'exposition peut être augmenté si l'épaisseur de NOA81 est importante. L'idée est que le bulk de NOA81 doit être solidifié tout en gardant une surface encore réactive. Il faut juste faire attention à ne pas sur-exposer.
- **Étape 6 à 8 :** lors de ces étapes, si on utilise une lamelle fine comme substrat il faut faire très attention car le risque de casse est grand. Si le surplus de NOA81 ne se détache pas facilement, il est préférable de le laisser.

Etape de collage :

- **Besoin :** le choix des surfaces inférieures et supérieures du dispositif est complètement libre. Comme dit précédemment il faut seulement s'assurer que les substrats utilisés collent à la NOA81. Dans notre cas, on utilise principalement du verre ou du quartz. Cette liberté permet ainsi de réaliser des canaux avec un, trois ou quatre côtés en NOA81 (on verra que les autres méthodes permettent d'en avoir que deux).
- **Étape 1 :** en général, appuyer à la main suffit pour avoir un bon collage. On peut néanmoins utiliser une presse pour cette étape si besoin.
- **Étape 2 :** le temps d'exposition doit être suffisamment long pour réticuler entièrement la NOA81. Le temps de 60 s donné ici est à titre indicatif et peut augmenter pour des grosses épaisseurs.
- **Plus :** pour renforcer encore le collage, il est possible de laisser le dispositif une fois assemblé au four, à une température supérieure à 80°C pendant quelques heures (au moins deux). En chauffant à cette température, on passe au dessus de la transition vitreuse de la NOA81. Celle-ci se réorganise en assurant un meilleur contact avec le verre et renforce ainsi le collage du dispositif.

Fabrication par Soft Imprint

	Besoins	Etapes de fabrications	Résultats
Préparation	moule en SU-8 (ou) aluminium PDMS	1) Entourer le moule de SU-8 à l'aide de l'aluminium 2) Couler le PDMS sur le moule 3) Réticuler puis décoller le PDMS	obtention d'un «timbre» /»flat» de PDMS
Fabrication des surfaces	timbre en PDMS flat en PDMS substrat NOA 81 surface réactive	1) Poser le substrat sur le flat 2) Déposer la NOA sur le substrat 3) Récouvrir la NOA à l'aide du timbre 4) Attendre 10min pour évacuer les bulles d'air 5) UV — Exposer aux UV à 360nm 6 sec à P = X mW/cm² 6) Retirer le flat de PDMS 7) Retirer le surplus de NOA 8) Retirer le timbre de PDMS	obtention d'une couche texturée de NOA dont la surface est réactive
Assemblage	couche de NOA support de fermeture percé (ou) surface réactive	1) Mettre en contact les deux parties en alignant les trous d'injections 2) UV — Exposer aux UV à 360nm 60 sec à P = X mW/cm²	obtention d'un dispositif fonctionel en NOA

2.5.2 Méthode par capillarité

La méthode par capillarité permet de fabriquer des canaux micro-fluidiques dont seul les côtés seront en NOA81. Les parties supérieures et inférieurs sont directement les substrats sur lequels on vient déposer la NOA81. Pour réaliser ce type de canal, on modifie les étapes 2 et 3 de fabrication des couches de NOA81. On dépose le timbre de PDMS en contact direct avec le substrat puis on dépose la NOA81 sur l'un des bords et on le laisse s'infiltrer par capillarité. Pour que cette méthode fonctionne, il faut modifier le motif utilisé et ajouter des plots autours du canal pour permettre l'infiltration de la NOA81. Ci-dessus (figure 2.6) un exemple de motif modifié, les flèches indiquent par où la NOA81 s'infiltre.

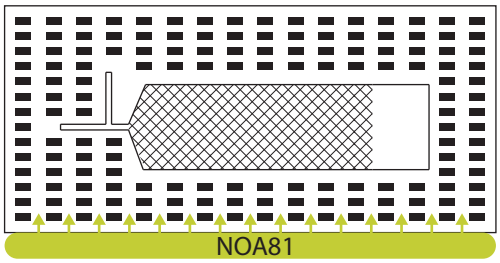


FIGURE 2.6 – Exemple de timbre en PDMS contenant des plots pour permettre le passage de la NOA81 lors de la fabrication d'une surface de NOA81 par capillarité.

Pré-fabrication :
- Le motif des timbres de PDMS doit contenir des plots.
- Le **timbre de PDMS doit être plus petit que le substrat** pour ne pas gêner l'invasion capillaire. Le **flat doit lui rester plus grand que le substrat** pour les mêmes raisons qu'évoquées précédemment.

Fabrication des surfaces de NOA81 :
- **Étape 1 :** idem que pour soft imprint.
- **Étape 2 :** lorsque l'on pose le timbre sur le substrat, il faut bien faire attention à ce que tous les plots et les canaux soient bien en contact avec le substrat afin d'éviter l'infiltration de NOA81 sous le motif.
- **Étape 3 :** le dépôt de la NOA81 se fait sur toute la longueur du timbre de PDMS pour accélérer l'infiltration. On peut en déposer également à d'autres endroits, il faut seulement faire attention à toujours avoir une zone d'évacuation pour l'air.
- **Étape 4 :** Il faut limiter au maximum le temps d'invasion car il y a une ségrégation au cours du temps du polymère de la NOA81 vers le PDMS et du réticulant vers le bulk. Le temps d'invasion est malheureusement très dépendant de la géométrie utilisée et on ne peut pas le modifier facilement. Une des méthodes pour l'accélérer est de laisser l'ensemble sur une plaque

chauffante à 70°C afin de diminuer la viscosité de la NOA81 et ainsi augmenter la vitesse d'invasion.

- **Étape 5 à 8 :** idem que pour soft imprint.

Étape de collage :

- **Besoin :** l'idée de cette méthode est de réaliser un canal dont seul les murs latéraux sont en NOA81. On utilise ainsi habituellement un substrat sans couche de NOA81 pour refermer le canal.
- **Étapes :** idem que pour soft imprint.

Fabrication par Capillarité

	Besoins	Etapes de fabrications	Résultats
Préparation	moule en SU-8 avec plots aluminium PDMS	1) Entourer le moule de SU-8 à l'aide de l'aluminium 2) Couler le PDMS sur le moule 3) Réticuler puis décoller le PDMS	obtention d'un timbre de PDMS avec plots
Fabrication des surfaces	timbre en PDMS avec plots flat en PDMS substrat NOA 81 surface réactive	1) Poser le substrat sur le flat 2) Poser le timbre de PDMS en contact avec le substrat 3) Déposer de la NOA le long d'un des bords du timbre 4) Attendre que la NOA remplisse le timbre (Plaque chauffante) 5) Exposer aux UV à 360nm 6 sec à P = X mW/cm² (UV) 6) Retirer le flat de PDMS 7) Retirer les bourlets de NOA 8) Retirer le timbre de PDMS	obtention d'une couche texturée de NOA dont la surface est réactive
Assemblage	couche de NOA support de fermeture percé surface réactive	1) Mettre en contact les deux parties en alignant les trous d'injections 2) Exposer aux UV à 360nm 60 sec à P = X mW/cm² (UV)	obtention d'un dispositif fonctionel dont seul les côtés sont en NOA

2.5.3 Méthode par utilisation de surfaces adhésives

La méthode par utilisation de surfaces adhésives diffère des précédentes par le fait que le motif n'est plus imprimé dans les couches de NOA81. Il est découpé directement dans un scotch double face d'épaisseur contrôlé à l'aide d'une découpeuse industrielle (GraphTec Robo) à partir d'un dessin vectoriel. De plus, le collage est réalisé à l'aide de ce scotch et non plus par les surfaces réactives de NOA81.

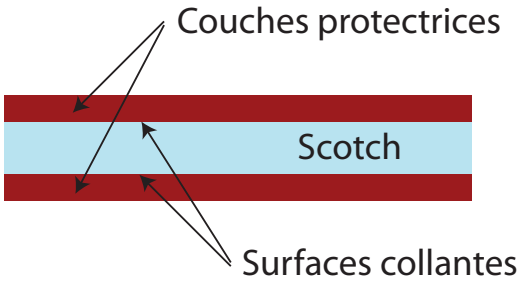


FIGURE 2.7 – Schéma d'une coupe d'un scotch double face.

On montre en figure 2.7 un schéma du scotch double face afin de préciser la nomenclature. La précision du motif est moins bonne qu'en lithographie, on obtient des canaux de largeur 300 μm au plus petit. Néanmoins, cette méthode est beaucoup plus rapide et facile à utiliser que les précédentes, principalement par le fait qu'il n'y a plus besoin de réaliser des moules en SU-8 pour chaque géométrie. De plus, elle ne nécessite que très peu d'investissement et peut être utilisée avec tous types de matériaux.

Par soucis de comparaison avec les autres méthodes, le protocole présenté reste cependant celui de la réalisation d'un dispositif où les surfaces inférieures et supérieures sont en NOA81.

Pré-fabrication :

- **Étape 2 :** lorsqu'on retire le motif du scotch, l'idéal est de laisser la surface protectrice en contact avec le papier transfert pour éviter que par la suite la colle de ce dernier ne pollue nos surfaces.

Fabrication des surfaces de NOA81 :

- **Étapes :** la seule différence avec le protocole de soft imprint est que nous insolons à la fin les couches de NOA81 afin de supprimer les surfaces réactives.

Étape de collage :

- **Besoin :** si possible, un des deux substrats doit être légèrement souple (par exemple une lamelle) afin de faciliter la mise en contact des zones à coller.

De plus, une des deux couches de NOA81 doit être percée pour permettre l'injection des fluides.

- **Étape 1 et 3 :** il faut faire attention, lorsque l'on décolle un papier transfert, à bien emporter la surface protectrice associée.
- **Étape 4 :** en général, appuyer avec les mains suffit pour avoir un bon collage. On peut néanmoins utiliser une presse pour cette étape si besoin.

Fabrication par utilisation de surface Adhésive

	Besoins	Etapes de fabrications	Résultats
Préparation	Scotch double face Papier transfert x2	1) Découper le motif du canal 2) Coller un papier transfert d'un côté 3) Retirer le motif découpé précédement 4) Coller un papier transfert du second côté	obtention d'un motif en scotch double face
Fabrication des surfaces	flat en PDMS flat en PDMS substrat NOA 81 surface réactive	1) Poser le substrat sur le flat 2) Déposer la NOA sur le substrat 3) Récouvrir la NOA à l'aide du timbre 4) Attendre 10min pour évacuer les bulles d'air 5) UV — Exposer aux UV à 360nm 6s à X mW/cm² 6) Retirer le flat de PDMS 7) Retirer le surplus de NOA 8) UV — Retirer le timbre et exposer aux UV pendant 60s à XmW/cm²	obtention d'une couche plane de NOA
Assemblage	Scotch avec motif couche de NOA couche de NOA perçée surface collante	1) Retirer un des papiers transferts 2) Appliquer le scotch sur une couche de NOA 3) Retirer le second papier transfert 4) Mettre en contact avec la seconde couche de NOA	obtention d'un dispositif avec les murs en scotch

2.5.4 Conclusion

Pour conclure sur cette étape de fabrication, le tableau ci dessous (2.1) récapitule les spécificités de chacune des méthodes :

	Type de dispositif	**Substrat**	**Fluide**	**Utilisation**
Soft Imprint	1,3 ou 4 murs en NOA81	adhérant à la NOA81	pas de base forte	par défaut
Capillarité	2 murs latéraux en NOA81	adhérant à la NOA81	pas de base forte	mur supérieur et inférieur pas en NOA81
Surfaces Adhésives	2 murs latéraux en scotch	adhérant au scotch	compatible avec le scotch	précision faible ou prototy-page

TABLE 2.1 – Récapitulatif des protocoles de fabrication de dispositif contenant un ou plusieurs murs en NOA81.

✓ **Protocole de fabrication**

2.6 Contrôle des propriétés de mouillages

L'un de nos objectifs est de réaliser des expériences d'imbibition. Pour cela, on souhaite injecter un fluide mouillant les parois dans un dispositif pré-rempli par un autre fluide. On choisit d'utiliser de l'eau comme fluide mouillant et de l'huile silicone pour celui en place (ce choix sera expliqué plus en détail par la suite). Le problème est que l'angle de contact à l'avancée de l'eau sur de la NOA81 native en présence d'huile silicone est de 120°, nous ne sommes donc pas dans le domaine mouillant pour l'eau.

Afin de résoudre ce problème, nous avons développé au cours de la première année de thèse une méthode de traitement de surface pour la NOA81. Celle-ci permet de faire passer ce même angle de contact à environ 7°. On peut ainsi réaliser des expériences d'imbibition en poussant de l'eau dans un dispositif rempli d'huile silicone. De plus, cette méthode a l'avantage de découpler la partie traitement de

surface de l'étape de fermeture des dispositifs. On peut ainsi traiter aussi bien in-situ que ex-situ les dispositifs, ce qui n'est pas le cas dans la majorité des procédés existants.

Cette méthode a été l'objet en 2012 d'un brevet déposé par Total S.A. [49] ainsi que d'un article [50] reproduit ci dessous. Il présente et explique cette méthode.

2.6.1 Engineering the surface properties of microfluidic stickers

We introduce a simple and effective method to tailor the wetting, and the adhesion, properties of thiolene-based microfluidic devices. This one-step lithographic scheme combines most of the advantages offered by the current methods employed to pattern microchannels : (i) the channel walls can be modified in situ, or ex situ, (ii) their wettability can be varied in a continuous manner, (iii) heterogeneous patterning can be easily accomplished, with contact-angle contrasts extending from 0 to 90° for pure water, (iv) the surface modification has proven to be highly stable upon aging and heating. We first characterize the wetting properties of the modified surfaces. We then provide the details of two complementary methods to achieve surface patterning. Finally, we demonstrate the two methods with three examples of applications : the capillary guiding of fluids, the production of double emulsions, and the culture of cells on adhesive micropatterns.

The combination of PDMS and of soft-lithography is considered as the gold standard for numerous microfluidic applications in research laboratories. However, the elastomeric nature of PDMS strongly restrain the range of application of this material.To circumvent this limitation, while keeping the simplicity and the low cost of the fabrication, several solutions have been successfully put forward to make microfluidic chip out of non-elastomeric materials. Prominent examples include COC, polycarbonate, PMMA and thiolene-based polymers. However, since they all rely on plastics, these solutions share a common limitation with conventional PDMS devices : channels are uniformly hydrophobic. This feature impedes several emerging applications such as : the formulation of complex fluids such as multiple emulsions [80], cell-based assays for diagnostic, or high-content screening purposes [31], and the study of transport in porous media in view of energy applications such as : fuel cells, enhanced oil recovery and CO2 sequestration [16]. As a matter of fact, all these applications rely on the exquisite control of the local wetting/adhesion properties of the walls of the channel.

Therefore, over the last five years, we have seen a surge of interest in the modification of plastic microdevices to make them locally hydrophilic. A first strategy consists in grafting functional molecules to the channel's walls [62, 88, 68, 64, 54, 27, 19]. The main advantages are : (i) the resulting surface modification do not age, (ii) UV-assisted graftings yield high-resolution patterns, (iii) the surface modification is performed in *situ*. The main limitations are : (i) hydrophobicity of

the surface cannot be fine-tuned. The water contact angle, for instance, is fixed for a given grafted molecule. (ii) Iterative modifications of the contact angle cannot be accomplished in the same setup. (iii) the grafting is a multistep process. (iv) the minimal water contact angle that has been achieved is $\sim 20°$ [62]. Moreover, the maximal contrast in water contact angle on a single device is bound to $\sim 50°$. This generic scheme competes with an older approach introduced first for PDMS circuits. It consists in oxidizing the surfaces of the device with oxygen plasma, or deep UV/ozone exposure prior to the sealing of the device. By increasing the exposure time, the latter method allows for continuous variations of the water contact angle from 110° to 0. The same strategy has been applied to a number of other polymers [27]. Unfortunately, whatever the material, this method yields poorly robust surface treatments. The water contact angle typically recover its initial values after a couple of days, after heating or washing. A second major drawback of the UV treatments is that, they have only been performed *ex situ*.

We show how to engineer the surface properties of thiolene-based microfluidic stickers [12] in a robust manner. This novel method consists in using deep UVs to locally increase the surface energy of the walls. This scheme combines most of the advantages of the aforementioned methods. In this paper, we first characterize the wetting properties of thiolene films exposed to deep UVs. Then, we show how to pattern the surface of microchannels in situ, or ex situ. Finally, we demonstrate explicitly : (i) how to perform capillary guiding of aqueous fluids, (ii) how to form multiple emulsions in microfluidic stickers, (iii) how to pattern stickers with adsorbed functional molecules, and (iv) how to grow cell selectively on well defined adhesion spots.

In all that follows, the microfluidic circuits are microfluidic stickers made of NOA81 81 (Norland Optical adhesive). NOA81 is a thiolene-based photocurable resin, which displays outstanding mechanical, chemical and optical properties for microfluidic applications [12, 71]. In brief, a drop of NOA81 is pressed between two patterned PDMS stamps obtained by conventional soft-lithography. The resin is then UV-cured : 7s exposure with a 365nm UV light (Hamamatsu LC8, 10 mW.cm^{-2}). The resulting patterned film are adhesive, as oxygen diffuses through the PDMS stamps, and locally hinder the free-radical polymerization. We then exploit this property to seal the channels either with a quartz microscope slide, or with another NOA81 sticker. To do so, we expose again the assembled chip to a 365 nm UV light (60 s, 30 mW.cm^{-2}).

We first investigate the effect of deep UV exposure on the contact angle of water droplets deposited on NOA81 flat films. The films are made by pressing a drop of NOA81 on a glass slide with a flat PDMS stamp. The NOA81 film is subsequently modified by an exposure to deep UVs during a time T_{exp}. Two different apparatus were used, and both yield the same results : an ozone-generating lamp (Heraeus), which has a spectrum peaked at 185 nm and 254 nm, and a broad-

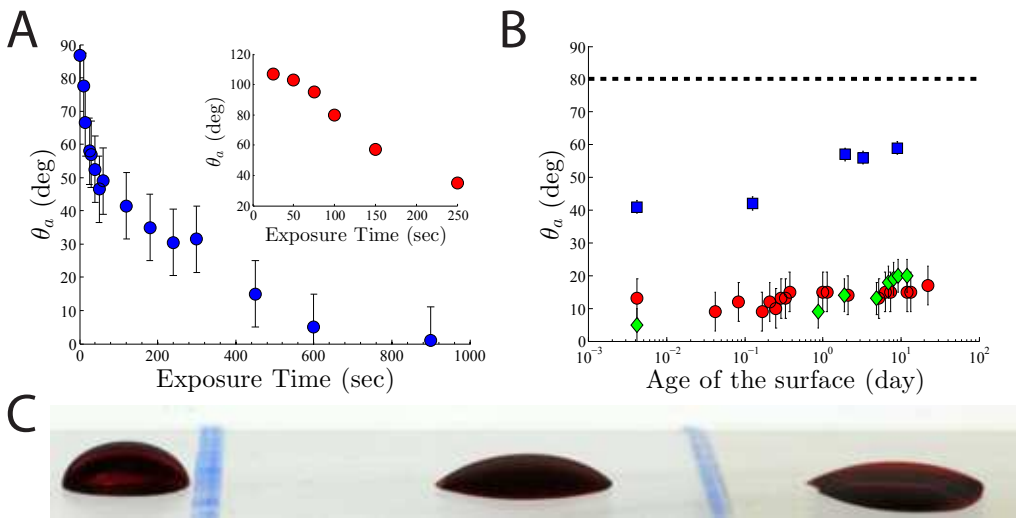


FIGURE 2.8 – A-Advancing contact angle, θ, made by a water drop on a NOA81 film plotted as a function of the T_{exp}. The error bars correspond to the maximal dispersion. Inset, same measurements for a water drop immersed in hexadecane oil. B-Variation of the contact angle as a function of the age of the surface (stored in air) for two different exposure times : 200 s (Blue squares) and 1800 s (red circles). The green diamonds correspond to surfaces stored in hexadecane (exposure time : 1800s). Here the error bars correspond to the uncertainty associated with the contact angle measurement. C- A thin NOA81 film exposed to deep UVs for three different T_{exp}, leftmost region : 0s, central region : 200s, rightmost region : 1800s. In the latter case the apparent finite value of the contact angle is due to the inclination of the camera.

spectrum UV/ozone apparatus (UVO-cleaner model 144AX-220). In all that follows we present the results obtained with the latter instrument, if not explicitly mentioned. Figure 2.8A shows the variations of the water contact angle with T_{exp}. The (advancing) contact angle, θ_{a}, was measured few minutes after the UV treatment by direct image analysis using a commercial solution (PSA30-KRUSS). Each measurement was repeated three times (on three different surfaces). The error-bars correspond to the maximal dispersion of the results. Firstly, we observe that θ can be continuously lowered from 80°, corresponding to the contact angle on a bare NOA81 surface, down to 0° for $T_{exp} > 10$ minutes. This unprecedented range of accessible contact angles is our first main result. In addition, the slope of the $\theta(T_{exp})$ curve reaches a constant value for $\theta < 60°$. Therefore, the contact angle can be tuned continuously and accurately in the $0° - 60°$ range. This fine tuning can be done by iterative UV exposures as exemplified, in Figure 2.8C. The contact angle of three colored water droplets on the same NOA81 film, is clearly seen to be smaller in the regions corresponding to high T_{exp}. However, it is worth noting that, the deep UV exposure results in a strong increase of the polymer surface energy thereby increasing the spreading parameter of most of the liquids. In other words, the modified NOA81 films are both more hydrophilic and lipophilic. We repeated the same water-contact-angle measurement for drops immersed in an organic liquids, namely in hexadecane and in silicon oil (Aldrich). The results shown in Figure 2.8A inset, reveal that the UV treatment does favor the wetting of aqueous liquids, in agreement with all the former experiments performed on other plastic materials, such as PDMS, PMMA, and polycarbonate due to the formation of peroxyde groups [85]. Yet, none of them displays such an outstanding stability in time as NOA81. In Figure 2.8B, θ_a is plotted versus the age of the surface after the deep UV exposure. The smaller contact angle hardly varied over a period of three weeks, during which the samples were stored at a room temperature inside a Petri dish (red circles). For higher initial contact angles (blue square symbols), the surface recovery was slightly more pronounced after an aging time of about one day in the same storage condition. We add that the same experiment were repeated for surfaces stored at high temperature (90°C), or immersed in hexadecane (green diamonds in Figure 2.8B). We found that the surface modification is neither altered by heating, nor by putting the surface in contact with organic liquids. The extreme robustness of the surface modification is the second major result of this paper.

Motivated by these findings, we took advantage of the UV exposure to devise fully hydrophilic microfluidic devices and patterned microchannels. We employed two different methods sketched in Figure 2.9A and B corresponding to in situ and ex situ patternings respectively. *In situ patterning* : The method consists in making a microfluidic sticker according to the method introduced in [12]. The resulting assembly is sketched in Fig. 2.9A. To locally modify the surface properties

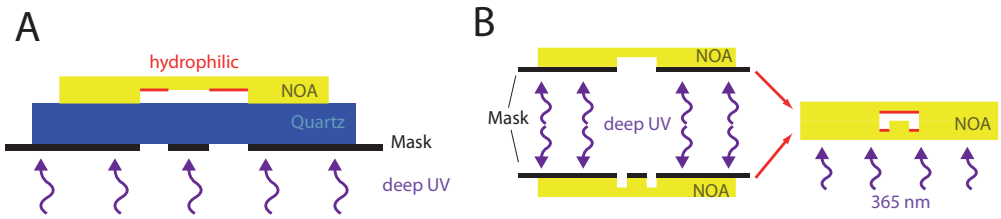


FIGURE 2.9 – Schematic illustration of the process of in-situ (A) and ex-situ (B) patterning of microfluidic sticker.

of the NOA81 sticker, a photomask is placed against the quartz substrate, and the device is exposed to the desired deep-UV dose. The wetting properties of the micro channel are locally changed according to the reference plot in Fig. 2.8. To accomplish an in situ patterning, the key idea was precisely to use a quartz substrate, which does not absorb the wavelengths responsible for the surface modification. Conversely, as most of the plastic materials strongly absorb the wavelength smaller than 300nm, making a photomask is straightforward. For instance : a conventional small height SU8 lithography on a quartz plate is sufficient to locally shield the sticker from the deep UVs. For large scale maskings, a pencil drawing on the quartz substrate is arguably the simplest possible solution.

Note that the sealing of the device and the surface treatment are decoupled and correspond to two UV exposures at very different wavelengths, as opposed to the conventional methods (plasma, UV/ozone) used to seal and make hydrophilic the PDMS devices. *Ex situ patterning* : As sketched in Fig. 2.9B the above method is easily modified to tailor the wetting properties of the four sides of the microchannel, prior to the sealing of the device. By doing so, higher spatial resolutions can be achieved as the photomask is in conformal contact with the channels. In addition, both the floor and the ceiling of the channels can be textured, and all the four walls are made of the same material. However, the mask has to protect the parts of the stickers used to bond the two parts of the device. The parts of the stickers exposed with UVs loose their adhesive properties. Therefore, the photopatterning requires an extra alignment step between the masks and the channels.

To demonstrate this method, we now report on three benchmark experiments. The first set of experiments consists in guiding the flow of aqueous liquids by a wetting pattern. We prepared a square network of channels (width : $80\,\mu$m, height : $50\,\mu$m), Fig. 2.10. The channel network is made of a microfluidic sticker bound to a quartz slide. The lower-half of the device was exposed to deep UVs for 30 minutes, the upper-half being shielded with a glass slide. The three pic-

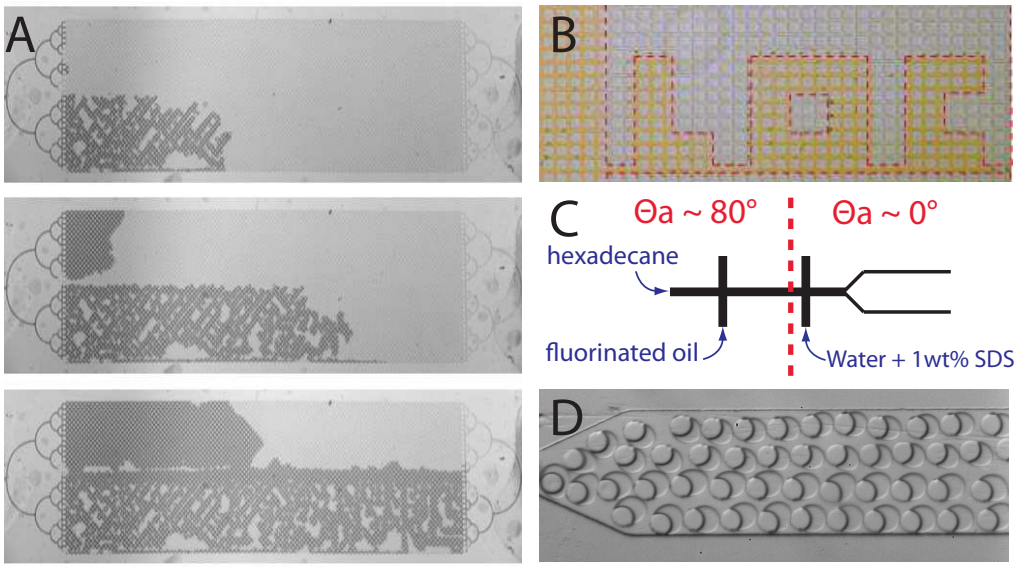


FIGURE 2.10 – A- Image sequence of the imbibition dynamics of colored water (food dye) in a channel network. The lower part of the device was made hydrophilic by a $T_{exp} = 3600$ s exposure. The fluid is driven by a 60 mBar pressure difference. B- "LOC" pattern made in a porous media by the imbibition of a colored water droplet (yellow food dye). The dashed lines represent the mask geometry used. $T_{exp} = 3600$ s. C-Geometry used to make double-emulsions of hexadecane in fluorinated oil in water and 1wt% SDS. We made the right part of the channel to be hydrophilic by a 1800 s UV-exposure. D- Picture of the outlet chamber containing the monodisperse double emulsion.

tures in Figure 2.10A, show the imbibition dynamic of water through this regular network. The liquid is driven by a constant pressure difference of 60 mbar. The imbibition is much faster in the hydrophilic part of the channel. In addition, the imbibition dynamics is markedly different in the two regions. Whereas a typical percolation pattern is observed in the hydrophilic region, a sharp front forms in the hydrophobic region, leaving only very few empty channels as it propagates toward the outlet [44]. These observations prove unambiguously that the in situ surface modification is effective over the whole exposed area. Note that the separation between the two dynamic-wetting scenario is very sharp. In order to assess the spatial resolution of the hydrophilic patterning, we prepared another channel network. We made it locally hydrophilic *insitu* by using a SU8 photomask made of the "L.O.C" letters, Fig. 2.10B. We then deposited a water droplet at the channels inlet. The network was spontaneously imbibed along the exposed region only, thereby revealing the "LOC" pattern in the device, in excellent agreement with the mask geometry (dashed lines). We deduce from this picture that the resolution is basically comparable to the thickness of the quartz substrate : few tens of micrometers in the present experiment. To further increase the resolution, the surface modification has to be done prior to the sealing of the device, see below and Figure 2.11. This first set of experiment confirms the potential of this technique to devise model porous media, with controlled chemical heterogeneities, in view of energetic applications.

In a second set of experiments, we patterned the wetting properties of a double flow-focusing device. This geometry, sketched in Figure 2.10C, is classically used to produce double-emulsions. Numbers of studies on PDMS surface modification have actually been driven by such applications[88]. Typically, to produced double-emulsions, the wetting properties of the channel walls has to be inverted at the second focusing junctions. To do so, we exposed for 30 minutes the half of the device downstream the second flow-focusing junction, see Fig. 2.10A. We then managed to produce, in a very stable and reproducible manner, hexadecane droplets encapsulated in fluorinated oil droplets dispersed in a water and 1wt% SDS aqueous solution, see Fig. 2.10D. Contrary to the silicon elastomers, NOA81 is very well suited to the transport of organic solvents. Therefore, the combination of the UV patterning described in this paper, together with the specific grafting techniques described in [19] is expected to greatly expand the formulation capabilities of plastic microfluidic devices.

In a third set of experiments, we assess the potential of the UV-based patterning for cell biology applications. When cells are grown on adhesive micropatterns, the shape of the pattern directs not only the cell shape but also cellular mechanism such as cell polarity [77, 76, 75] and cell division in a very deterministic manner. Consequently, there has been a large interest of the cell biology community for surface micro-patterning in view of high content investigations.

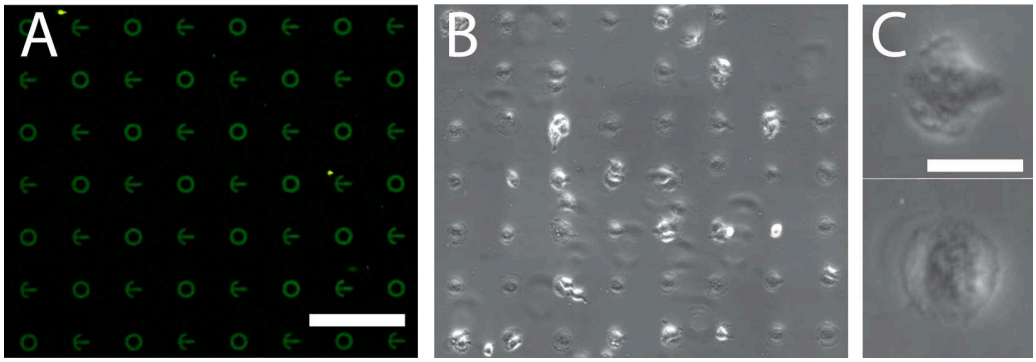


FIGURE 2.11 – A- Epifluorescence microscopy image of Cy-3 fibronectin patterns on a NOA81 film, scale bar = 100 μm. B- Phase contrast microscopy image of mouse embryonic fibroblasts cultured on a NOA81 film, patterned by deep UV. Cells attach selectively to the hydrophilic micropatterns. The shape and the location of the patterns is the same as in A. C- Close-ups on a cell located on a crossbow pattern (top), and on a circular pattern (bottom). Scale bar 20 μm.

UV-assisted cell patterning has been demonstrated on various materials including glass and plastic substrates [85, 11, 10, 79]. The generic strategy consists in adsorbing an extracellular matrix protein such as polylysine or fibronectine on hydrophilic micro-patterns surrounded by an antifouling polyethylene glycol (PEG) coating. When subsequently culturing cell on these substrates, they selectively adhere on the protein spots. First, we show in Figure2.11A that NOA81 stickers can be effectively patterned with a mixture of fibronectin/fibrinogen-Alexa Fluor 488nm. To achieve high resolution patterns, NOA81 films were exposed ex-situ through a chromium on quartz photo-mask for 2 minutes at 20 mJ/cm^2 with an ozone-generating lamp. The high contrast of the patterns demonstrates the good selectivity of this simple protein patterning method. We have next cultured Mouse Embryonic Fibroblast (MEF) cells on these micropatterns. After 30 min in the incubator, the cells attach to the patterns and their morphology is dictated by the shape of the pattern. We now stress on a much more interesting feature offered by the UV-treated stickers. When the MEF cells are cultured on protein-free stickers, after irradiation through the photomask, the cells grow exclusively on the illuminated regions and adapt their shape to the pattern geometry as they do on fibronectin spots, Fig. 2.11B and C. These observations demonstrate that bare NOA81 films display anti-fouling properties, whereas UV-treated stickers promote cell adhesion. Therefore, extended cell based micro-patterns can be accomplished in a straightforward manner with no added protein or linker.

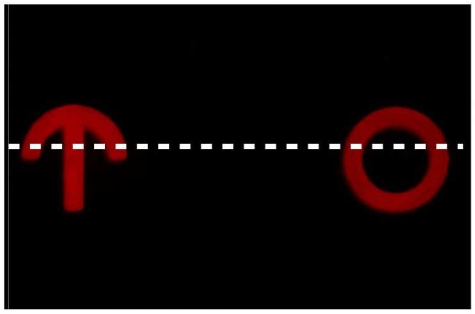
In conclusion, we have introduced a simple and effective method to engineer

the wetting properties of microfluidic stickers. By means of three benchmark experiments, we have demonstrated the great potential of the resulting devices for a number of applications including : (i) the design of model porous structure in view of energetic applications, and (ii) the fabrication of new class of cell-based assays, for which the shape and the specificity of the cell adhesion can be tuned independently.

We acknowledge stimulating interactions with P. Tabeling and A. Duboin.

This work was supported by the Paris Emergence 2009 Research program, C'Nano IDF and ANR Programme Nano 2007 Dropcell.

2.6.2 Auto-fluorescence



(a) Vue de dessus de la surface de NOA81.

(b) Vue en coupe de la surface de NOA81 réalisée à l'aide d'un microscope confocal.

FIGURE 2.12 – Images en fluorescence d'une surface de NOA81 exposée à travers un masque à des UV de longueurs d'ondes situées entre 180 et 240 nm.

La figure 2.12(a) montre l'image en fluorescence d'une surface de NOA81 traitée par la méthode expliquée précédemment à travers un masque représentant une ancre et un rond. Ceci nous montre que le traitement donne aux surfaces de NOA81 une propriété d'auto-fluorescence aux endroits exposés.

On réalise alors une image de la tranche de la surface de NOA81 à l'aide d'un confocale (figure 2.12(b)) et on mesure une épaisseur sur laquelle s'opère le traitement d'environ $3\,\mu$m. Cette épaisseur prouve que le traitement s'effectue non pas en surface mais en volume. Cette altération en masse des propriétés de la NOA81 est probablement la raison pour laquelle le traitement est aussi résistant non seulement dans le temps mais aussi à la présence de différents liquides ou bien

au chauffage.

✓ **Propriétés de mouillage**

2.7 Contrôle des écoulements

Les étapes précédentes ont permis de mettre au point la pièce centrale de l'expérience dans laquelle a lieu toute la physique du problème. Il nous faut maintenant ajouter des éléments pour injecter les fluides selon le protocole établi pour la condition initiale.

2.7.1 Connectiques

On ajoute dans un premier temps des connectiques sur le dispositif microfluidique pour permettre le passage des fluides depuis les éléments de contrôle macroscopique (pousse-seringue, boite de pression) jusque dans les canaux.

Ces connectiques peuvent être réalisées de bien des façons. L'une des plus simples utilisées dans le groupe consiste à coller, à l'aide d'un plasma, un bloc de PDMS pré-percé directement sur le dispositif. On vient ensuite rentrer le tube d'injection directement dans le PDMS (figure 2.13(a)).

Cette méthode n'est cependant pas utilisable dans notre cas à cause du PDMS pour les même raisons qu'exposées précédemment.

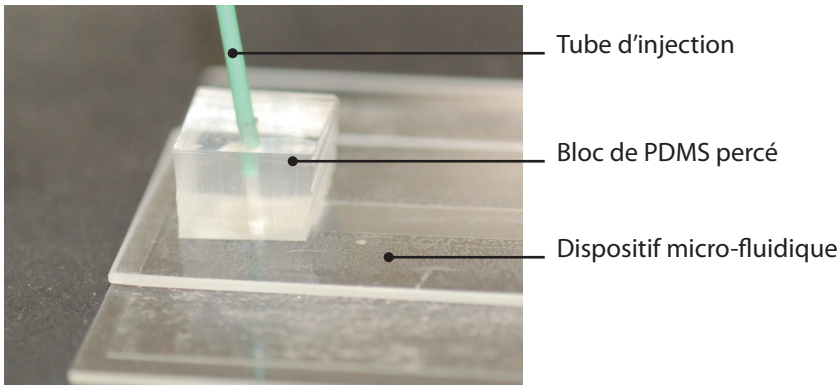
On choisit à la place d'utiliser une connectique commerciale (upchurch) et de la coller sur le dispositif à l'aide de la NOA81 (figure 2.13(b)). Les tubes d'injections se vissent alors simplement dessus.

Pour réaliser ce collage, on procède en deux étapes :

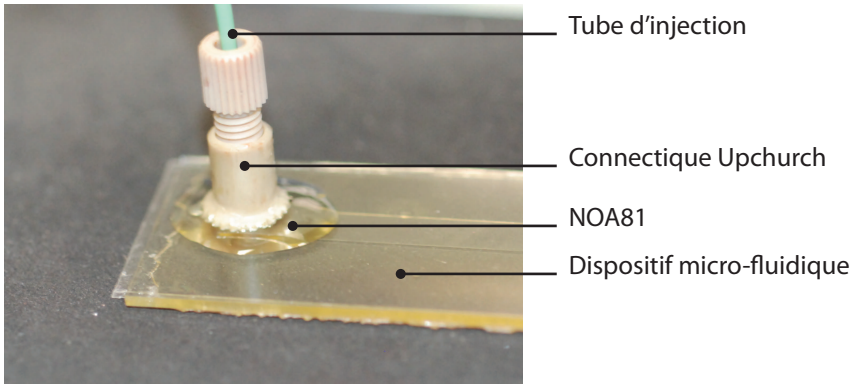
- on commence par mettre de la NOA81 sous la connectique, on dépose ensuite celle-ci sur le dispositif en l'alignant avec l'entrée. Il faut faire attention à ne pas mettre trop de NOA81 pour ne pas que celle-ci pénètre à l'intérieur du dispositif et le bouche. On insole ensuite au UV à 360 nm pendant 6 s par le dessus puis 6 s par en dessous avec une puissance de X mW/cm^2. Il ne faut pas insoler à trop grande puissance car sinon la NOA81 va réticuler en volume et l'adhésion sur le dispositif sera mauvaise.
- on étale à nouveau de la NOA81 tout autour de la connectique afin de renforcer l'adhésion et la tenue en pression. Puis on insole pendant 6 s par le dessus puis 60 s par le dessous pour terminer le collage.

2.7.2 Méthode d'injection

L'injection des fluides peut se faire de deux façons : en pression contrôlée ou en débit contrôlé. Pour les besoins de l'expérience (voir partie sur la condition



(a) Connectique en PDMS collée à l'aide d'un plasma d'oxygène à basse pression.



(b) Connectique commerciale Upchurch collée à l'aide de NOA81.

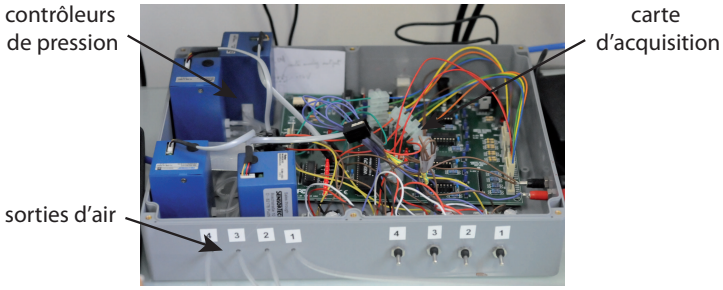
FIGURE 2.13 – Image de connectiques micro-fluidiques.

initiale) on utilise en simultané les deux méthodes de contrôle, en pression pour l'huile et en débit pour l'eau.

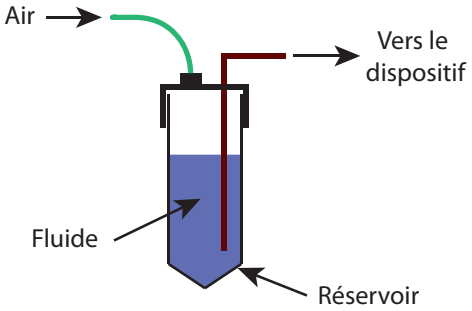
Pour contrôler en débit l'eau, on utilise un pousse seringue (Cetonis) commandé directement par ordinateur à l'aide du logiciel constructeur.

Pour le contrôle en pression des fluides, on fabrique une boite de pression (figure 2.14(a)) à l'aide de contrôleurs de pression (Parker) et d'une carte d'acquisition de 8 bits (National Instrument ou Vellman). Elle délivre des pressions allant de 30 à 1000 mbar par pas de 4 mbar et on la commande à l'aide d'un programme écrit à l'aide de Labview. Enfin, pour mettre en mouvement les fluides, on connecte cette boite à un réservoir comme schématisé en figure 2.14(b).

Pour préparer la condition initiale, on a vu précédemment que nous devons pousser en même temps sur l'eau en entrée et sur l'huile en sortie pour les envoyer vers une sortie poubelle. Pour éviter de piéger des bulles d'air lors de cette étape,



(a) Photo de la boite de pression.



(b) Réservoir de fluide. L'air sous pression permet de mettre en mouvement le fluide contenu dans le réservoir.

FIGURE 2.14 – Outils permettant de contrôler les fluides en pression contrôlée.

on commence par injecter en pression contrôlée à la fois l'huile et l'eau, on passe ensuite le contrôle de l'eau en débit à partir du moment où les deux fluides sortent par la poubelle. Pour faire ce changement, on rajoute en amont du dispositif une vanne deux voies possédant quatre sorties.

L'ensemble de ce dispositif de contrôle des fluides est schématisé sur la figure 2.15.

2.7.3 Tube d'injection

Pour connecter les réservoirs de fluides à la puce micro-fluidique, des sociétés proposent toute une variété de tubes. Pour choisir lequel est le plus approprié, il faut regarder les contraintes imposées par l'expérience. Dans notre cas, la pression sera élevée, on doit donc prendre des tubes suffisamment rigides pour ne pas qu'ils se déforment. Le choix du diamètre du tube est lui un compromis entre une taille ni trop grande pour ne pas avoir de volume mort trop important, ni trop faible pour ne pas avoir une résistance hydrodynamique trop grande comme expliqué précédemment. On a choisi pour notre expérience un diamètre de 500 μm.

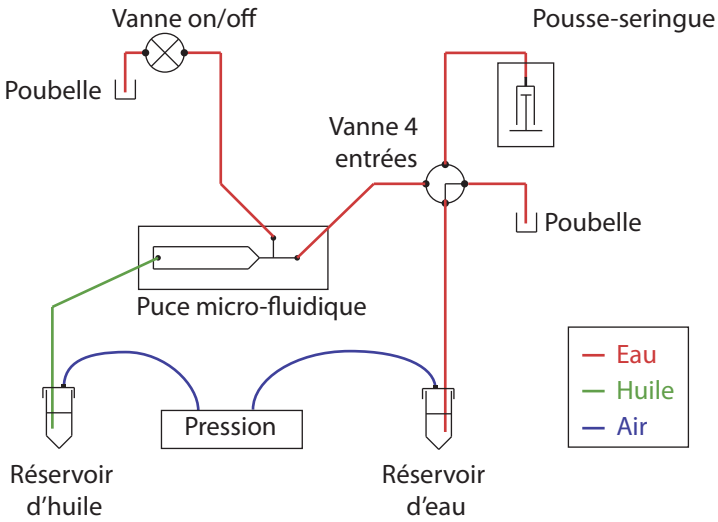


FIGURE 2.15 – Schéma de contrôle des fluides dans l'expérience.

✓ **Contrôle des écoulements**

2.7.4 Choix des fluides

Le choix des fluides est basé essentiellement sur la physique du problème. Dans notre cas, on veut réaliser des expériences d'imbibition des fluides visqueux.

Pour répondre aux besoins sur les conditions de mouillage et du rapport de viscosité, notre choix s'est porté sur l'utilisation de l'eau pour le fluide mouillant et sur des huiles silicones pour les fluides visqueux.

Les huiles silicones nous permettent de changer le rapport de viscosité entre les fluides en gardant identiques les autres paramètres physiques, notamment la tension de surface avec l'eau [1]. De plus, on a pu voir que la technique de traitement de surface permet de changer uniquement l'angle de contact de l'eau dans de l'huile silicone sans modifier la tension de surface entre les fluides. Ce choix de fluide nous permet ainsi de modifier indépendamment nos différents paramètres.

On a également ajouté un colorant alimentaire dans l'eau afin de réaliser des mesures d'absorption dans le canal comme on le verra par la suite. Ce colorant a un effet de tensio-actif dans l'eau et favorise donc le mouillage de l'eau sur les parois. Cet effet va dans le sens de l'expérience, il ne posera donc pas de problème pour nous.

2.7.5 Conclusion

La puce micro-fluidique associée aux éléments de contrôle des fluides clôturent la création du dispositif expérimental. On obtient ainsi un montage qui permet de jouer indépendamment sur les différents paramètres de contrôle que sont :

- la géométrie des canaux,
- la vitesse d'injection,
- le rapport de viscosité entre les fluides,
- l'angle de contact de l'eau.

Pour exploiter ce montage, il nous faut maintenant ajouter un système d'acquisition de données.

2.8 Système d'acquisition

2.8.1 Objectif

Le système d'acquisition a pour objectif d'enregistrer les images de la zone d'observation afin de pouvoir les traiter par la suite. De plus, au cours de nos expériences, des films d'eau d'épaisseur inférieure à celle du canal se développent et on veut pouvoir mesurer leurs épaisseurs. Pour cela, on a ajouté un colorant alimentaire dans l'eau afin d'utiliser une méthode d'absorption basée sur la loi de Beer-Lambert.

L'objectif du système d'acquisition d'image est donc double :

- il doit être capable d'enregistrer l'ensemble de la chambre d'observation de taille 45×15 mm tout en permettant de visualiser les écoulements à l'échelle d'un pore dont la dimension caractéristique est de $80\,\mu$m,
- il doit permettre la mesure des épaisseurs de films minces dont l'épaisseur varie du micron jusqu'à la taille du canal.

2.8.2 Optique de visualisation

Le premier de ces objectifs conditionne le choix de l'optique du système. Ainsi, l'utilisation d'un microscope permettant une très bonne observation microscopique, n'est ici pas envisageable car on ne pourra pas avoir des champs d'observation suffisamment larges. Le choix d'un stéréo-microscope commercial, plus adapté grâce à un champ d'observation plus large pouvant atteindre 45 mm, permettra tout juste d'observer la chambre. L'utilisation du bord du champ d'observation n'est cependant pas une bonne idée car c'est à cet endroit que les aberrations géométriques et chromatiques de l'optique sont les plus prononcées .

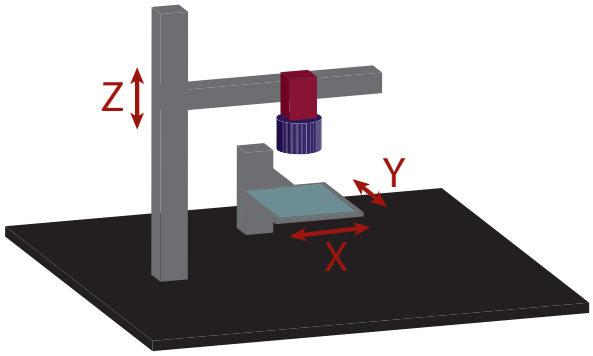


FIGURE 2.16 – Schéma du système de visualisation permettant de se déplacer dans les trois directions.

Pour ne pas avoir de problème avec le champ d'observation, on a choisi de fixer

directement sur une caméra un objectif macro de photographie. L'ensemble est alors monté sur un support permettant la translation suivant l'axe vertical (Z). Le dispositif micro-fluidique est fixé sur une platine permettant les translations dans le plan du champ d'observation (plan XY). La figure 2.16 montre un schéma du système de visualisation.

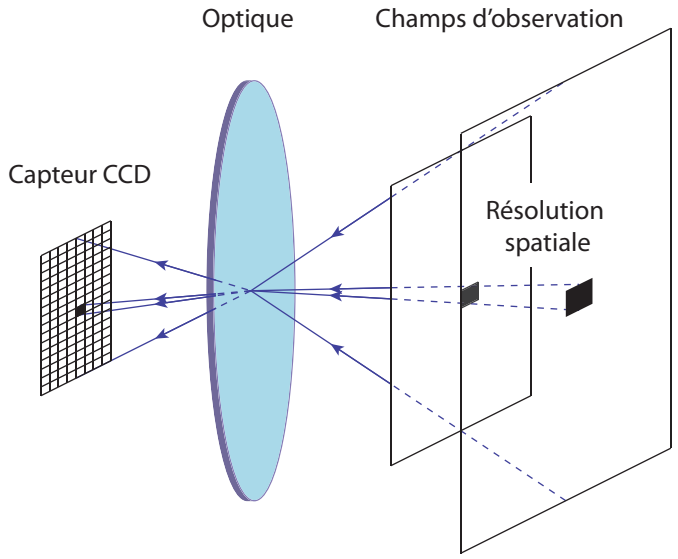


FIGURE 2.17 – Schéma du parcours de la lumière. Le champ d'observation est donné par la taille du capteur et la distance à l'optique. La résolution spatiale ne dépend que de la taille des pixels.

Ce choix permet de faire varier la taille du champs d'observation en variant la distance entre le dispositif et l'objectif dans la limite de focalisation de ce dernier comme schématisé en figure 2.17. On choisit ainsi un objectif macro à focale fixe de 60 mm de chez NIKON (NIKON 60mm Micro Nikkor f/2.8G ED AF-S [2]), le choix de la caméra sera lui détaillé plus loin. On obtient des champs d'observation allant de la taille du capteur jusqu'à 133×100 mm pour des distances d'observation variant de 20 cm à environ 50 cm.

On comprend également avec la figure 2.17 que pour un champ d'observation donné, la résolution spatiale est directement liée à la taille des pixels du capteur de la caméra. Ainsi, pour combiner à la fois un champ d'observation large et une résolution spatiale fine, il faut choisir un capteur de caméra de résolution élevée avec une taille de pixels faibles.

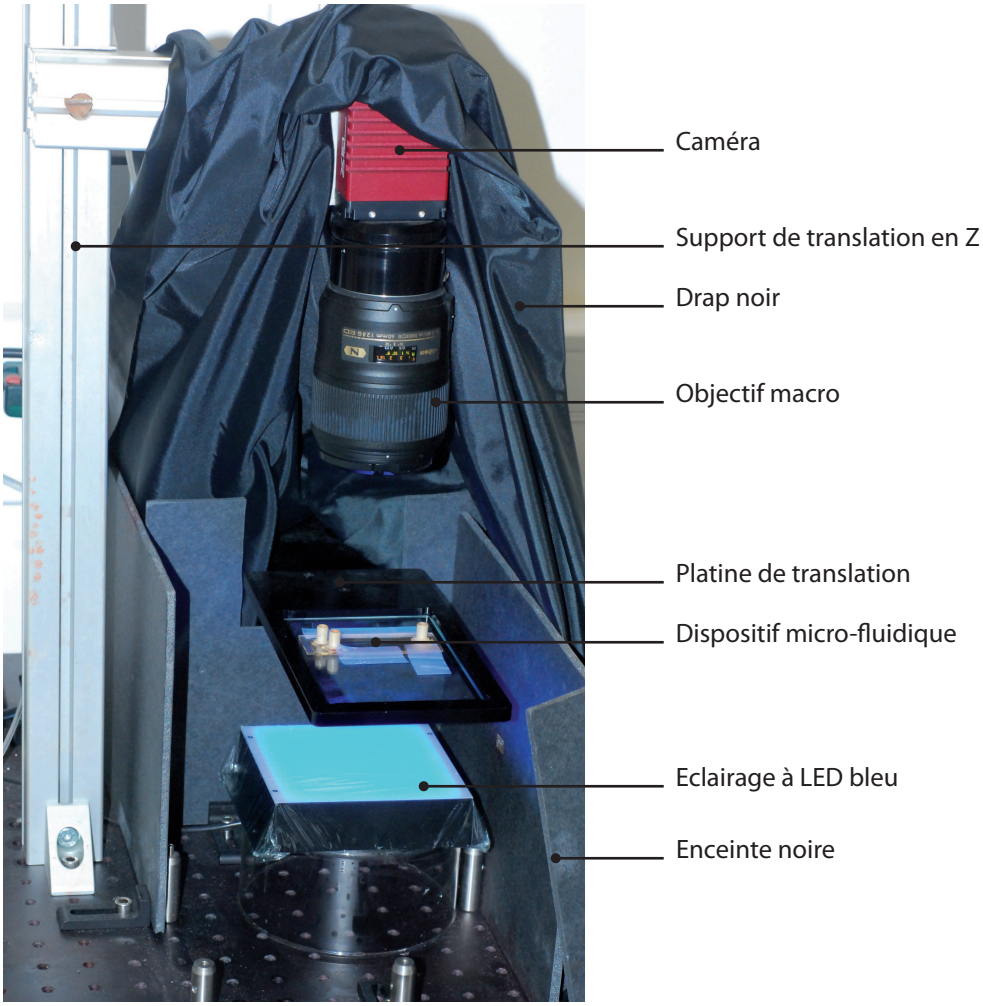


FIGURE 2.18 – Photographie montrant le système d'acquisition d'images.

2.8.3 Choix de l'éclairage

Pour mesurer les épaisseurs de film d'eau, on a choisi d'utiliser une méthode d'absorption basée sur la loi de Beer-Lambert. Celle-ci relie le rapport de l'intensité transmise sur l'intensité initiale à l'absorptivité molaire (ϵ), la concentration (c) et l'épaisseur traversée (h) de la solution à mesurer par la relation :

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\epsilon c h}$$

La précision sur la mesure de h est donc directement liée à la qualité de la mesure du rapport $\frac{I}{I_0}$. On comprend donc l'importance de l'éclairage dans notre

expérience qui doit être parfaitement contrôlée.

On choisit d'utiliser un éclairage à LED qui est aujourd'hui une des meilleurs solutions en terme de stabilité et d'uniformité pour de grandes surfaces à éclairer. Notre choix s'est d'abord porté sur une table lumineuse commerciale (Kaiser Slimlite [3]) éclairant en lumière blanche dont la surface d'éclairage est de 10×12.5 cm.

Le choix de la lumière blanche n'est pas optimale pour deux raisons : la première est que la loi de Beer-Lambert est valable dans le cas mono-chromatique, l'absorptivité molaire dépendant fortement de la longueur d'onde utilisée. La seconde est que la caméra présente une fonction de réponse qui dépend de la longueur d'onde de la lumière captée. Pour résoudre ces problèmes, on change d'éclairage pour une lampe à LED bleu (Alliance Vision Direct BackLight MDLB-CB100) dont le spectre d'émission est beaucoup plus mono-chromatique [4] et de surface d'éclairage 10×10 cm. La couleur bleu est choisie de sorte à maximiser l'absorptivité molaire du colorant et ainsi obtenir un meilleur contraste. Une autre solution envisageable est de placer un filtre entre l'objectif et la caméra. Ce choix semble à postériori plus efficace car ces filtres sont bien plus sélectifs sur la longueur d'onde que ne l'est l'éclairage.

Pour éviter que l'éclairage extérieur ne perturbe les mesures, on place l'expérience dans une enceinte noire. La figure 2.18 montre une photo du montage optique complet avec l'éclairage à LED bleu.

2.8.4 Caméra d'acquisition

Pour choisir la caméra, on a vu dans la section optique que le capteur photographique doit posséder une résolution élevée tout en ayant une taille de pixel la plus petite possible. En pratique, on choisit un capteur de 8 Mpx avec une taille de pixel de 5.5 μm. Pour une largeur de zone d'observation de 40 mm, on obtient une précision de 12 μm/pxl ce qui est suffisant pour observer à l'échelle des pores de dimension 80 μm.

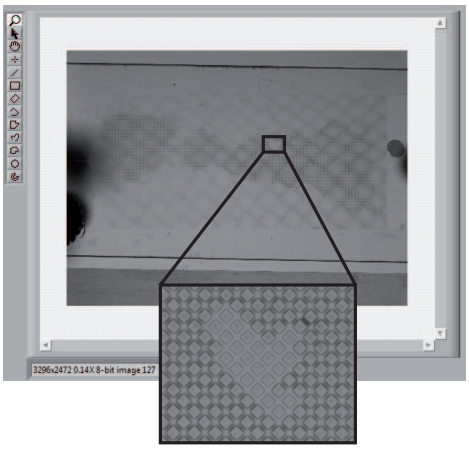
Le second point à prendre en compte pour le choix de la caméra concerne la sensibilité du capteur. En effet, on a pour objectif de mesurer des épaisseurs de films par la mesure de l'intensité lumineuse. On doit maximiser la précision sur cette dernière afin d'être le plus précis possible sur celle des épaisseurs. En pratique, on choisira un capteur de sensibilité pouvant aller jusqu'à 14 bit.

Le dernier point pour sélectionner la caméra concerne le nombre d'images par seconde (fps) qu'elle peut acquérir. En effet ce dernier doit être suffisamment élevé pour pouvoir capter les mouvements des fluides. On choisit comme critère de pouvoir observer le déplacement du fluide d'un pixel, ici de 12μm. Après plusieurs tests pour mesurer les vitesses des fluides, on obtient que celles-ci ne dépassent pas les 100 μm/s dans la gamme qui nous intéresse, le fps doit donc être supérieur à 9.

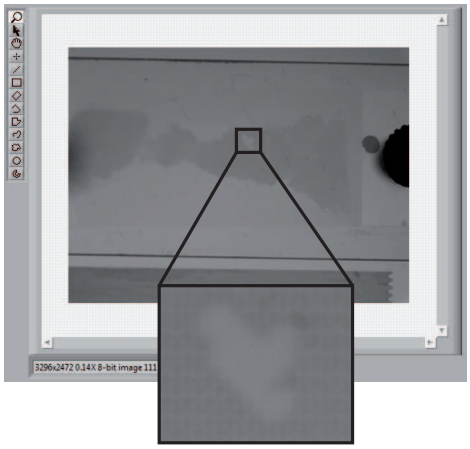
La caméra choisie est une Prosilica GX3300 de Allied Vision Technologies [5] comprenant un capteur CCD de résolution : 3296 × 2472 (8 Mpx), de sensibilité maximale 14 bit et allant jusqu'à un fps de 17 en résolution maximale. Le transfert des images vers l'ordinateur se fait à l'aide de deux ports Ethernet gigabit pouvant délivrer jusqu'à 240 MB/s. Cette caméra répond entièrement aux contraintes précédentes, elle a cependant engendré un nouveau problème d'ordre informatique.

En effet, lorsque l'on utilise la caméra en configuration maximale, cette dernière délivre un débit de 240 MB/s. Il n'est alors pas envisageable de stocker plusieurs minutes de films sur la mémoire vive de l'ordinateur avant d'enregistrer sur les disques durs. Pour pallier à ce souci, on a développé sur Labview un programme de contrôle pour la caméra qui permet d'enregistrer les images en "direct to disk". Elles sont ainsi envoyées directement vers le disque dur qui les écrit en temps réel. Un disque dur mécanique classique ne permet pas d'avoir des débits d'écriture aussi rapide, on a alors acheté un disque dur SSD (RevoDrive 3 x2 [6]) permettant d'écrire à ces vitesses.

2.8.5 Méthode de mise au point



(a) La présence de la figure de Moirée indique que la mise au point est effectuée.



(b) Pas de figure de Moirée, la mise au point n'est pas bonne.

FIGURE 2.19 – Captures d'écrans lors de la mise au point sur le dispositif microfluidique.

L'objectif utilisé a une faible profondeur de champ qui rend difficile l'obtention d'une image nette à l'échelle des pores sur l'ensemble de la zone d'observation. Il faut pour cela assurer un parallélisme parfait entre le capteur CCD de la ca-

méra et le dispositif micro-fluidique. En pratique, la méthode mise en place utilise les figures de moiré [7] résultant de la nature discrète et périodique du réseau d'obstacle et des pixels de l'écran d'ordinateur.

On montre sur la figure 2.19 deux captures d'écrans réalisées lors de la mise au point sur un dispositif de type poreux. On observe en figure 2.19(a) la présence d'un quadrillage dont la période est très grande devant celle du poreux. L'apparition de la figure de moiré homogène sur l'intégralité du dispositif indique que la mise au point est effectuée comme l'atteste l'image zoomée numériquement. A l'inverse, le quadrillage n'apparait pas sur l'image de la figure 2.19(b) et le zoom numérique montre que la mise au point n'est pas effectuée.

On a ainsi un critère très facile et rapide à utiliser pour s'assurer à la fois de la mise au point et de l'horizontalité du dispositif.

✓ **Système de visualisation et d'acquisition**

2.8.6 Conclusion

Cette dernière partie "visualisation" termine la mise au point de l'expérience. La figure 2.20 montre une photo du montage complet.

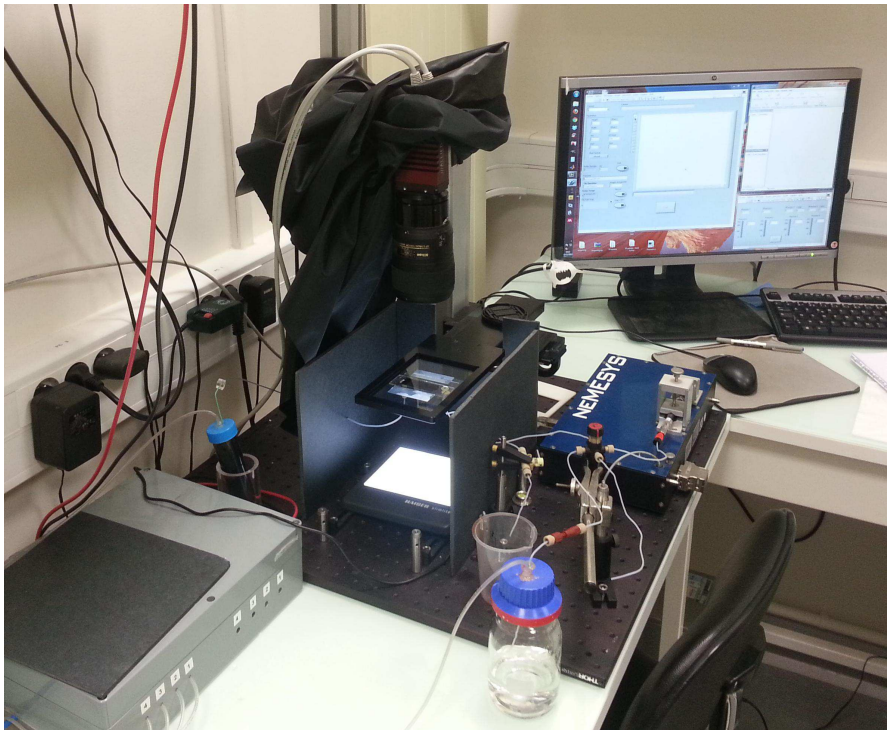


FIGURE 2.20 – Photographie montrant le dispositif expérimental.

2.9 Analyse d'image

Pour terminer ce chapitre consacré à la fabrication et à l'instrumentation, on détaille maintenant la méthode de mesure par absorption utilisée pour mesurer les épaisseurs d'eau.

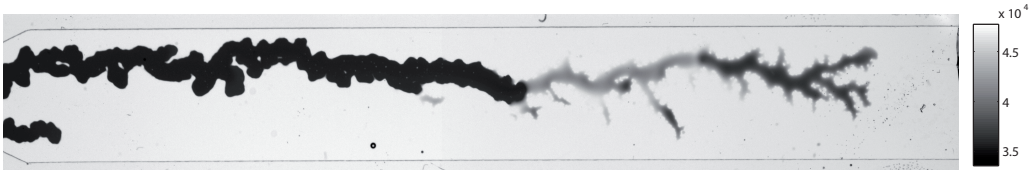
2.9.1 Objectifs

Dans la suite, on détaille les différentes étapes qui nous permettent de passer d'une image en niveau de gris (figure 2.21a) en une cartographie des niveaux de hauteur d'eau (figure 2.21b).

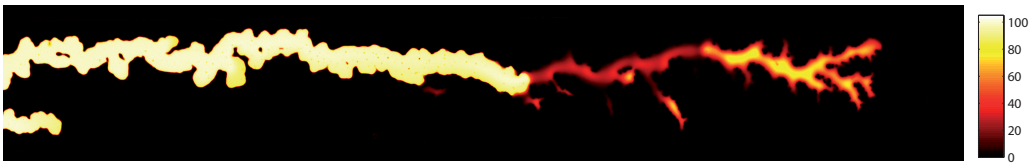
2.9.2 Utilisation pratique de la loi de Beer-Lambert

Le dispositif sur lequel on applique la loi de Beer-Lambert est schématisé en figure 2.22. Si on appel A_i l'absorbance du milieu i, la relation entre l'intensité initiale et transmise est alors :

$$I = I_0 \times A_{lame} \times A_{support} \times A_{gap} \times A_{fluide} \tag{2.1}$$



(a) Image brute du canal en niveau de gris.



(b) Cartographie des hauteurs d'eau obtenuent à l'aide de la loi de Beer-Lambert.

FIGURE 2.21 – Images avant et après le processus de traitement d'images.

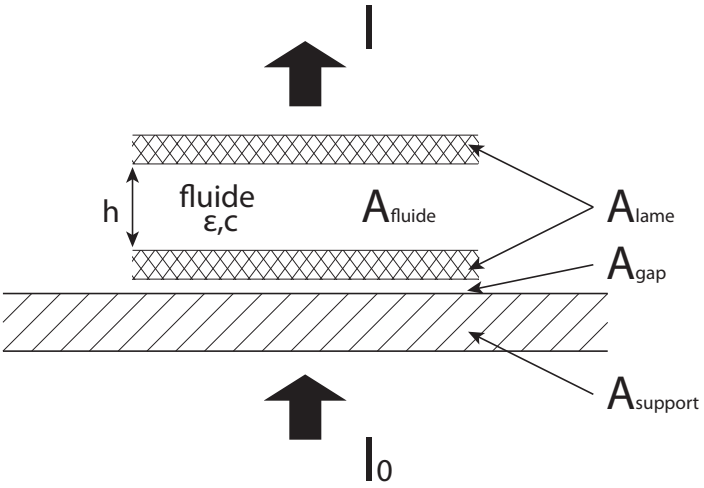


FIGURE 2.22 – Schéma du dispositif sur lequel on applique la loi de Beer-Lambert.

avec A_{fluide} donné par la relation de Beer-Lambert et $A_{support}$ et A_{lame} sont supposés constant. A_{gap} correspond à l'espace entre le dispositif et le support, on choisit de remplir cet espace avec de l'hexadécane pour une raison qui sera détaillée ultérieurement.

De plus, la caméra enregistre 2^{14} niveau de gris (14 bit) alors que l'encodage des images est réalisé sur 2^16 valeurs (16 bit). Afin de prendre en compte cela, on mesure la valeur d'intensité lorsque la caméra est saturée, celle-ci est de $I_{sat} = 49151$ et on en déduit la valeur pour laquelle il n'y a pas de lumière (intensité du noir) : $I_{noir} = I_{sat} - 2^{14} = 32767$. La raison pour laquelle on ne mesure pas directement le noir est que le bruit électronique rend cette mesure beaucoup moins précise que pour la valeur de la saturation. En ajoutant l'effet du codage informatique à la relation précédente, on obtient :

$$I = I_{noir} + I_0 \times A_{lame} \times A_{support} \times A_{gap} \times A_{fluide} \tag{2.2}$$

Le terme qui nous intéresse est uniquement A_{fluide}, on doit donc l'isoler. Pour y arriver, on réalise la même mesure d'intensité dans un canal identique mais contenant un autre fluide. On fait le rapport des ces deux intensités et on obtient la relation :

$$\frac{I_1 - I_{noir}}{I_2 - I_{noir}} = \frac{A_{fluide_1}}{A_{fluide_2}} \tag{2.3}$$

Lors de l'expérience, on commence toujours par remplir le canal d'observation en huile silicone qui est transparente. On prend ainsi une image du canal rempli d'huile comme référence en supposant que son absorbance est de 1.

2.9.3 Calibration de la solution

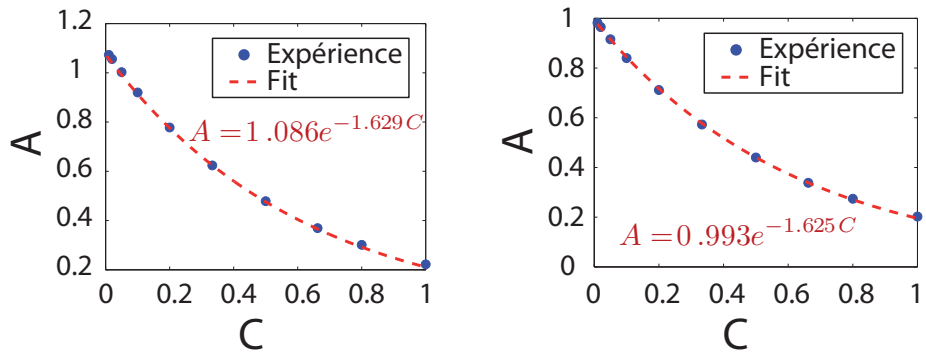
Comme on vient de le montrer, la mesure de l'intensité nous donne accès à l'absorbance de la solution : $A_{fluide} = e^{-\epsilon h c}$. Pour accéder à h, il nous faut connaitre le produit ϵc. Pour cela, on calibre l'expérience en mesurant l'absorbance de la solution d'eau pour différentes valeurs de concentration en colorant dans un canal de hauteur connue ($h_0 = 100\,\mu$m). On normalise la concentration par celle utilisée lors des expériences (c_m) :

$$A_{eau} = A_{ref}\, e^{-\epsilon h_0 c_m \frac{c}{c_m}} = \alpha\, e^{-\beta C} \tag{2.4}$$

On réalise cette calibration pour deux références sur l'intensité, dans le premier cas un canal à vide et un gap constitué d'air (figure 2.23(a)) et dans le second un canal contenant de l'eau pure avec un gap rempli d'hexadécane (figure 2.23(b)).

Ces deux calibrations donnent des coefficients pour l'exposant de :

$$\begin{aligned} 1.624 < \quad & \beta_{vide} \quad < 1.634 \\ 1.620 < \quad & \beta_{eau} \quad < 1.630 \end{aligned}$$



(a) Le fluide de référence est de l'air. Le gap est également rempli d'air.

(b) Le fluide de référence est de l'eau sans colorant. Le gap est rempli d'hexadécane.

FIGURE 2.23 – Courbes de calibration de la loi de Beer-Lambert utilisant deux types de références.

Pour la suite des expériences, on utilise l'huile silicone comme référence qu'on prend proche de l'eau, on a ainsi $\beta = 1.625$. De β on déduit le coefficient ϵc_m :

$$\epsilon c_m = \frac{\beta}{h_0} = 1.625\,10^{-2}\,\mu\text{m}^{-1}$$

Il est également intéressant de noter que pour la référence en canal vide, le coefficient devant l'exponentiel est supérieur à 1. Cela implique que la solution à basse concentration laisse passer plus de lumière que lorsque le canal est rempli d'air. Ceci s'explique par le passage de la lumière à travers les interfaces entre des milieux d'indices différents. Ces interfaces font office de dioptre entre les deux milieux et l'intensité transmise est directement liée à l'inverse de la différence des indices entre ces milieux. C'est pour cette raison que l'on remplit le "gap" avec de l'hexadécane lors des expériences pour perdre le moins d'intensité possible.

Pour la calibration avec de l'eau (fluide transparent), l'ajustement théorique donne un coefficient devant l'intégral compris entre 0.987 et 0.999, très proche de la valeur théorique d'un fluide transparent (1). Pour la suite des expériences on choisit une valeur pour l'huile silicone de 1.

Ces calibrations permettent ainsi de relier l'épaisseur des films d'eau à la mesure des intensités par la relation :

$$h = -\frac{1}{\epsilon c_m} \exp\left(\frac{I_{eau} - I_{noir}}{I_{oil} - I_{noir}}\right) \tag{2.5}$$

On trace cette relation (figure 2.24) pour l'ensemble des valeurs d'intensité de la caméra. La gamme de hauteurs utiles (de 1 à 100 μm) correspond à plus de

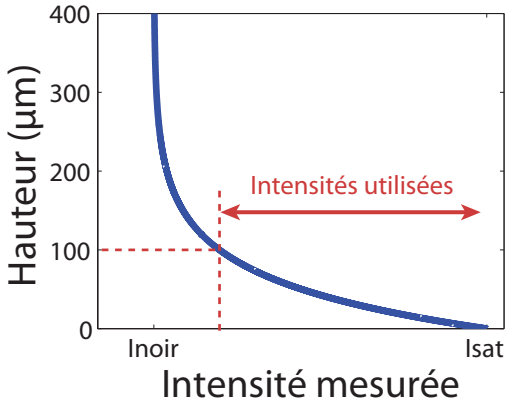


FIGURE 2.24 – Hauteur mesurée en fonction de l'intensité du pixel de l'image.

80 % des valeurs d'intensités possibles, on exploite ainsi très bien notre caméra. De plus, la courbe est très plate sur cette gamme d'intensité, on a ainsi une très bonne sensibilité sur la mesure de h.

2.9.4 Correction spatiale

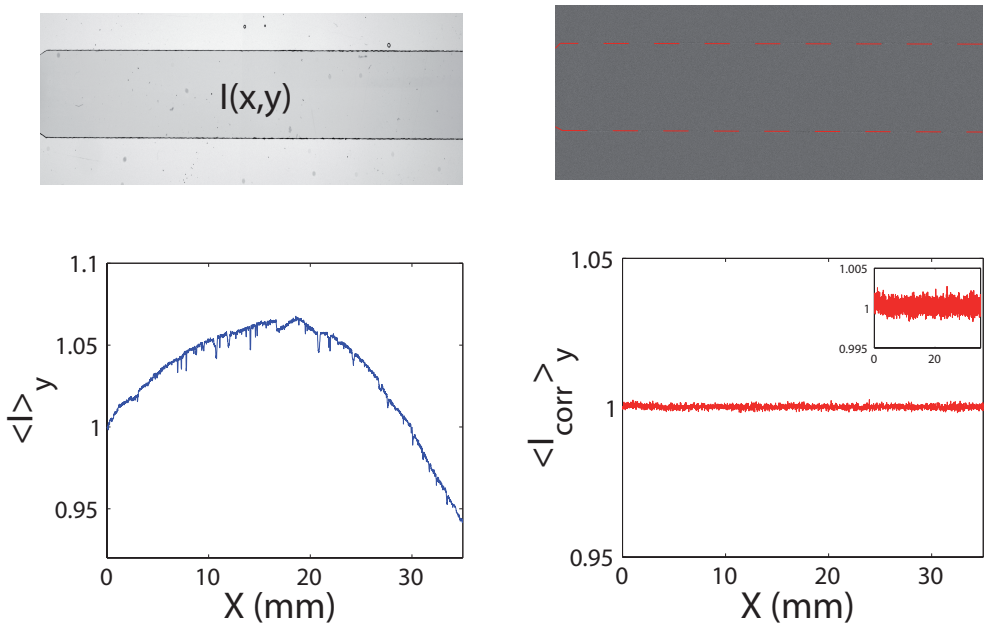
On trace sur la figure 2.25(a) l'intensité moyennée sur Y dans la zone d'observation en fonction de X. On peut voir que l'éclairage n'est pas homogène spatialement. Pour corriger cela, la méthode usuelle est de diviser les images par une image référence de l'éclairage.

Pour la mesure des épaisseurs de films, on divise déjà les images par l'image du canal rempli d'huile silicone, la correction est donc effectuée automatiquement dans l'étape d'analyse. On montre en figure 2.25(b) le résultat après correction, la variation spatiale résiduelle est de l'ordre de 2 ‰. L'erreur que l'on commet alors est de : $\Delta h = \frac{1}{\epsilon c_m}\frac{\Delta I}{I} \approx 1.2\,10^{-1}\,\mu$m ce qui est négligeable devant les épaisseurs que l'on souhaite mesurer.

2.9.5 Correction temporelle

On trace maintenant pour l'image corrigée spatialement, la valeur moyenne de l'intensité dans la zone d'observation en fonction du temps 2.26(b). On observe que cette valeur fluctue de façon importante. Pour corriger cette déviation, on ramène la valeur moyenne d'intensité de chaque image à la même valeur.

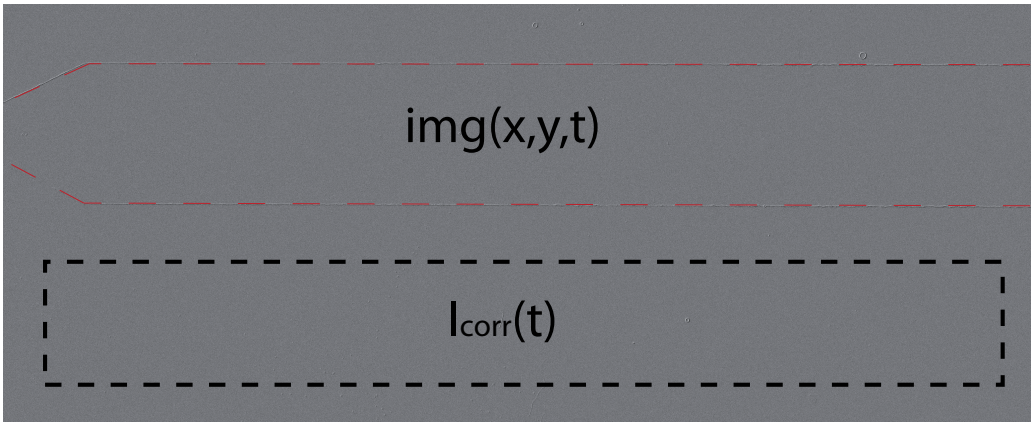
En pratique, on mesure pour chaque image corrigée spatialement, l'intensité moyenne $I_{corr}\,(t)$ dans une zone en dehors du canal qui ne doit pas varier au cours de l'expérience (voir figure 2.26(a)). On corrige ensuite la valeur d'intensité



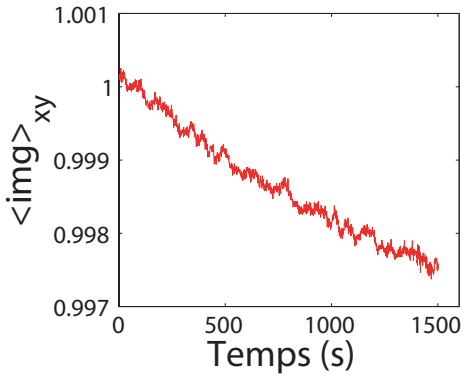
(a) *En haut* : Image avant correction spatiale. *En bas* : variation spatiale de l'intensité moyennée sur y avant correction. On a une variation d'environ 10 %.

(b) *En haut* : Image après correction spatiale, le contour du canal est surligné en rouge. *En bas* : variation spatiale de l'intensité moyennée sur y après correction. *En inset* : la variation résiduelle et de l'ordre de 2 ‰.

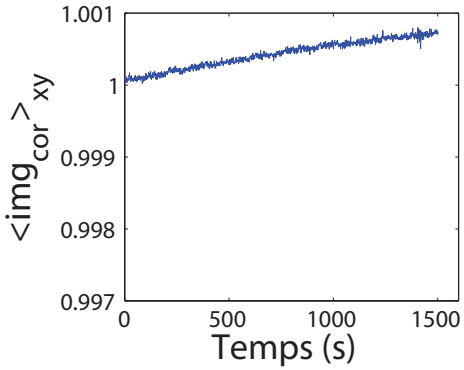
FIGURE 2.25 – Méthode de correction pour la variation spatiale de l'intensité.



(a) Image corrigée spatialement. On mesure l'intensité moyenne dans une zone en dehors du canal $I_{corr}(t)$ pour corriger la variation temporelle de l'intensité de l'ensemble de l'image. Le contour du canal est surligné en rouge pour améliorer la visibilité.



(b) Variation temporelle de l'intensité moyenne dans le canal avant correction



(c) Variation temporelle de l'intensité moyenne dans le canal après correction. La variation a diminué d'un facteur 3.

FIGURE 2.26 – Méthode de correction pour la variation temporelle de l'intensité.

$(img\,(x, y, t))$ de tous les pixels de l'image par cette valeur :

$$img_{cor}\,(x, y, t) = \frac{1}{I_{corr}\,(t)} \times img\,(x, y, t)$$

En mesurant maintenant la valeur moyenne dans la zone d'observation, on obtient le graphique de la figure 2.26(c). La variation temporelle après correction est divisée par un facteur 3 et la variation résiduelle est inférieur à 1 ‰. On peut ainsi négliger l'erreur sur la mesure des épaisseurs comme pour la variation spatiale.

2.9.6 Benchmark et précision

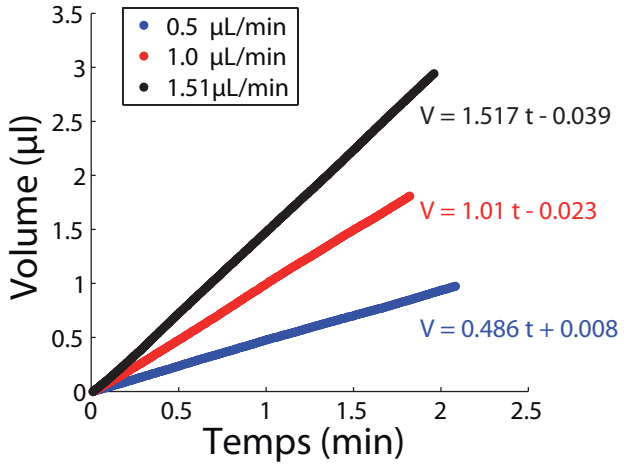


FIGURE 2.27 – Courbes du volume d'eau mesuré dans le canal en fonction du temps pour trois débits de pousse-seringue. Les débits mesurés sont très proches de ceux imposés.

Pour valider cette mesure d'absorption, on calcule le débit en eau à partir de la mesure des épaisseurs et on le compare au débit du pousse-seringue. La figure 2.27 représente le volume d'eau mesuré dans le canal en fonction du temps pour des débits au pousse-seringue de 0.5, 1 et 1.51 μL/min. La pente de ces droites nous donne directement le débit mesuré. On a un très bon accord entre les deux, avec des erreurs relatives de 2.8%,1.2% et 0.6% pour les trois débits.

2.10 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons expliqué comment réaliser une expérience de micro-fluidique dans le but de répondre à un besoin scientifique précis. Le dispositif expérimental auquel on a aboutit répond parfaitement au cahier des charges pré-établi. La grande force de ce montage est que tous les éléments le constituant sont indépendants les uns des autres, on peut ainsi le transformer à souhait pour répondre à chaque nouveau besoin ou problème auquel on est confronté.

On a également présenté une méthode de mesure d'épaisseur de films utilisant la loi de Beer-Lambert. Cette méthode permet de mesurer des épaisseurs de l'ordre du micron sur l'ensemble du canal avec une précision de quelques pourcents. De plus, l'étape de calcul étant très simple, le temps de calcul informatique pour traiter une image reste très court (inférieur à 60ms pour nous), on peut ainsi envisager une visualisation en direct du champ de hauteur.

La mesure des épaisseurs sur l'ensemble de nos images nous donne accès à tout un ensemble de paramètres physiques et statistiques que nous allons exploiter dans les chapitres suivants sur différentes expériences d'imbibitions.

CHAPITRE 3

Expérience de Saffman-Taylor revisitée : dynamique d'imbibition et transition d'entrainement de liquides

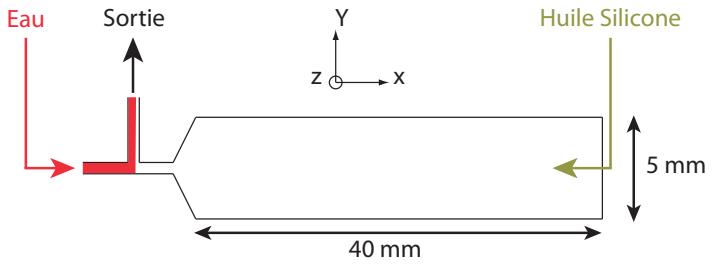


FIGURE 3.1 – Motif et dimension de la cellule de Hele-Shaw. La hauteur du canal est de $H = 100\,\mu$m.

3.1 Introduction

Les expériences présentées ici ont pour objet d'étudier la transition d'entraînement dans le cas où le fluide mobile est moins visqueux que le fluide en place. Nous nous intéressons particulièrement au cas, très peu étudié dans la littérature, où le fluide mobile mouille préférentiellement les parois du milieu (régime d'imbibition). Pour cela, nous utiliserons les dispositifs micro-fluidiques mis au point dans le chapitre précédent avec une géométrie de type cellule de Hele-Shaw.

Après une présentation des méthodes expérimentales, on rappellera dans un premier temps le cas du drainage pour un rapport de viscosité donné. On retrouvera alors un comportement typique d'instabilité de digitation visqueuse. Dans un second temps, on s'intéressera au cas de l'imbibition, toujours au même rapport de viscosité. On observera alors l'existence d'une transition capillaire entre un état proche d'une digitation de Saffman-Taylor et un second état où le mouillage prend un rôle prépondérant avec le développement de films d'eau le long des parois. Pour mettre en évidence le caractère général de cette transition capillaire, on mesurera la valeur du seuil pour une large gamme de rapport de viscosité puis on tracera le diagramme de phase du système dans le plan nombre capillaire, rapport de viscosité. Enfin, nous utiliserons un modèle théorique basé sur l'équation de Laplace permettant de calculer la forme du ménisque dynamique. Ce modèle permettra de retrouver la transition capillaire entre les deux états ménisques et film mince. On tracera alors un diagramme de phase théorique en accord qualitatif avec celui obtenu lors des expériences.

3.2 Drainage

3.2.1 Protocole expérimental

Afin de réaliser les expériences de ce chapitre, nous utiliserons un dispositif ayant une géométrie de Hele-Shaw fabriqué à l'aide de la méthode par utilisation de surfaces adhésives introduite dans le chapitre 2. Pour ce type de géométrie, la hauteur du canal est choisie plus petite que les autres dimensions. Cela permet, en moyennant l'écoulement suivant l'épaisseur, de le considérer comme étant bidimensionnel. Ici la hauteur du canal est de $H = 100\,\mu$m et la largeur de $W = 5\,$mm, ce qui nous donne un rapport d'aspect de $\epsilon = W/H = 50$.

Les trois seuls paramètres sans dimensions pour ces expériences d'injections biphasiques sont l'angle de contact à l'équilibre θ_e du système eau/huile/surface, le rapport de viscosité entre les deux fluides, $M = \eta_{huile}/\eta_{eau}$ et le nombre capillaire, $Ca = \eta_{eau}U/\gamma$ où η_{eau} est la viscosité de l'eau, U la vitesse de l'eau et γ la tension de surface entre l'eau et l'huile silicone. Les dispositifs micro-fluidiques mis au point au chapitre 2 nous permettent de contrôler indépendamment ces trois paramètres.

3.2.2 Dynamique d'invasion

Dans un premier temps, on étudie le motif d'invasion dans le cas où le dispositif est non-mouillant pour l'eau ($\theta_e = 120°$) et pour un rapport de viscosité fixe ($M = 1000$). La figure 3.2 montre un exemple de déroulement d'expérience. On part initialement d'un front plat, celui-ci se déstabilise rapidement en deux doigts sous l'effet de la digitation visqueuse et d'un phénomène de séparation de pointe [38] dû à la géométrie conique de l'entrée. Puis, un des deux doigts finit par l'emporter sur le second qui s'arrête alors. Le premier doigt se développe finalement seul jusqu'à la sortie du canal. Ce type de dynamique est typique d'une invasion soumise à l'instabilité de Saffman-Taylor [66] et est parfaitement décrit par une dynamique de croissance de front Laplacienne [21, 15, 36, 45]. De plus, la mesure des épaisseurs d'eau, indiquées ici par l'échelle de couleurs, nous montre que les deux doigts occupent l'intégralité de la hauteur du canal. On note également que la formation et le développement des doigts se produisent le long des parois de notre canal, ce qui démontre un mouillage partiel des parois latérales en scotch par la phase aqueuse.

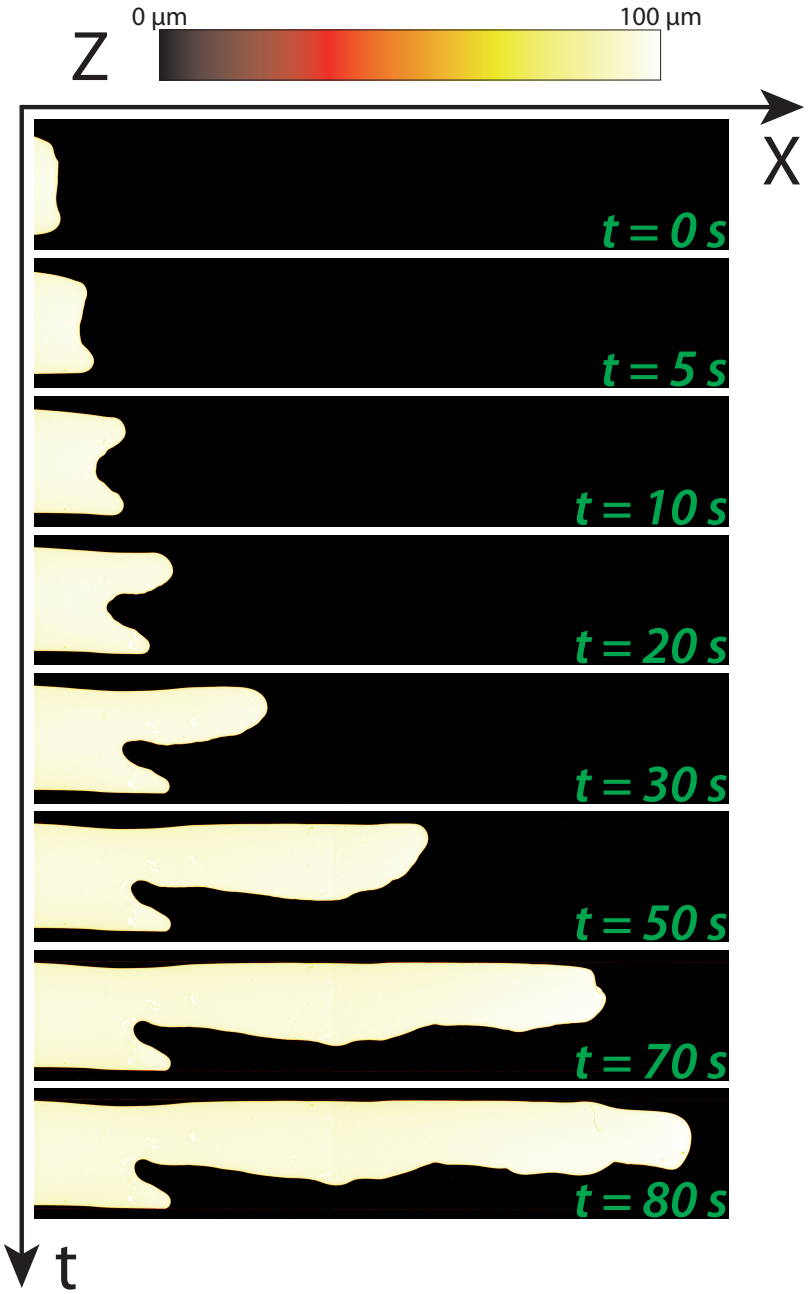


FIGURE 3.2 – Images issues d'une expérience d'invasion en régime de drainage dans une cellule de Hele-Shaw pour $Q = 1.5\,\mu\mathrm{L/min}$, $\theta_e = 120°$ et $M = 1000$. Le niveau de couleur correspond à l'épaisseur d'eau dans le canal. L'eau envahit toute la hauteur du canal.

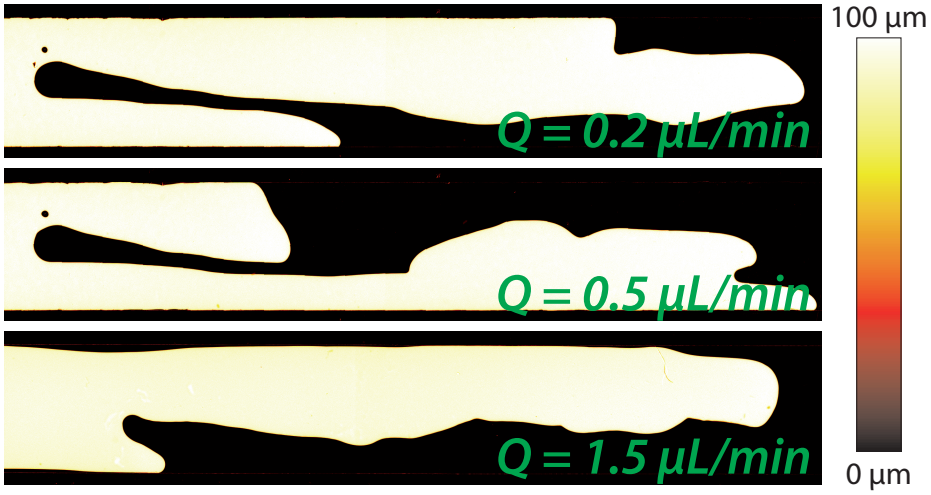


FIGURE 3.3 – Images de l'invasion en régime de drainage ($\theta_e = 120°$) au moment de la sortie de la zone d'observation pour trois débits. Le niveau de couleur correspond à l'épaisseur d'eau dans le canal. L'eau envahit toute la hauteur du canal.

3.2.3 Influence du nombre capillaire

On réalise cette même expérience sur près d'une décade de débits, les dynamiques d'invasion sont alors toutes très semblables, avec toujours la croissance initiale de deux doigts et la propagation d'un seul. Les motifs d'invasion en sortie de la zone d'observation pour trois de ces débits sont montrés en figure 3.3 et sont, comme annoncés, très similaires. Le nombre capillaire étant directement lié au débit d'injection, il n'a donc pas d'impact sur le motif d'invasion de la large gamme de débits testés.

3.3 Imbibition

3.3.1 Dynamique d'invasion

Dans un second temps, on étudie le cas où l'eau mouille les parois du canal ($\theta_e \approx 7°$) en conservant le rapport de viscosité $M = 1000$.

Pour un débit faible ($Q = 0.2\,\mu$L/min), on observe toujours une dynamique de digitation visqueuse (figure 3.4). Le branchement du doigt est cependant bien plus important et sa largeur plus faible que dans le régime de drainage ce qui montre l'impact très important de l'angle de contact sur la dynamique d'avancée. Cette morphologie a également été observée dans la littérature, principalement dans le cas de milieux poreux [72].

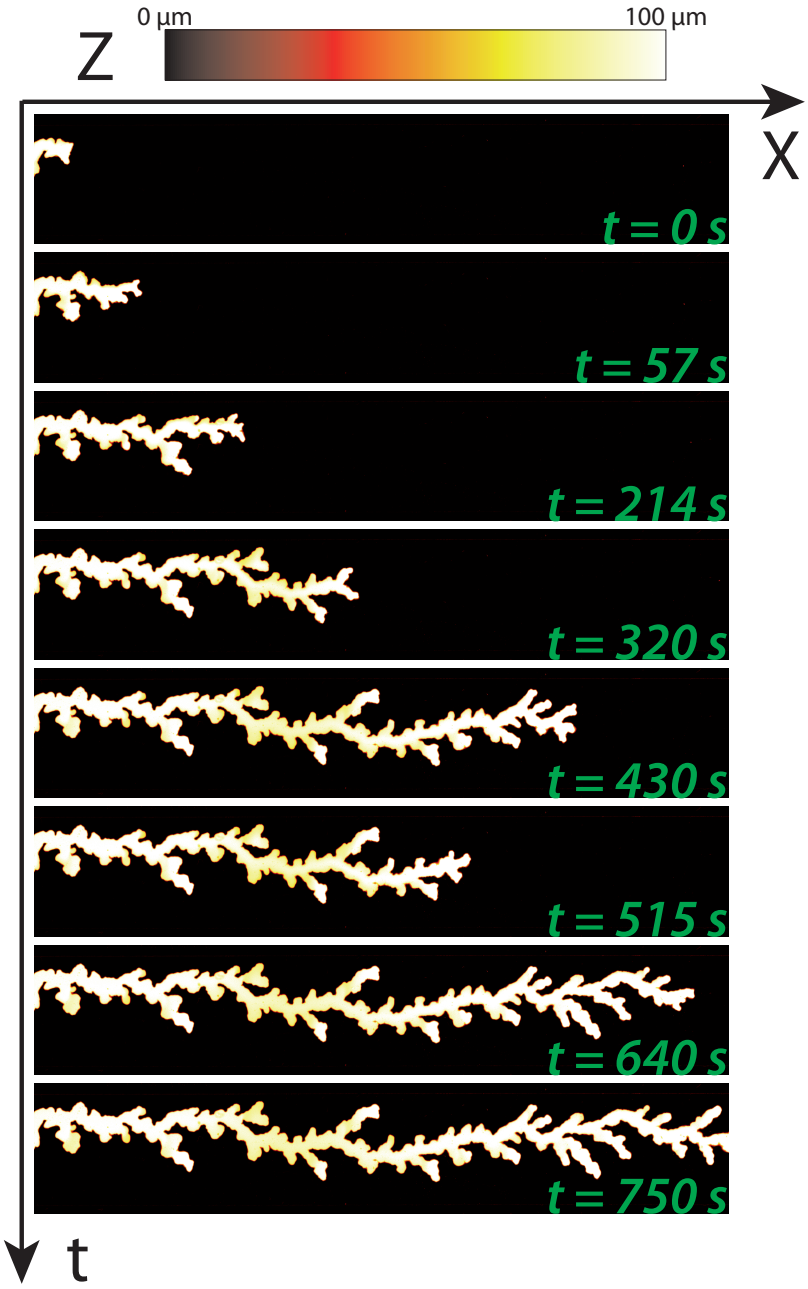


FIGURE 3.4 – Images issues d'une expérience d'invasion en régime d'imbibition dans une cellule de Hele-Shaw pour $Q = 0.2\,\mu$L/min, $\theta_e = 7°$ et $M = 1000$. L'épaisseur d'eau est constante au cours de l'expérience et remplit entièrement la hauteur du canal.

On augmente ensuite le débit ($Q = 0.5\,\mu$L/min), on observe alors une dynamique d'invasion totalement nouvelle (figure 3.5). Dans un premier temps, la dynamique est semblable à celle à faible débit avec un doigt branché remplissant entièrement l'épaisseur du canal. Puis aux alentours de $t = 156.3s$ la morphologie d'invasion change : le doigt devient plus fin et le périmètre beaucoup plus rugueux. De plus, l'épaisseur d'eau devient hétérogène et ne remplit plus l'intégralité de la hauteur du canal : on a un entraînement de films minces d'eau depuis la pointe des doigts. On note également, en aval de la nouvelle forme d'invasion, la présence d'une zone d'épaisseur plus importante correspondant à l'existence d'un bourrelet d'eau. Celui-ci est raccordé au doigt épais (celui remplissant l'intégralité du canal) par un film d'eau d'épaisseur encore plus faible. Enfin, le doigt épais continue lui de progresser à l'intérieur du canal à une vitesse plus faible et en suivant le chemin déjà exploré par les films minces.

Pour $Q \gg 0.5\,\mu$L/min (figure 3.6), on observe immédiatement l'apparition d'une dynamique de film mince semblable à la précédente. Le changement majeur est que l'on a ici la croissance simultanée de plusieurs films minces ayant des morphologies similaires à celles pour $Q = 0.5\mu$L/min. Ces différents films s'interconnectent, formant alors un motif d'invasion très complexe. Enfin, on retrouve également la présence de bourrelets en aval des films minces et le doigt plein avance toujours à une vitesse plus faible en suivant un chemin déjà parcouru par les films minces. Il piège cependant des zones d'huile au cours de son avancée du fait de l'interconnexion du motif d'invasion.

Ces trois expériences mettent en évidence l'existence d'un débit seuil Q^* au delà duquel la dynamique d'invasion change depuis un régime de digitation visqueuse vers la création de films minces d'eau.

3.3.2 Caractérisation des hétérogénéités d'épaisseurs

Afin de regarder plus en détail le changement de dynamique d'invasion, on s'intéresse dans un premier temps à l'évolution temporelle des hauteurs d'eau. Pour cela, on calcule la moyenne suivant y de l'épaisseur d'eau dans tout le canal, $< h\,(x,t) >_y$, puis on la trace en fonction du temps. Pour des débits de $Q = 0.2$, 0.5 et $1.5\,\mu$L/min, on obtient les spatio-temporels représentés en figure 3.7 où le niveau de couleur indique l'épaisseur moyenne d'eau en μm.

Pour $Q < Q^*$ (figure 3.7(a)), le spatio-temporel montre une seule épaisseur se propageant à l'intérieur du canal. Cette hauteur est d'environ $100\,\mu$m ce qui correspond bien à la hauteur du canal. On note également que le doigt se propage avec une vitesse constante d'environ $30\,\mu$m/s tout au long du canal.

Pour $Q \sim Q^*$ (figure 3.7(b)), on observe aux temps courts la même phénoménologie que sous le seuil avec une vitesse d'environ $75\,\mu$m/s. Au delà de $t = 160\,$s, deux nouvelles zones d'épaisseurs se développent dans le canal. Une première, en

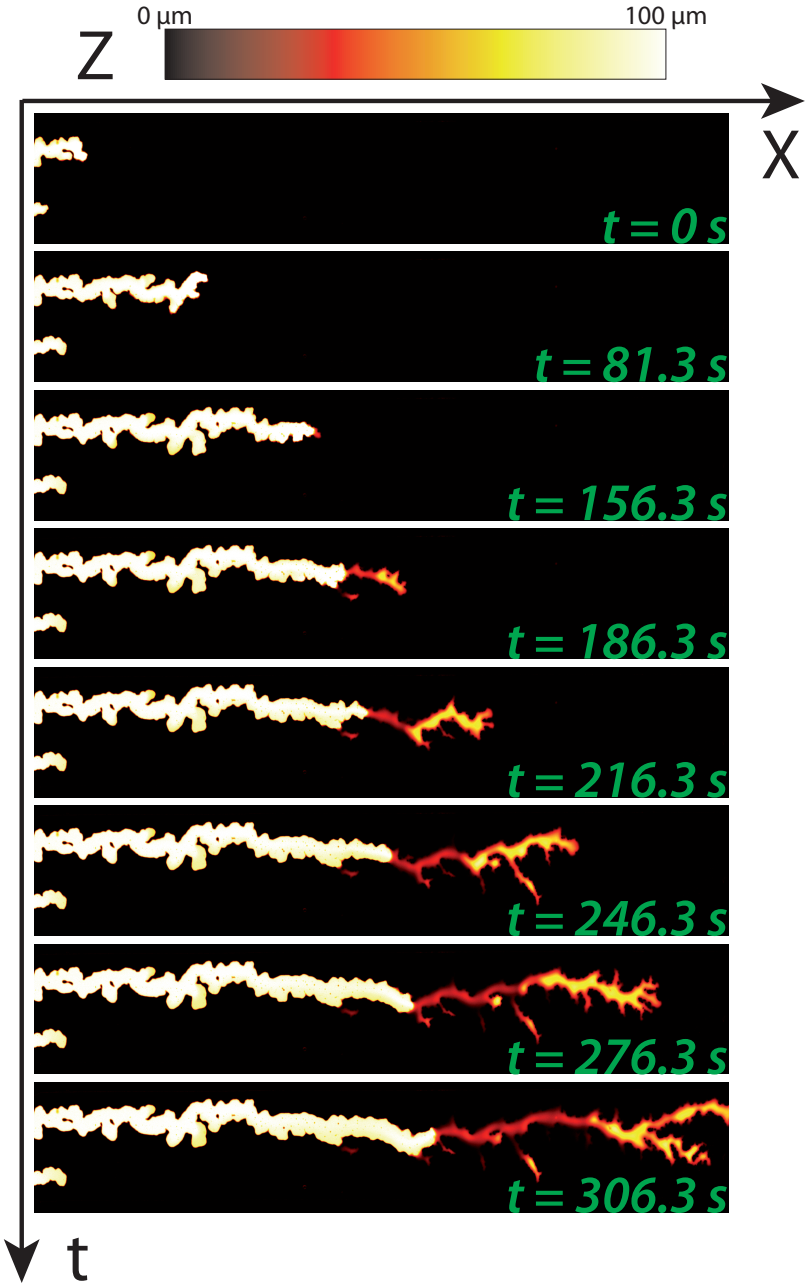


FIGURE 3.5 – Images issues d'une expérience d'invasion en régime d'imbibition dans une cellule de Hele-Shaw pour $Q = 0.5\,\mu\mathrm{L/min}$, $\theta_e = 7°$ et $M = 1000$. Le motif d'invasion change à partir de $t = 156.3\,\mathrm{s}$ et un film d'eau d'épaisseur plus faible que la hauteur du canal se propage.

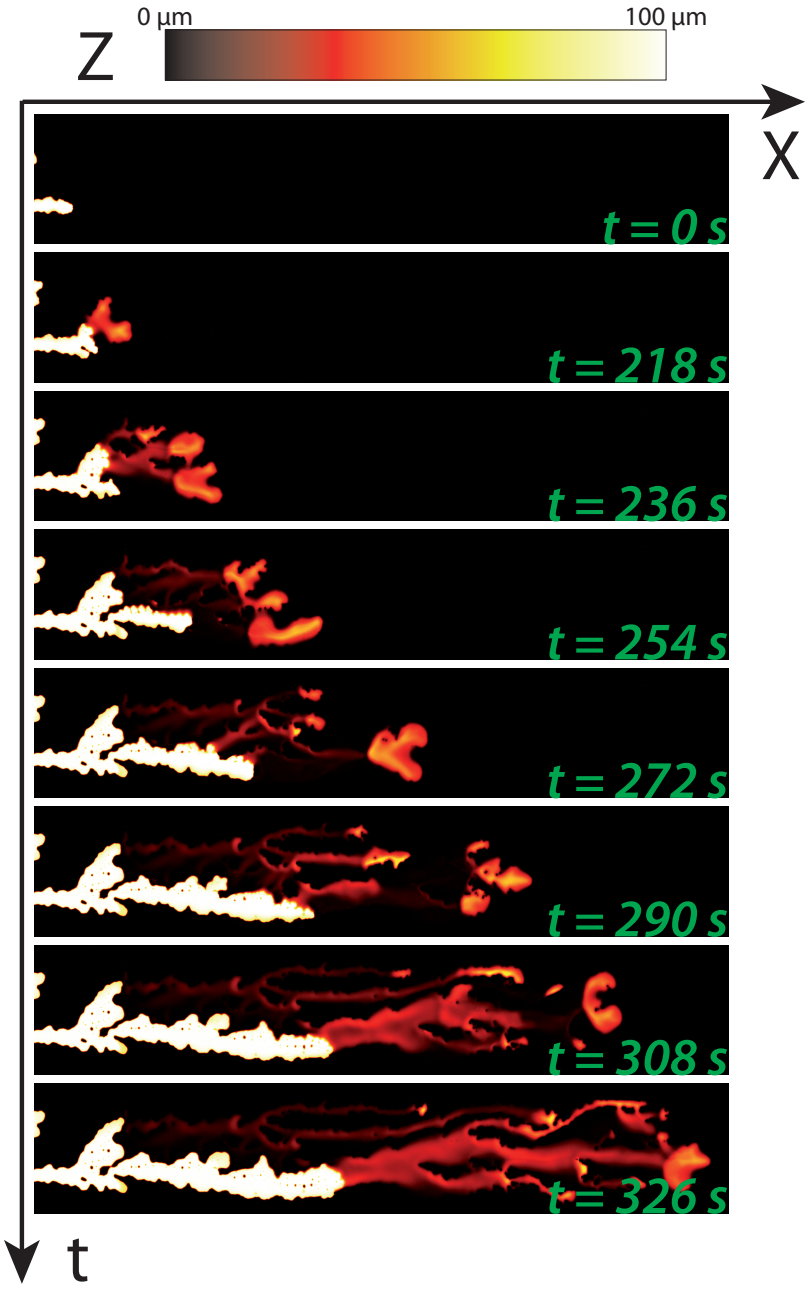
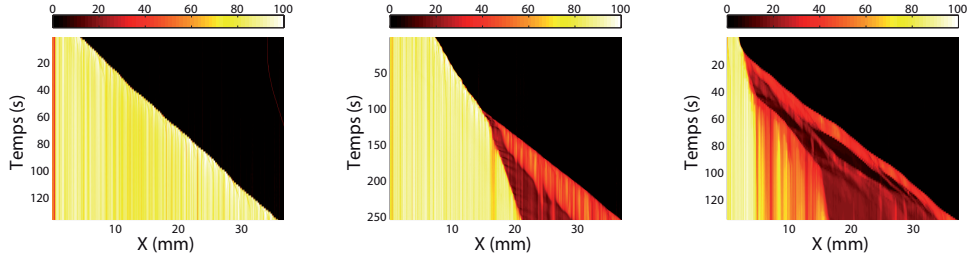


FIGURE 3.6 – Images issues d'une expérience d'invasion en régime d'imbibition dans une cellule de Hele-Shaw pour $Q = 1.5\,\mu$L/min, $\theta_e = 7°$ et $M = 1000$. Les films minces d'eau apparaissent dès le début de l'expérience et s'interconnectent au cours de l'envahissement.



(a) $Q = 0.2\,\mu$L/min (b) $Q = 0.5\,\mu$L/min (c) $Q = 1.5\,\mu$L/min

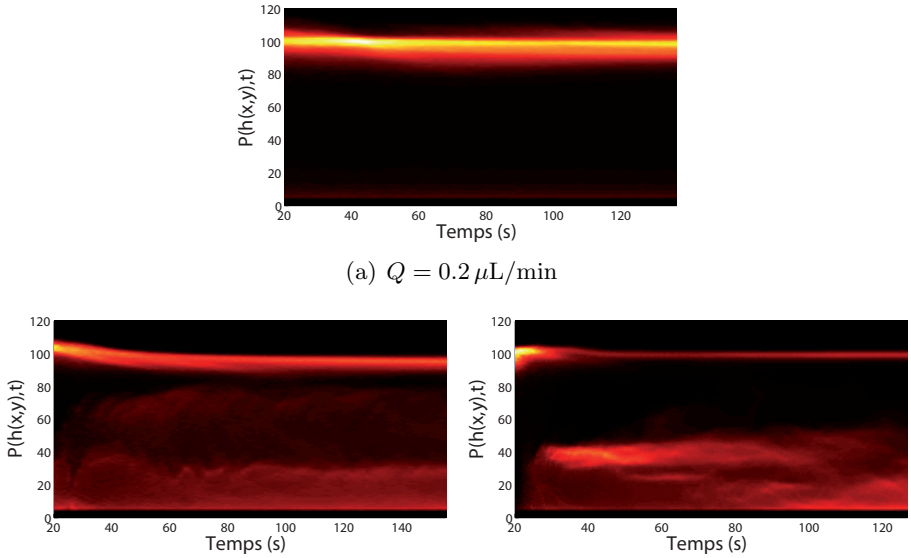
FIGURE 3.7 – *(a),(b) et (c)* : diagrammes spatio-temporels des épaisseurs d'eau pour trois débits. L'échelle du niveau de hauteur est en μm. Pour $Q = 0.2\,\mu$L/min, un doigt plein avance à vitesse constante. Pour $Q = 0.5\,\mu$L/min, on observe l'apparition, en aval de l'invasion, d'un bourrelet d'eau et d'un film de raccord d'épaisseurs plus faibles que la hauteur du canal. Pour $Q = 1.5\,\mu$L/min, on observe les même films de raccord et bourrelets, mais leurs hauteurs sont plus variables.

aval de l'avancée, dont la hauteur est d'environ $50\,\mu$m et la vitesse de $143\,\mu$m/s, correspond au bourrelet observé précédemment. La seconde zone se situe juste en amont de la première et correspond aux films minces servant au raccord entre le bourrelet et le doigt plein. Ces films minces ont une épaisseur plus faible (environ $30\,\mu$m) et se déplacent avec une vitesse de $105\,\mu$m/s. On mesure enfin la vitesse pour le doigt plein après création des doigts minces, on trouve une valeur de $38\,\mu$m/s, vitesse qui est deux fois plus faible que la valeur avant apparition des films minces. Ceci montre que près de la moitié de l'eau est partie dans les films minces.

Pour $Q \gg Q^*$ (figure 3.7(c)) l'apparition des films minces a lieu au bout de seulement quelques secondes. On retrouve le bourrelet sous la forme d'une bande d'épaisseur d'environ $40\,\mu$m se propageant avec une vitesse de $283\,\mu$m/s. De même, les films de raccord sont toujours présents, leur dispersion en hauteur est, dans ce cas, bien plus importante. On observe également, pour des temps supérieurs à $t = 50\,$s, une zone d'épaisseur supérieure à $70\,\mu$m collée au doigt plein. Cette zone correspond à des sections de canal où se trouvent à la fois un doigt plein et un film mince, ce qui nous empêche de mesurer précisément la vitesse d'avancée du doigt plein. On voit néanmoins que celle-ci est plus faible que celle des films minces.

3.3.3 Distribution des épaisseurs d'eau dans l'écoulement

Pour caractériser plus en détail les hétérogénéités d'épaisseurs dans le canal, on mesure la distribution des hauteurs d'eau : $\mathcal{P}(h\,(x, y)\,, t)$. En premier, on regarde



(a) $Q = 0.2\,\mu$L/min

(b) $Q = 0.5\,\mu$L/min

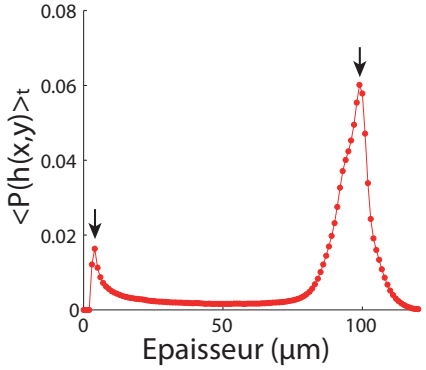
(c) $Q = 1.5\,\mu$L/min

FIGURE 3.8 – Distribution des épaisseurs d'eau (en μm) en fonction du temps pour trois débits, $\theta_e = 7°$ et $M = 1000$. On observe que les différentes hauteurs présentes ne varient pas dans le temps, ces diagrammes sont stationnaires.

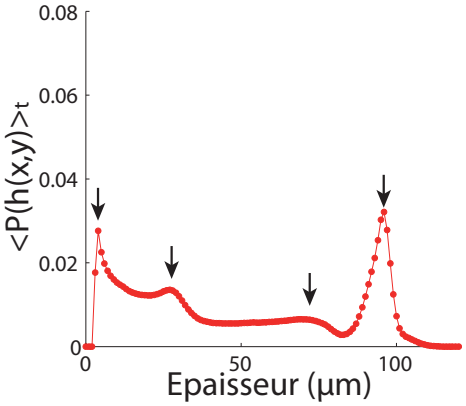
son évolution temporelle (figure 3.8) afin de vérifier la stationnarité de l'écoulement.

Pour $Q < Q^*$, on observe une seule épaisseur de 100μm correspondant au doigt plein. L'histogramme ne change pas dans le temps, la dynamique de propagation sous forme de doigt plein est bien stationnaire. Pour $Q \sim Q^*$, on observe en plus du doigt plein, deux zones d'épaisseurs plus faibles situées entre 40 et 70μm pour la première et en dessous de 30μm pour la seconde. Ces deux zones, correspondant au bourrelet et aux films de raccord, ne fluctuent pas dans le temps, la dynamique de propagation dans les films minces est donc également stationnaire. Pour $Q \gg Q^*$, il est plus difficile de distinguer les deux états bourrelet et film de raccord. Cependant la gamme d'épaisseur dans laquelle évoluent les films minces ne varie pas au cours du temps, la dynamique de propagation reste stationnaire.

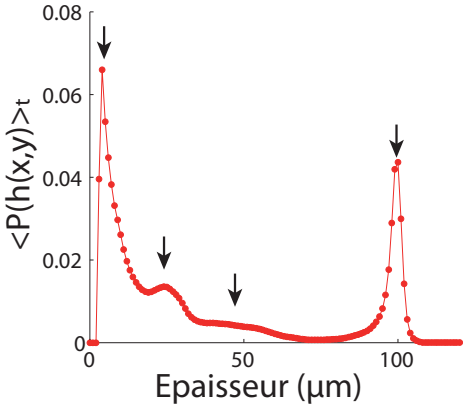
Les dynamiques d'invasion étant stationnaires, on moyenne à présent dans le temps les histogrammes pour chaque débit, $< \mathcal{P}(h\,(x,y)) >_t$, afin de faire ressortir les différentes épaisseurs caractéristiques des écoulements. Les histogrammes de la figure 3.9 sont obtenus en moyennant depuis l'apparition des films minces jusqu'à ce que ces derniers arrivent en limite de zone d'observation. Par ailleurs, on ne tient pas compte des valeurs inférieures à 3 μm qui correspondent au bruit de fond des images.



(a) $Q = 0.2\,\mu\mathrm{L/min}$



(b) $Q = 0.5\,\mu\mathrm{L/min}$



(c) $Q = 1.5\,\mu\mathrm{L/min}$

FIGURE 3.9 – Distributions de hauteurs moyennées sur le temps pour trois débits, $\theta_e = 7°$ et $M = 1000$. Pour $Q = 0.2\,\mu\mathrm{L/min}$, on observe deux pics correspondant au doigt plein (à droite) et au contour de l'eau (à gauche). Pour $Q = 0.5\,\mu\mathrm{L/min}$, on observe deux nouveaux pics correspondant au bourrelet (autour de $70\,\mu\mathrm{m}$) et au film de raccord (autour de $40\,\mu\mathrm{m}$). Pour $Q = 1.5\,\mu\mathrm{L/min}$, les deux pics précédents se décalent vers des épaisseurs plus faibles.

Pour $Q < Q^*$, on observe la présence de deux pics. Le pic à droite, situé au niveau de l'épaisseur du canal, correspond au doigt plein. Le pic à gauche est dû aux ménisques du doigt plein, son épaisseur est donc extrêmement faible (ici de $4\,\mu$m). Pour $Q \sim Q^*$, on observe l'apparition de deux nouveaux pics. Une première bosse est située autour de $70\,\mu$m et correspond aux bourrelets. L'étalement de cette bosse vers les faibles épaisseurs se comprend par le fait que les bourrelets doivent se raccorder au reste du film mince. Le pic centré à $27\,\mu$m correspond à l'épaisseur typique de ces films de raccord. On note également que le pic centré à $4\,\mu$m a une valeur plus élevée que précédemment, dû en partie à l'augmentation du périmètre mais aussi à la présence des films de très faibles épaisseurs. Pour $Q \gg Q^*$, on observe toujours les quatre même pics. Les deux pics correspondant au bourrelet et aux films de raccord sont décalés vers des épaisseurs plus faibles ce qui entraîne la présence d'une zone "vide" entre 70 et $80\,\mu$m. Enfin, le pic à $4\,\mu$m est encore plus important, montrant bien la forte augmentation du périmètre.

3.3.4 Hauteur moyenne

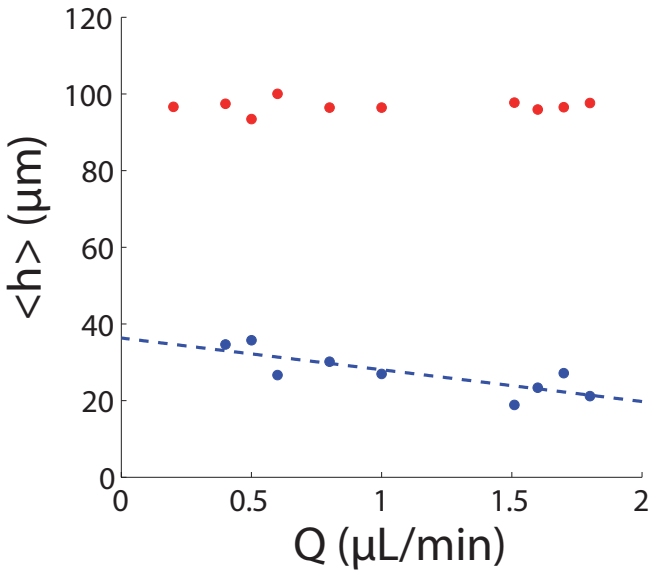


FIGURE 3.10 – Hauteurs moyennes des épaisseurs d'eau calculées à partir des distributions pour les doigts pleins (rouge) et pour les films minces (bleu). On observe une décroissance de la hauteur des films minces lorsque le débit augmente.

A partir des histogrammes précédents, on peut facilement calculer les hauteurs moyennes des différents doigts pour caractériser notamment la diminution

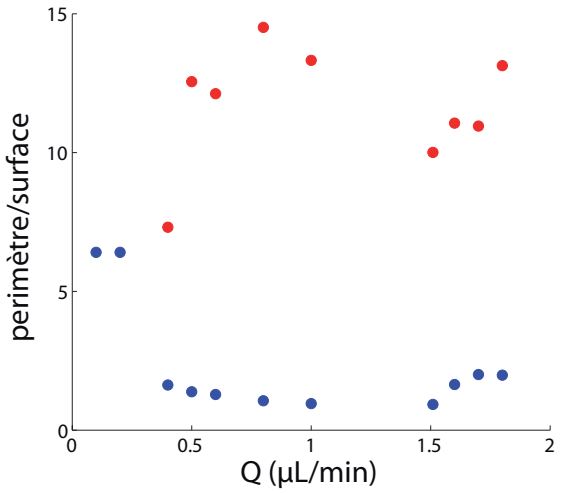


FIGURE 3.11 – Rapport du périmètre des doigts sur leur surface pour les doigts pleins (rouge) et les films minces (bleu). Au delà de la transition, ce rapport augmente pour les films minces du fait de l'augmentation de la rugosité et de l'apparition de zones d'huiles piégées. Le rapport diminue pour les doigts pleins car il n'y a plus de branchement.

d'épaisseur avec le débit.

On choisit de séparer les films minces des doigts plein à une hauteur de $80\,\mu$m. La figure 3.10 montre la hauteur moyenne des deux types de doigts en fonction du débit, la ligne pointillée noire symbolise le seuil de la transition.

Pour les doigt pleins (en rouge), la valeur moyenne est bien constante autour de la hauteur du canal ($100\,\mu$m). Pour les films minces, les hauteurs moyennes sont beaucoup plus basses (inférieures à $40\,\mu$m) et elles décroissent bien avec le débit. On trace en pointillés bleus un ajustement linéaire pour mettre en évidence la décroissance. Cependant il n'est pas clair que celle-ci obéisse à une loi linéaire.

3.3.5 Analyse morphologique des doigts

Pour caractériser plus en détail les changements morphologiques, on mesure le rapport du périmètre de la zone occupée par l'eau divisé par la surface de cette même zone en fonction du débit (figure 3.11). Pour adimensionner ce paramètre, on normalise le périmètre par la distance parcourue par l'eau dans le canal, L, et la surface par celle explorée du canal, $S = L \times W$. Pour donner un sens physique à ce nombre, on le divise par sa valeur dans le cas d'un doigt occupant la moitié du canal, 4. Ainsi une valeur proche de 1 indique que l'on est dans une morphologie

proche de celle d'un doigt unique de Saffman-Taylor.

On trace cette valeur en bleu pour les doigts pleins et en rouge pour les films minces. On retrouve très clairement la transition observée qualitativement dans la section précédente. Pour $Q < Q^*$, on observe uniquement la présence de doigts pleins et la valeur du paramètre est d'environ 6. Cette valeur élevée s'explique par le fait que ces doigts sont très branchés, on augmente alors plus le périmètre que la surface occupée. Pour $Q > Q^*$, on observe l'apparition des films minces avec une valeur variant autour de 13. Cette valeur très élevée est bien en accord avec les observations précédentes : le périmètre augmente fortement du fait d'une rugosité plus importante et la surface diminue à cause de l'amincissement des doigts. Le changement topologique avec l'apparition d'une zone d'huile au milieu des doigts d'eau augmente également fortement le périmètre tout en diminuant la surface occupée par l'eau. Enfin, la valeur pour les doigts pleins chute au moment de la transition vers une valeur légèrement supérieure à 1. Cette chute s'explique par le fait qu'au dessus du seuil, les doigts pleins suivent le chemin parcouru par les films minces et ne forment plus de branchements. Ils retrouvent ainsi une forme similaire au doigt de Saffman-Taylor mais avec une largeur plus faible.

3.3.6 Diagramme de stabilité du ménisque

On regarde à présent l'effet du rapport de mobilité sur le seuil d'entraînement pour le régime d'imbibition.

Pour cela, on se fixe un angle de contact à l'équilibre pour l'eau de 7° et on détermine le nombre capillaire critique local Ca^* auquel a lieu la transition pour une gamme de rapport de viscosité : $5 < M < 3500$. En pratique, on injecte l'eau en se plaçant initialement sous le seuil. On augmente ensuite progressivement le débit pour passer au dessus de la transition. On mesure alors localement la vitesse critique V^* du front d'eau au moment de l'entraînement et on en déduit Ca^* pour l'eau par la relation :

$$Ca^* = \frac{\eta_{\text{eau}} V^*}{\gamma}$$

où η_{eau} est la viscosité de l'eau et γ la tension de surface entre l'huile et l'eau. On mesure également les vitesses avant et après le seuil pour déterminer une barre d'erreur sur la mesure.

Cette valeur de nombre capillaire critique délimite une frontière au delà de laquelle le ménisque mobile n'est plus stable dans le plan xz. On obtient ainsi le diagramme de stabilité du ménisque de la figure 3.12 où les marqueurs rouges marquent l'apparition de la transition d'entraînement.

Le comportement fortement non-monotone de la frontière avec un maximum pour $M \sim 100$ exclut la possibilité que le système obéisse à une loi d'échelle simple consistant à équilibrer la pression de Laplace avec les contraintes visqueuses à

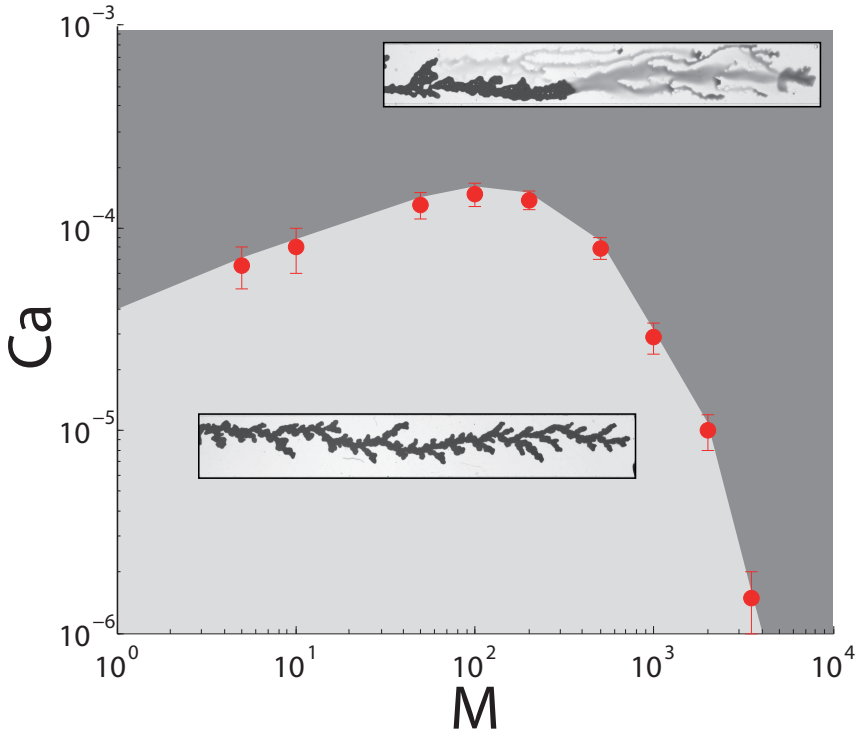


FIGURE 3.12 – Diagramme de stabilité des ménisques dans le régime d'imbibition pour $\theta_e = 7°$. Dans la zone claire, les ménisques sont stables et l'eau se propage sous la forme de doigts pleins. Dans la zone foncée, les ménisques se déstabilisent et on observe l'apparition de films minces d'eau.

l'échelle du canal uniquement. Un tel argument donnerait une décroissance monotone de Ca^* en $Ca^* \propto 1/M$. Ce comportement est donc dû à l'interaction entre les écoulements des deux fluides à toutes les échelles. De plus, en supposant que la partie $M \gg 100$ du diagramme obéisse à une loi de puissance (ce qui n'est pas évident ici), on obtient une loi en $Ca^* \propto M^{-1.94}$ (calculée sur les quatre derniers points). Ceci indiquerait que même pour des contrastes de viscosité très grands, les deux fluides jouent toujours un rôle sur la vitesse à laquelle a lieu l'entraînement. Le couplage à petite échelle est donc toujours présent. Enfin, on note sur ce diagramme que l'on peut également franchir la frontière en se déplaçant uniquement horizontalement, à Ca fixé. On verra dans le chapitre 4 que l'on arrive effectivement à transiter de cette façon.

EN RÉSUMÉ

- On a montré l'existence d'une nouvelle transition d'entraînement pour le régime d'imbibition. Le fluide mobile est entrainé sous la forme de films minces le long des parois contrairement au cas précédent où il se propageait à l'intérieur du fluide statique.
- La dynamique d'invasion devient tridimensionnelle et ne peut plus être décrite par une croissance Laplacienne.
- L'épaisseur des films minces entrainés diminue avec le nombre capillaire.
- Le seuil en nombre capillaire, Ca^*, dépend fortement du rapport de viscosité entre les deux fluides. Son comportement non-monotone montre le couplage entre les écoulements des deux fluides à toutes les échelles.

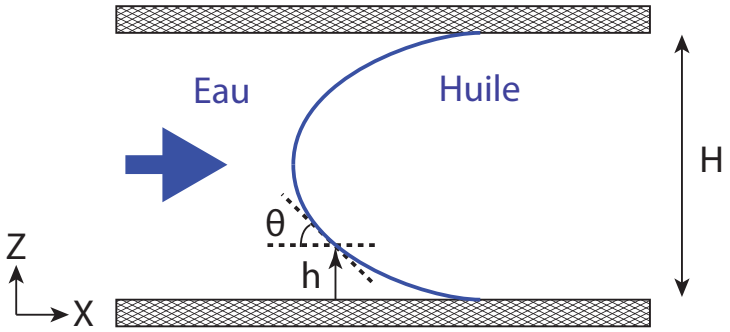


FIGURE 3.13 – Schéma d'un écoulement diphasique de deux fluides non miscibles dans un canal de section constante. On y définit l'angle de courbure $\theta(s)$ et la hauteur $h(s)$ du ménisque en fonction de l'abscisse curviligne s.

3.4 Description théorique de la déstabilisation des ménisques

Dans cette section, on souhaite comprendre la déstabilisation du ménisque en films minces. Pour cela, on établit un modèle basé sur l'équation de Laplace pour déterminer les formes stationnaires des ménisques à l'avancée. On résout numériquement ce modèle à l'aide d'un algorithme que l'on adapte à notre problème pour le rendre plus efficace.

3.4.1 Forme des ménisques stationnaires

Pour établir le modèle, on considère deux fluides non miscibles s'écoulant à la vitesse U dans un canal de section constante H (figure 3.13). En référence aux expériences précédentes, on appelle "Eau" le fluide poussant et "Huile" celui poussé. Pour simplifier, le système est choisi invariant suivant la direction y (modèle en deux dimensions), on néglige ainsi les courbures dans le plan xy. De plus, on suppose que la hauteur H est largement inférieure à la longueur capillaire, de sorte à s'affranchir de l'effet de la gravité sur la forme du ménisque. Le nombre de Reynolds est lui aussi supposé faible, les fluides satisfont ainsi à l'équation de Stockes :

$$\vec{\nabla} P_f = \eta_f \Delta \vec{U_f} \tag{3.1}$$

où P_f est la pression à l'intérieur du fluide $f = \{\text{eau}; \text{huile}\}$, η_f sa viscosité et U_f sa vitesse. Enfin, on introduit l'épaisseur d'eau h et l'angle local θ de l'interface comme représenté sur la figure 3.13.

Pour déterminer la forme du ménisque, on équilibre la différence de contraintes

normales $\tau_{\text{huile}} - \tau_{\text{eau}}$ à travers l'interface par la pression de Laplace :

$$\gamma\kappa = \gamma \frac{\mathrm{d}\theta}{\mathrm{d}s} = \tau_{\text{huile}} - \tau_{\text{eau}} \tag{3.2}$$

où γ est la tension de surface entre les deux fluides et κ la courbure locale de l'interface. Cette dernière s'exprime simplement comme la dérivée de l'angle local θ suivant l'abscisse curviligne s. L'origine de s est prise à la ligne de contact de telle sorte que :

$$h\left(s=0\right) = 0. \tag{3.3}$$

On différencie maintenant 3.2 suivant l'abscisse curviligne pour obtenir :

$$\gamma\frac{\mathrm{d}^2\theta}{\mathrm{d}s^2} = \frac{\mathrm{d}\tau_{\text{huile}}}{\mathrm{d}s} - \frac{\mathrm{d}\tau_{\text{eau}}}{\mathrm{d}s}. \tag{3.4}$$

On doit maintenant déterminer les dérivées des contraintes normales τ_{eau} et τ_{huile}. Pour cela, on doit déterminer dans chacune des phases le champ de vitesse, qui lui même dépend de la forme de l'interface. La résolution exacte de ce problème est très compliquée et c'est pourquoi de la même façon que [55], on approxime le champ local de vitesse par celui de l'écoulement à l'intérieur d'un coin d'angle θ. Le calcul du champ de vitesse dans cette géométrie est connu depuis [37] et pour ces solutions, le gradient de la partie non isotrope des contraintes normales est nul. On peut ainsi remplacer dans nos équations les contraintes normales par la pression :

$$\gamma\frac{\mathrm{d}^2\theta}{\mathrm{d}s^2} = \left[\vec{\nabla}P_{\text{huile}} - \vec{\nabla}P_{\text{eau}}\right]_{\text{int}} \cdot \vec{e_s} \tag{3.5}$$

où l'indice *int* signifie que les valeurs sont prisent à l'interface. On introduit finalement l'équation 3.1 dans 3.5 pour obtenir :

$$\gamma\frac{\mathrm{d}^2\theta}{\mathrm{d}s^2} = \left[\eta_{\text{huile}}\nabla^2\vec{U}_{\text{huile}} - \eta_{\text{eau}}\nabla^2\vec{U}_{\text{eau}}\right]_{\text{int}} \cdot \vec{e_s}. \tag{3.6}$$

En utilisant [37], on écrit le terme de droite sous la forme :

$$\eta_{\text{eau}}\left[\frac{\eta_{\text{huile}}}{\eta_{\text{eau}}}\nabla^2\vec{U}_{\text{huile}} - \nabla^2\vec{U}_{\text{eau}}\right]_{\text{int}} \cdot \vec{e_s} = \frac{3\eta_{\text{eau}}Uf\left(\theta,M\right)}{h^2}, \tag{3.7}$$

avec

$$\begin{aligned}
f\left(\theta,R\right) &\equiv \frac{2\sin^3\theta\left[R^2f_1\left(\theta\right)+2Rf_3\left(\theta\right)+f_1\left(\pi-\theta\right)\right]}{3\left[Rf_1\left(\theta\right)f_2\left(\pi-\theta\right)-f_1\left(\pi-\theta\right)f_2\left(\theta\right)\right]} \\
f_1\left(\theta\right) &\equiv \theta^2-\sin^2\theta \\
f_2\left(\theta\right) &\equiv \theta-\sin\theta\cos\theta \\
f_3\left(\theta\right) &\equiv \theta\left(\pi-\theta\right)+\sin^2\theta
\end{aligned} \tag{3.8}$$

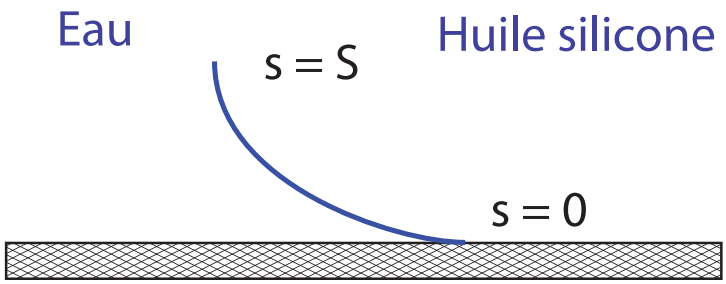


FIGURE 3.14 – Schéma du demi canal sur lequel on résout le système d'EDP. La valeur de l'abscisse curviligne au demi-canal S n'est pas connue à priori, on l'introduit en tant que nouvelle variable dans le système d'EDP pour la déterminer.

Finalement l'équation 3.6 prend la forme :

$$\frac{\mathrm{d}^2\theta}{\mathrm{d}s^2} = \frac{3\,Ca}{h^2} f\left(\theta, M\right) \tag{3.9}$$

où $Ca = \frac{\eta_{\text{eau}} U}{\gamma}$ et $M = \frac{\eta_{\text{huile}}}{\eta_{\text{eau}}}$.

Pour s'affranchir de la singularité à la ligne de contact, on introduit une longueur de glissement λ_l de sorte à obtenir l'équation de lubrification classique quand $M \to 0$ et $\theta \to 0$ [70]. On obtient l'équation finale :

$$\frac{\mathrm{d}^2\theta}{\mathrm{d}s^2} = \frac{3\,Ca}{h\left(3\lambda_l + h\right)} f\left(\theta, M\right) \tag{3.10}$$

Pour rappel, on cherche à connaitre à la fois θ et h pour déterminer la forme de l'interface. On a donc besoin de deux équations, la première est donnée par 3.10. Pour la seconde, on utilise simplement la relation géométrique liant θ à h :

$$\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}s} = \sin\theta \tag{3.11}$$

3.4.2 Méthode de résolution

Les équations 3.10 et 3.11 forment un système d'équations aux dérivées partielles (EDP) non-linéaires. La solution analytique est de ce fait bien trop compliqué à chercher, on choisit alors de résoudre le système numériquement.

On remarque tout d'abord que le schéma sur lequel on résout (figure 3.13) est symétrique par rapport au centre du canal. On réduit alors la géométrie du problème au demi-canal uniquement (figure 3.14). Les conditions aux limites pour h sont alors :

– à la paroi :

$$h\left(s = 0\right) = 0 \tag{3.12}$$

– au centre du canal :

$$h\,(s = S) = \frac{1}{2} \tag{3.13}$$

où S est la valeur de l'abscisse curviligne lorsque l'on atteint la moitié du canal. Cette valeur n'est pas connue à priori, on verra par la suite comment la déterminer. Pour θ, on suppose que l'angle de contact aux parois ne dépend pas de Ca et qu'il est égal à l'angle donné par la loi de Young-Dupré θ_e. Les conditions aux limites sur θ sont ainsi :

– à la paroi :

$$\theta\,(s = 0) = \theta_e \tag{3.14}$$

– au centre du canal :

$$\theta\,(s = S) = \frac{\pi}{2} \tag{3.15}$$

Adaptation du système d'équation à la méthode de résolution

Pour résoudre notre système d'EDP du second ordre avec conditions aux bords, on utilise le logiciel Matlab. Plus spécifiquement, on résout à l'aide d'un code basé sur une méthode de collocation, plus adaptée à notre problème que la méthode classique de shooting. On doit pour cela modifier le système d'équation.

La première étape consiste à réduire notre système d'ordre deux en un système d'ordre un. On introduit pour cela la courbure, $\kappa = \frac{\mathrm{d}\theta}{\mathrm{d}s}$, comme nouvelle variable pour obtenir le système :

$$\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}s} = \sin\theta \tag{3.16}$$

$$\frac{\mathrm{d}\theta}{\mathrm{d}s} = \kappa \tag{3.17}$$

$$\frac{\mathrm{d}\kappa}{\mathrm{d}s} = \frac{3\,Ca}{h\,(3\,\lambda_l + h)} f\,(\theta, M) \tag{3.18}$$

La seconde étape consiste à déterminer la valeur de S du domaine d'intégration. Pour cela, on introduit S comme quatrième variable dans notre système d'équations en réalisant le changement de variable s par $s = s/S$. On rajoute également une équation sur S, qui provient du fait que cette variable est constante au cours de l'intégration.

On obtient le système dynamique d'ordre 4 :

$$\dot{h}\,(s) = S\sin\theta \tag{3.19}$$

$$\dot{\theta}\,(s) = S\kappa \tag{3.20}$$

$$\dot{\kappa}\,(s) = \frac{3\,S\,Ca}{h\,(3\,\lambda_l + h)} f\,(\theta, M) \tag{3.21}$$

$$\dot{S}\,(s) = 0 \tag{3.22}$$

que l'on intègre sur l'intervalle $s = [0 : 1]$ avec comme conditions aux limites :

$$h(s=0) = 0 \tag{3.23}$$
$$\theta(s=0) = \theta_e \tag{3.24}$$
$$h(s=1) = \frac{1}{2} \tag{3.25}$$
$$\theta(s=1) = \frac{\pi}{2} \tag{3.26}$$

Algorithme de résolution

Pour résoudre ce problèmes d'EDP avec conditions aux bords, on utilise une méthode de collocation qui est en pratique la fonction bvp4C de matlab. Cette méthode nécessite une estimation de solution car il existe à priori plusieurs solutions dans ce genre de problème.

Dans notre cas, on commence par fixer une valeur de M et de θ_e et on se donne la solution à nombre capillaire nul comme estimation. On résout alors le système pour un Ca très faible puis on utilise cette nouvelle solution comme estimation pour calculer pour un Ca plus élevé. On résout ainsi de proche en proche en augmentant progressivement le Ca.

Cette méthode de résolution nous permet de résoudre beaucoup plus efficacement notre système d'EDP qu'avec des méthodes de "shooting" utilisées habituellement pour ce type d'équations.

3.4.3 Formes des interfaces et transition capillaire

La figure 3.15 montre les profils d'interfaces calculés pour $M = 1000$, $\theta_e = 10°$ et lorsque l'on fait varier le nombre capillaire de 10^{-12} à 10^{-5}. Pour des valeurs faibles de Ca, la forme de l'interface reste très proche de celle à capillaire nul. Puis, lorsque l'on augmente Ca, l'interface se déforme et la distance entre la ligne triple et l'arrière du ménisque s'allonge, on appelle cette distance L_{menisque}. De plus, on constate sur le zoom que les ménisques obtenus à hauts capillaires possèdent un point d'inflexion proche de la paroi. On définit alors l'angle en ce point comme un angle apparent du point de vue macroscopique, on l'appelle θ_{app}. Enfin, si on augmente encore le Ca, l'algorithme ne trouve plus de solution au problème.

Pour comprendre plus en détail ce qu'il se passe, on trace l'évolution de la longueur du ménisque en fonction du nombre capillaire (figure 3.16(a)). Cette longueur n'évolue pratiquement pas jusqu'à un nombre capillaire d'environ $Ca \sim 10^{-6}$, valeur à partir de laquelle elle se met à augmenter de façon très importante jusqu'à diverger pour un nombre capillaire proche de $2.02\,10^{-5}$. On caractérise cette divergence en figure 3.16(b) où on représente en échelle logarithmique $(L_{menisque} - L^*)/H$ en fonction de $Ca - Ca^*$. Les valeurs critiques correspondent

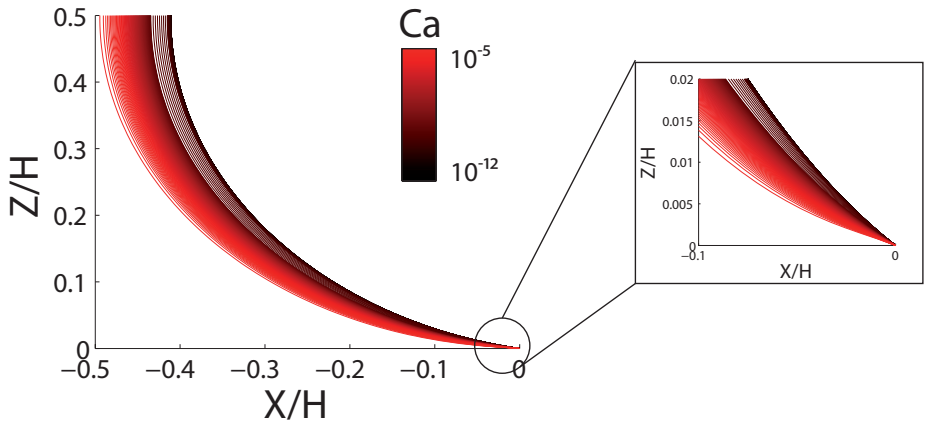


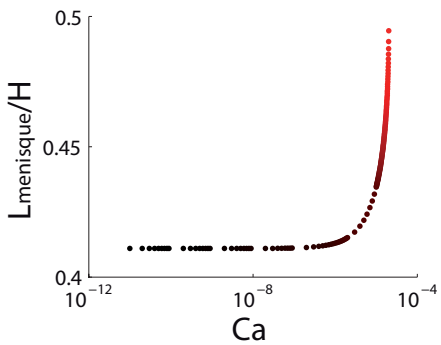
FIGURE 3.15 – Profils des ménisques pour différents nombres capillaires, le rapport de viscosité est fixé à $M = 1000$, l'angle de contact initial à $\theta_e = 10°$ et la longueur de glissement à $\lambda_l = 10^{-5}H$. Les distances sont normalisées par l'épaisseur du canal. On observe un allongement progressif du ménisque et une diminution de l'angle de contact apparent (*inset*) lorsque le capillaire augmente.

à celles obtenues pour la dernière solution de la résolution numérique. On observe alors un comportement en loi de puissance avec un coefficient de 0.8. On trace également l'évolution de l'angle apparent en fonction du nombre capillaire (figure 3.16(c)). Cet angle suit une évolution similaire à la précédente. Dans un première temps, il n'évolue pratiquement pas de la solution d'équilibre, puis à partir de $Ca \sim 10^{-6}$, il chute brutalement jusqu'à une valeur d'environ 4°. On caractérise la décroissance en traçant $\theta_{app} - \theta^*$ en fonction de $Ca - Ca^*$ (figure 3.16(d)) où θ^* est le dernier angle apparent calculé numériquement. On trouve également un comportement en loi de puissance avec un exposant de -1.4.

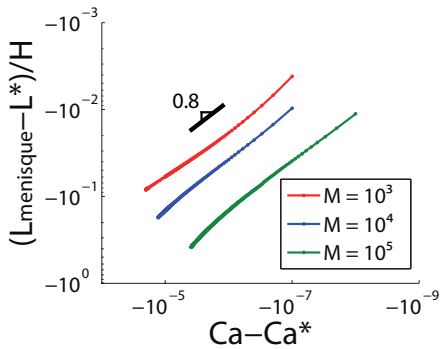
La décroissance brutale de l'angle apparent couplée avec l'augmentation de la longueur du ménisque montre que le moment où l'algorithme ne trouve plus de solutions stationnaires correspond à l'entraînement de films d'eau le long des parois du système, en bon accord avec les observations expérimentales. Le fait que l'angle apparent s'arrête avant une valeur de 0° au cours de la résolution numérique est dû à la discrétisation des valeurs du nombre capillaire. Ceci explique également les légères déviations aux extrémités du comportement en loi d'échelle.

3.4.4 Diagramme de stabilité du ménisque

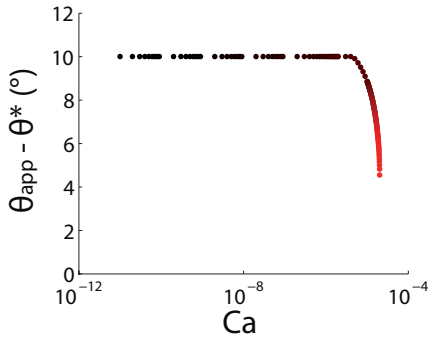
De la même façon que nous l'avons fait dans les expériences, on s'intéresse à présent à l'influence du rapport de viscosité sur cette transition.



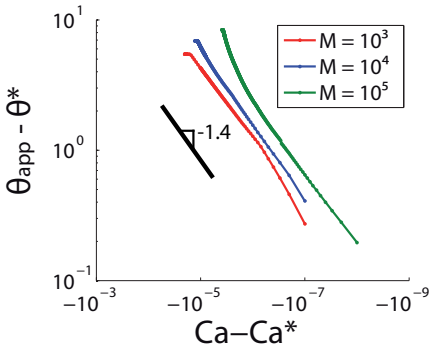
(a) Longueur du ménisque en fonction du nombre capillaire pour $M = 1000$ et $\theta_e = 10°$.



(b) Longueur du ménisque en fonction du capillaire pour différents M. La pente des lois de puissance est identique pour les trois.



(c) Angle apparent en fonction du nombre capillaire pour $M = 1000$ et $\theta_e = 10°$.



(d) Angle apparent en fonction du nombre capillaire pour différents M. La pente des lois de puissance est identique pour les trois.

FIGURE 3.16 – Évolution de la géométrie de l'interface en fonction du nombre capillaire pour $M = 1000$, $\theta_e = 10°$ et $\lambda_l = 10^{-5}H$. Proche d'un capillaire critique Ca^*, la longueur de ménisque augmente brusquement et l'angle apparent diminue de la même façon. Au delà de Ca^*, on ne trouve plus de solution stationnaire, on a un entraînement d'un film mince d'eau le long des parois.

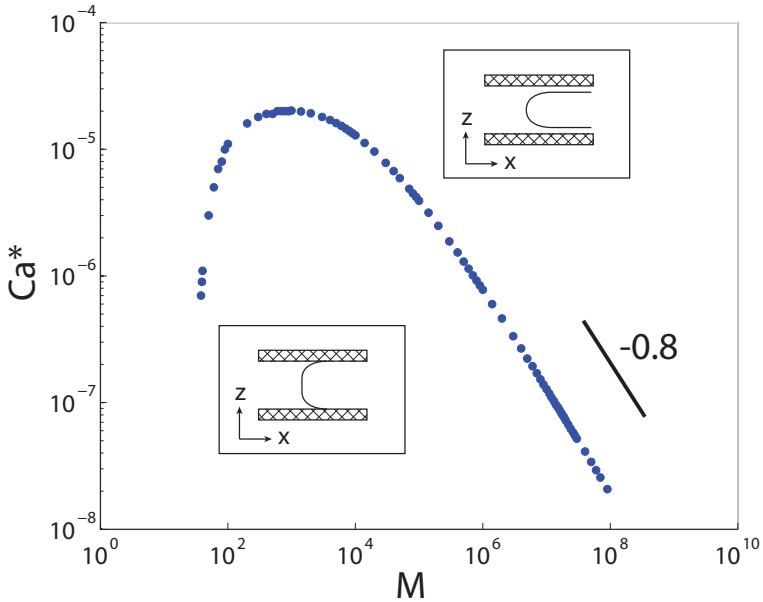


FIGURE 3.17 – Valeur critique du nombre capillaire en fonction du rapport de viscosité pour $\theta_e = 10$ et $\lambda_l = 10^{-5}H$. On retrouve un diagramme de stabilité semblable à celui obtenu par l'expérience.

La résolution numérique du profil des ménisques pour différentes valeurs de M montre des comportements à l'approche de la transition très similaires (figure 3.16(b) et 3.16(d)) avec des exposants critiques identiques mais des valeurs critiques différentes.

On trace à présent la valeur de Ca^* en fonction de M afin de reproduire un diagramme de stabilité similaire à celui obtenu expérimentalement (figure 3.17). On obtient une frontière sous laquelle le ménisque est stable et l'avancée du fluide se fait sous forme d'un doigt plein. Au dessus de la ligne, le ménisque se déstabilise et l'eau forme des films minces le long des parois. Le comportement qualitatif de cette frontière est identique à celle observée expérimentalement. On retrouve notamment le caractère non monotone montrant l'importance du couplage entre les fluides à toutes les échelles. Enfin, le nombre capillaire critique décroit toujours très fortement à hauts rapports de viscosité avec cependant ici une loi de puissance $Ca^* \propto M^{0.8}$.

Les deux diagrammes de phase théorique et expérimentale sont ainsi très similaires d'un point de vue qualitatif. Cependant, on constate que les valeurs de nombres capillaires et de rapports de viscosités diffèrent de plusieurs ordres de grandeur. Cet écart peut provenir de plusieurs éléments :

- la longueur de glissement n'est pas forcément bien choisie
- l'approximation d'écoulement dans un coin n'est pas exacte
- notre modèle est purement bi-dimensionnel et ne tient pas compte de la courbure dans le plan xy alors que les images expérimentales montrent que les doigts sont très fortement courbés notamment au niveau des pointes où se déclenche l'entrainement.

EN RÉSUMÉ

- On a développé un modèle théorique à partir de l'équation de Laplace permettant de calculer les formes stationnaires d'un ménisque à l'avancée.
- On résout ce modèle numériquement à l'aide d'un algorithme basé sur une méthode de collocation et en utilisant un procédé itératif pour la forme de départ.
- Les profils de ménisques obtenus permettent de retrouver la transition d'entraînement vers la propagation de film mince.
- L'étude de l'influence du rapport de viscosité sur Ca^* permet d'établir un diagramme de phase en accord qualitatif avec les expériences.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, on a montré l'existence d'une nouvelle transition capillaire provenant de la déstabilisation du ménisque entre l'eau et l'huile en films minces d'eau se propageant le long des parois. L'écoulement, initialement en deux dimensions, change et devient tri-dimensionnel.

Le processus de dissipation à l'intérieur de ces doigts fins diffèrent alors totalement de ceux des doigts pleins. Ils seront très dépendants de la structure 3D des films minces. Ce changement de processus explique pourquoi la morphologie des écoulements ne suit plus la croissance Laplacienne classique de l'instabilité de Saffman-Taylor. Les motifs observés dans le plan xy sont ainsi totalement modifiés par l'instabilité dans le plan xz.

Cependant, ce type de transition entrainant un changement de dimension, a déjà été observé, notamment par D. Aarts et al [8] et R. Ledesma-Aguilar et al [42] comme on a pu le voir dans le chapitre d'introduction. Dans leurs cas, ils observent au dessus du seuil de transition, la formation d'un doigt de la phase mobile à l'intérieur de la phase statique. Leur scénario est donc opposé à celui observé ici.

Dans le chapitre suivant, on s'intéressera ainsi à ces deux transitions d'entraînement et, plus particulièrement, à comprendre ce qui détermine l'apparition de l'une ou de l'autre.

CHAPITRE 4

Vers une description unifiée des transitions d'entrainement de liquides

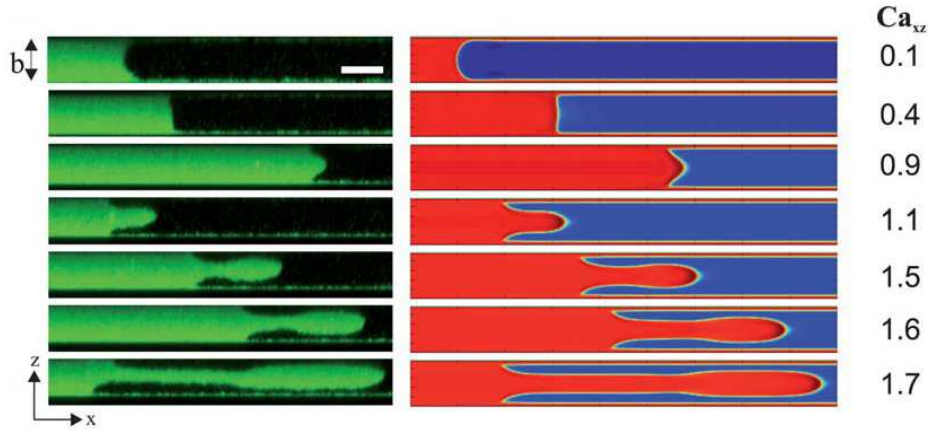


FIGURE 4.1 – Expérience d'imbibition montrant le scénario par création d'un doigt de fluide mobile à l'intérieur du canal. Image issue de D. Aarts et al [8].

4.1 Introduction

Les études portant sur l'avancée d'un ménisque sur un solide ont montré l'existence d'un nombre capillaire seuil [35, 39, 26] au delà duquel le ménisque n'est plus stable. On a alors entrainement d'un des fluides le long de la paroi, phénomène à l'origine du nom de "transition d'entrainement".

Jusqu'à présent, le scénario toujours observé correspond au détachement du fluide mobile de la paroi et au dépôt d'un film mince de fluide statique le long de celle-ci. Les travaux récents de S.A. Setu [8] en milieu confiné sont particulièrement révélateurs de ce scénario. Les images en microscopie confocale de la figure 4.1 montrent clairement qu'au delà d'un capillaire critique, un doigt de fluide mobile se détache de la paroi et se propage au centre du canal en laissant sur les bords un film mince du fluide statique.

Les lignes (1) à (5) du tableau 4.2 reprennent différentes expériences d'avancées d'un ménisque sur une surface étudiées au cours des dernières années. Dans le but de faciliter la lecture du tableau, on schématise les expériences en se plaçant dans le référentiel du solide et on symbolise le fluide mobile et le sens de l'écoulement à l'aide d'une flèche. On y reporte également le rapport de viscosité M entre la phase statique et la phase mobile ainsi que l'état du mouillage du fluide mobile. Un état mouillant correspond à une valeur d'angle de contact $\theta_e < 90°$ et un état non-mouillant à $\theta_e > 90°$. On constate que pour toutes ces expériences, le scénario observé est celui de la formation d'un doigt visqueux, ce qui laisse à penser que c'est le seul scénario existant.

Les expériences menées au chapitre 3 ont cependant montré l'existence d'un

	Géométrie	Paramètre		Type de transition d'entrainement
		mouillage	M	
Landau-Levich		non mouillant	>> 1	Doigt
A. Marchand et al		mouillant	<< 1	Doigt
P.Saffman, G.Taylor		non mouillant	>> 1	Doigt
S. A. Setu et al		mouillage total	~ 2,3	Doigt
R. Ledesma-Aguilar et al		non mouillant ou mouillant	0.01 à 1	Doigt
B. Levaché et al		mouillant	10 à 3500	Film mince

FIGURE 4.2 – Tableau récapitulatif des différents cas étudiés. M représente le rapport de la viscosité du fluide statique sur celle du fluide mobile. La flèche est placée à l'intérieur du fluide mobile et indique le sens d'avancée.

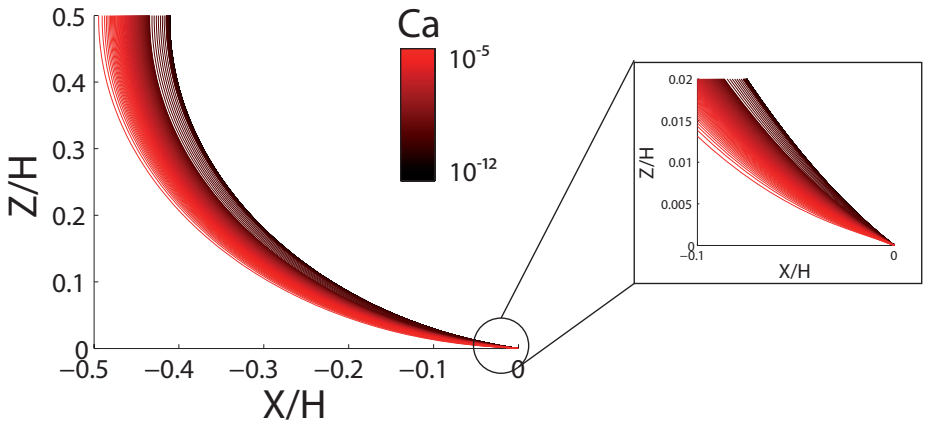


FIGURE 4.3 – Profils de ménisques obtenus par résolution numérique du modèle du chapitre 3 pour le régime d'imbibition montrant un scénario par création de films minces du fluide mobile le long des parois.

second scénario au cour duquel, au delà d'un capillaire critique, le fluide mobile se propage sous la forme de films minces le long des parois du solide. Le fluide statique reste lui au centre du canal (figure 4.3). Ce scénario, diamétralement opposé au précédent, est également retrouvé numériquement à l'aide d'un modèle théorique simple sur une large gamme de paramètres de contrôles M et Ca.

On a ainsi deux scénarios opposés possibles de transition d'entrainement pour des écoulements initiaux identiques. Les expériences du chapitre 3 ont cependant été réalisées pour des paramètres de contrôle différents de la littérature, ces deux scénarios correspondent ainsi à des situations physiques différentes. Il existe donc à priori une transition entre deux scénarios d'entrainement qui semble être induite par une variation du rapport de viscosité (A. Marchand et al vs B. Levaché et al) ou de l'état de mouillage (Landau-Levich vs B. Levaché et al).

Dans ce chapitre, on souhaite comprendre quels sont les paramètres physiques en jeu et les mécanismes qui conduisent à la formation de ces deux motifs d'invasion totalement différents. Pour cela, on se focalise dans un premier temps sur la situation où le fluide mobile est mouillant (ie θ_e petit). On montre alors que le modèle théorique conduisant au film mince nous permet également d'obtenir une transition d'entrainement sous la forme de doigt visqueux, pour une gamme de rapport de viscosité en accord avec la littérature. On trace ensuite un nouveau diagramme de phases comprenant maintenant les deux types d'invasions. Ce dernier met alors en évidence l'existence d'un rapport de viscosité critique M^* séparant les deux transitions. On valide alors l'existence de ce nouveau seuil à l'aide d'une expérience semblable à celles réalisées au chapitre 3.

Dans un second temps, on étudie théoriquement l'influence du solide sur le nouveau diagramme de phases. Il apparait que la forme générale de ce dernier n'est influencée ni par la longueur de glissement qui change uniquement la valeur de Ca^*, ni par le mouillage. L'angle θ_e décale uniquement la valeur de M^*. L'étude de la variation de M^* en fonction de θ_e met alors en évidence une faiblesse du modèle pour des valeurs grandes de θ_e.

4.2 Influence du rapport de viscosité.

Dans un premier temps, on s'intéresse uniquement à l'influence du rapport de viscosité sur la transition d'entrainement. On se focalise pour cela sur le cas où le fluide mobile mouille les parois du système ($\theta_e < 90°$).

Cette situation correspond dans le tableau 4.2 aux travaux de A.Marchand et al, S.A. Setu et al et R. Ledesma-Aguilar et al. Pour ces trois études, le rapport de mobilité utilisé est au plus de l'ordre de 1 et est généralement bien inférieur. Pour rappel, notre étude du chapitre 3 s'est focalisée uniquement sur le régime des hauts rapports de viscosité dans le but d'étudier l'influence du mouillage sur l'instabilité de Saffman-Taylor. Ainsi, pour essayer d'obtenir le second type d'invasion, on regarde ce que donne notre modèle théorique lorsque l'on baisse le rapport de viscosité à angle de contact toujours faible.

4.2.1 Étude numérique

Pour fixer les idées, considérons un rapport de viscosité $M = 10^{-2}$ et un angle de contact $\theta_e = 10°$. On calcule les profils des ménisques pour des nombres capillaires croissants depuis la valeur statique ($Ca = 0$) jusqu'à ce que l'algorithme ne trouve plus de solution stationnaire (figure 4.4).

Pour des nombres capillaires très faibles, l'écoulement n'est pas suffisamment fort pour déformer le ménisque, celui-ci conserve une forme proche de l'état statique. Puis, lorsque l'on augmente le capillaire, l'angle apparent à paroi se met à augmenter et la courbure du ménisque diminue et finit par changer de signe. Au delà du retournement de l'interface (pour des Ca encore plus élevés), on observe l'apparition progressive d'un doigt de fluide mobile à l'intérieur de celui statique.

Pour caractériser plus en détail la formation de ce doigt, on trace en fonction du nombre capillaire, la longueur du ménisque (figure 4.5(a)) ainsi que l'angle apparent (figure 4.5(c)). Ce dernier est pris comme l'angle maximal que fait l'interface avec l'axe horizontal, c'est pourquoi il vaut 90° tant que le changement de courbure n'a pas eu lieu.

Pour des nombres capillaires faibles, la longueur du ménisque reste pratiquement constante et très proche de la valeur à vitesse nulle. A partir de $Ca \approx 10^{-4}$, la longueur commence à diminuer, devient nulle puis augmente à nouveau de façon

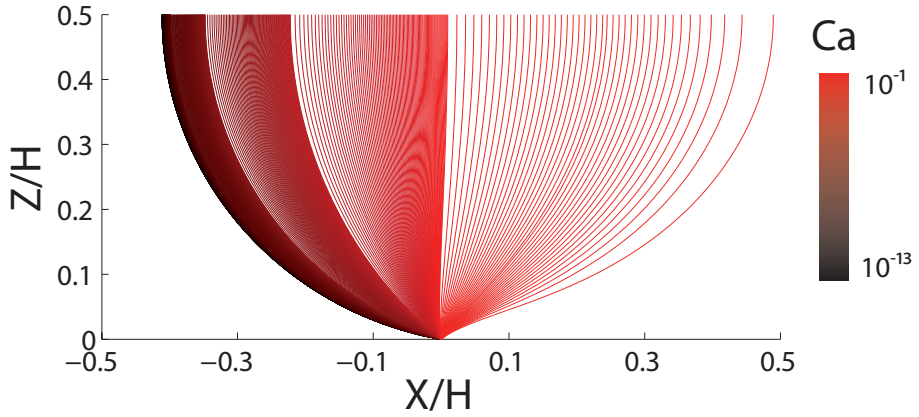


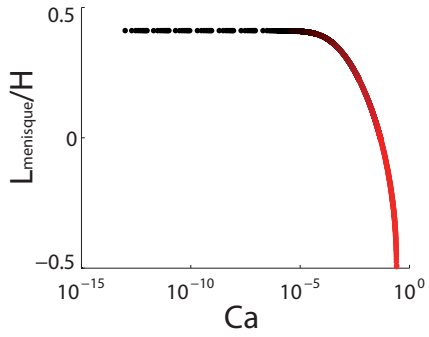
FIGURE 4.4 – Image des profils de ménisques obtenus par résolution numérique de notre modèle pour $\theta_e = 10°$ et $M = 0.01$. L'échelle de couleur représente un nombre capillaire croissant du noir vers le rouge. On observe une inversion progressive de la courbure avec la création d'un doigt du fluide mobile dans celui statique.

très rapide dans l'autre sens (indiqué ici par la valeur négative). On observe un comportement identique pour l'angle apparent du ménisque : il se met à augmenter de façon brutal après l'inversion de courbure et tend vers 180°. Le scénario vers lequel se dirige le système est ainsi bien celui de la formation d'un doigt visqueux de fluide mobile.

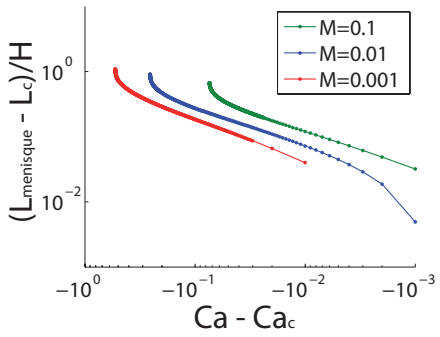
Les comportements au delà du retournement de l'interface sont très semblables à ceux observés pour les films minces. On trace alors (en bleu sur les figures 4.5(b) et 4.5(d)) $(L-L_c)/H$ et $(\theta_{app}-\theta_c)$ en fonction de $(Ca-Ca_c)$ où les valeurs critiques correspondent aux dernières trouvées lors de la résolution numérique. On observe alors bien un comportement en loi de puissance avec un exposant de 0.34 pour la longueur et de 0.54 pour l'angle. Les déviations aux extrémités sont dues à la discrétisation numérique qui fait que nous n'avons pas les valeurs critiques exactes.

On vient de montrer que pour $M = 10^{-2}$, notre modèle théorique prévoit l'existence d'une transition d'entrainement sous la formation d'un doigt visqueux. On retrouve ainsi un résultat concordant avec les expériences issues de la littérature. Pour se convaincre que ce comportement n'est pas spécifique à cette valeur de M, on trace l'évolution de $L_{menisque}$ (figure 4.5(b)) et θ_e (figure 4.5(d)) pour des rapports de viscosité : $M = 0.1$ (vert) et $M = 0.001$ (rouge). On observe alors que les comportements à l'approche du point critique sont identiques quelque soit M et que ce mode d'invasion existe sur une large gamme de rapport de viscosité.

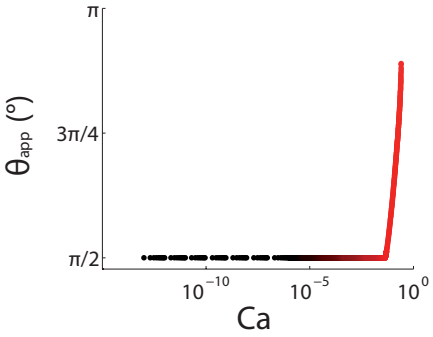
Notre modèle nous permet ainsi d'unifier les deux scénarios d'entrainements à



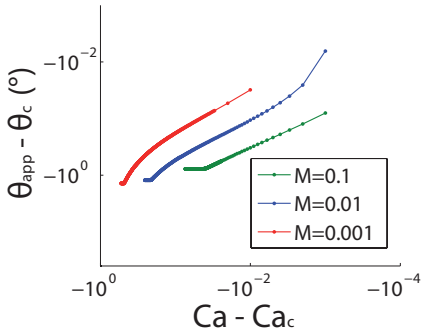
(a) Tracé de la longueur du ménisque en fonction du capillaire pour $M = 0.01$. On a une décroissance brusque proche de $Ca_c = 0.256$.



(b) Tracé de la longueur du ménisque en fonction du capillaire pour différents M. La pente des lois de puissance est identique pour les trois.



(c) Tracé de l'angle apparent en fonction du capillaire pour $M = 0.01$. On a une croissance brusque proche de $Ca_c = 0.256$.



(d) Tracé de l'angle apparent en fonction du capillaire pour différents M. La pente des lois de puissance est identique pour les trois.

FIGURE 4.5 – Évolution de la géométrie de l'interface en fonction du nombre capillaire pour $M = 0.01$, $\theta_e = 10°$ et $\lambda_l = 10^{-5}H$. Proche d'un capillaire critique Ca^*, la longueur de ménisque diminue, devient nul puis augmente dans le sens opposé. L'angle apparent augmente rapidement à l'approche de Ca^* et tend vers 180°. Au delà de Ca^*, on ne trouve plus de solution stationnaire, on a un entrainement d'un doigt d'eau à l'intérieur du fluide statique.

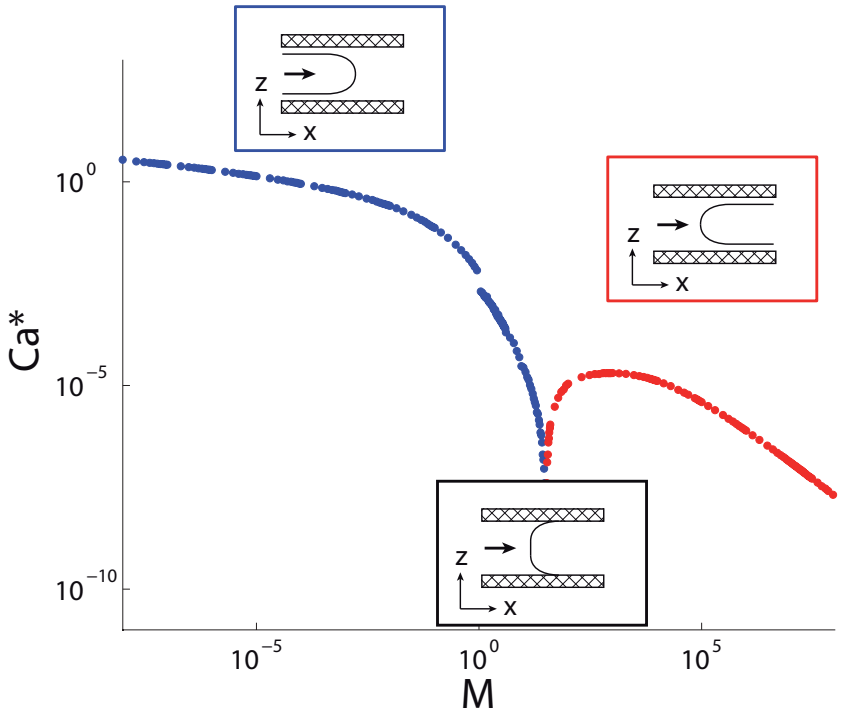


FIGURE 4.6 – Valeur critique du nombre capillaire en fonction du rapport de viscosité pour $\theta_e = 10$ et $\lambda_l = 10^{-5}H$. La courbe rouge est celle obtenue au chapitre 3 et correspond à la transition vers des films minces. La courbe bleue correspond à la transition d'entrainement vers un doigt d'eau à l'intérieur de l'huile.

l'aide d'une même théorie.

4.2.2 Diagramme de stabilité des ménisques

Pour mieux discerner les zones d'existence des deux transitions, on regroupe maintenant dans un même plan (Ca,M) les valeurs de transitions d'entrainement obtenues pour la formation d'un doigt plein, avec celles pour la formation d'un film mince. On établit ainsi un diagramme de phase complet du système (figure 4.6).

On obtient à présent deux lignes de séparation sous lesquelles le ménisque dynamique est stable. Ces deux démarcations se rejoignent pour $M = M^*$ en dessous duquel le ménisque se déstabilise sous la forme d'un doigt visqueux et au dessus duquel il se déstabilise en formant des films minces. Ce seuil en rapport de viscosité, totalement nouveau à notre connaissance, est indépendant du nombre

capillaire et ne dépend que des fluides considérés. L'influence du solide au travers de la longueur de glissement et de l'angle de contact est étudié dans une autre partie.

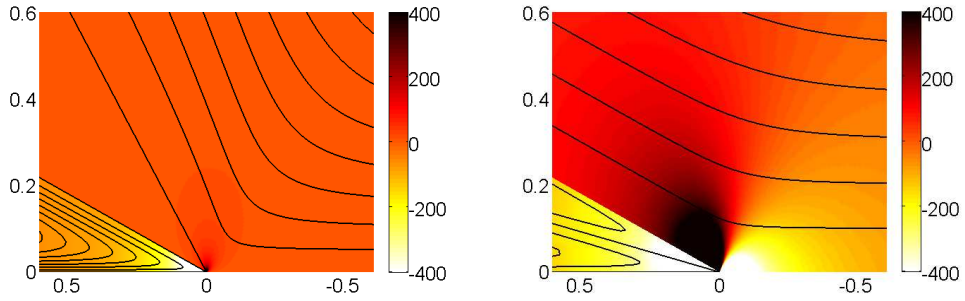
Ce diagramme se divise en trois parties, deux comportements asymptotiques pour $M \to \infty$ et $M \to 0$ et une région pour des M intermédiaires. Les comportements asymptotiques du système se comprennent qualitativement assez simplement. Pour $M \to \infty$, le fluide statique est analogue à un solide, le fluide mobile va alors le contourner et ainsi former des films minces. Pour $M \to 0$, on est dans la situation inverse où le fluide mobile est proche d'un solide, il va alors avancer au milieu du fluide statique. Cette vision, très simpliste, permet néanmoins de se faire une idée de pourquoi il existe ces deux modes d'invasion.

Pour les M intermédiaires (proche de M^*), le comportement du système reflète la compétition entre les deux phases. Plus on se rapproche de M^*, plus une très faible variation de M entraine un changement important sur le Ca^* et la forme de l'invasion. On peut expliquer ceci par le fait que quelque soit M, la divergence géométrique des contraintes au niveau de la ligne triple fait que l'on peut toujours trouver une zone suffisamment proche de la ligne de contact où σ_{eau} est comparable à σ_{huile}. En l'absence d'échelle de longueur intrinsèque au problème, une contribution à la courbure du ménisque à petite échelle se propage jusqu'à l'échelle macroscopique et impacte ainsi sur la forme globale du ménisque.

4.2.3 Écoulement dans un coin d'angle constant

La figure 4.7 montre les lignes de courant et le champs de pression dans le cas de l'écoulement dans un coin d'angle constant (obtenue à l'aide de [37]) pour deux valeurs de M, au dessus et en dessous du M^* obtenu précédemment. Ce modèle très simple est néanmoins une bonne approximation pour des échelles proches de la ligne de contact.

Pour $M < M^*$, les lignes de courant dans le fluide mobile sont parallèles à l'interface et forment une seule boucle de re-circulation. En revanche, pour $M > M^*$, elles se divisent en deux boucles et la composante radiale de la vitesse à l'interface change de signe. M^* peut ainsi être vue comme le rapport de viscosité pour lequel la composante radiale de la vitesse à l'interface s'annule. Le champ de pression nous donne lui une meilleure perception de ce qu'il se passe physiquement. En effet, pour $M > M^*$, on observe l'apparition dans le fluide statique d'une zone en forte dépression en aval de la ligne triple, favorisant ainsi la formation de films minces.



(a) $M < M^*$ (b) $M > M^*$

FIGURE 4.7 – Lignes de courant et champ de pression (unité arbitraire) pour l'écoulement d'eau dans de l'huile avec une géométrie de coin d'angle constant ($\theta_e = 20°$), obtenues par résolution des équations de [37].

4.2.4 Retour aux expériences

Les expériences réalisées jusqu'à maintenant ont permis d'observer les deux modes d'entrainement mais jamais avec le même système, ce qui ne nous permet pas de conclure sur l'existence du seuil en rapport de viscosité. Pour ce faire, le montage expérimental du chapitre 3 nous ayant déjà permis d'observer les films minces pour des M élevés, on va réaliser une expérience similaire avec un M plus faible. On espère alors observer la formation de doigt visqueux et ainsi donner une mesure approchée du M^*.

On utilise une huile silicone de très basse viscosité qui nous donne un $M = 0.65$. On se place également toujours dans une situation de mouillage pour l'eau ($\theta_e = 7°$) et on injecte cette dernière avec un débit croissant au cours du temps. On montre en figure 4.9 une série d'images issues du film de l'expérience. On remarque tout d'abord la disparition de motifs types "Saffman-Taylor" dans le plan xy ce qui se comprend très bien car nous sommes ici à $M < 1$ et donc sous le seuil de déclenchement de l'instabilité. On revient maintenant à notre objectif. Dans cette expérience, on observe initialement (pour $Q < 10\mu$L/min) un front plat et rugueux dans le plan xy et d'épaisseur d'eau constante. Puis, pour des Q plus élevés ($t > 50.52$ s), ce front reste plat mais est beaucoup moins rugueux. Également, l'épaisseur n'est plus constante (ce qui est difficile à distinguer ici), on est passé dans le régime d'entrainement d'un doigt visqueux.

La combinaison d'une situation sous le seuil de l'instabilité de Saffman-Taylor avec la présence d'une transition d'entrainement donne une dynamique d'invasion très différente des précédentes. Plusieurs caractéristiques morphologiques et dynamiques rappellent cependant des observations effectuées par S.A. Setu et al [8]

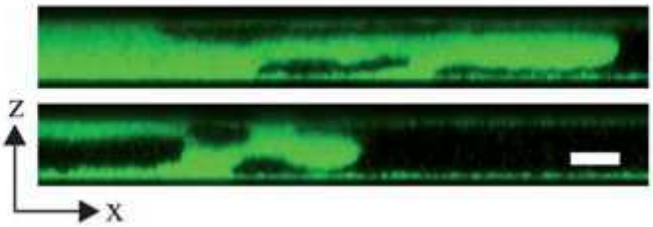
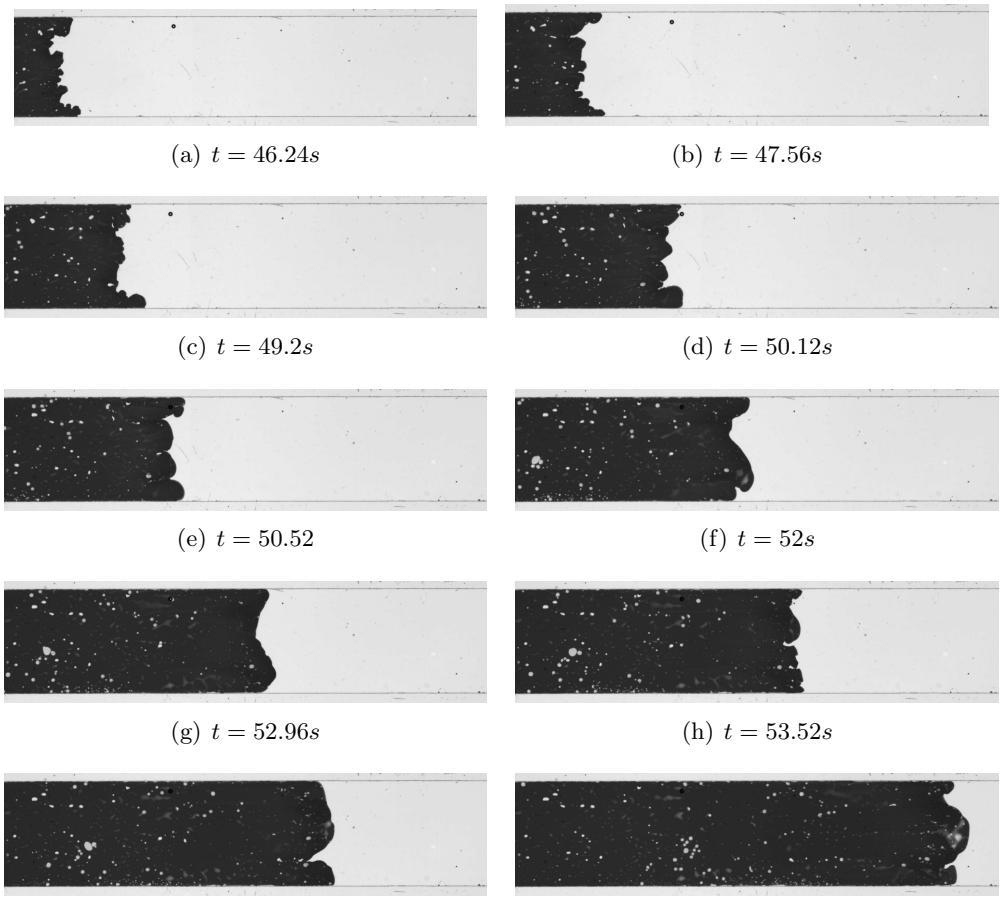


FIGURE 4.8 – Images réalisées en microscopie confocale lors d'une expérience d'imbibition, issues de D. Aarts et al [8]. Le doigt de fluide mobile à l'intérieur du fluide statique se recolle à la paroi puis se décolle à nouveau un peu plus loin.

au cours de leurs expériences en microscopie confocale. Ils ont en effet remarqué que, lors de la propagation du doigt de fluide mobile dans leur canal, celui-ci avait tendance à se recoller à la paroi puis à se décoller à nouveau et ainsi de suite (4.8). Ce phénomène entrainait alors le piégeage de poches de fluides statiques le long de la paroi et également au milieu du fluide mobile. Ces poches d'huile sont effectivement présentes dans notre expérience, la figure 4.10 présente un zoom sur la création d'une de ces zones. Au moment où le front d'eau avance, il laisse derrière lui une bande plus clair sur l'image (indiquée par la flèche rouge) correspondant à une zone d'huile piégée (figure (a),(b)et(c)). Cette zone avance ensuite avec une vitesse proche de celle du front et prend progressivement une forme sphérique (figure (d)à(i)). On note également sur ces images, la présence de nombreuses autres poches d'huile collées à la paroi en amont du front d'eau. La présence de ces zones d'huile nous indique que nous sommes bien en présence d'une invasion sous forme de doigt et que l'eau avance en se détachant et en se rattachant de la paroi.

La forme du front d'eau macroscopique en figure 4.9 nous montre également ce processus d'accrochage/décrochage. Sur les images (a) à (c), le front est très rugueux, on est en présence d'une interface sous forme de ménisque et la rugosité est alors due aux hétérogénéités de mouillage. Pour les images (d) à (f), le front d'eau devient beaucoup plus lisse, il s'est décollé de la paroi ce qui fait qu'il ne sent plus les hétérogénéités de la surface. On peut regarder en particulier la figure (e) où la forme de l'interface rappelle la formation de trois doigts type digitation visqueuse. Sur les figures (g) à (i), on retrouve une rugosité plus prononcée (en particulier sur la figure (h)), le doigt d'eau s'est en fait recollé à la paroi et il sent à nouveau les hétérogénéités de mouillage. Enfin, sur la figure (j), le front est à nouveau décollé de la surface.

Cette expérience, combinée à celles du chapitre 3, confirme sans ambiguïté l'existence d'un seuil en viscosité séparant deux scénarios d'entrainement : le premier sous la forme d'un doigt visqueux au centre du canal et le second sous la forme



(a) $t = 46.24s$ (b) $t = 47.56s$

(c) $t = 49.2s$ (d) $t = 50.12s$

(e) $t = 50.52$ (f) $t = 52s$

(g) $t = 52.96s$ (h) $t = 53.52s$

(i) $t = 54.64s$ (j) $t = 57.4s$

FIGURE 4.9 – Images issues d'une expérience d'invasion en régime d'imbibition dans une cellule de Hele-Shaw pour $\theta_e = 7°$ et $M = 0.65$. Le débit est augmenté au cours du temps afin de dépasser le seuil d'entrainement. On observe initialement un front très rugueux signe que l'eau est collée à la paroi. Ce front devient ensuite beaucoup plus lisse, on a formation d'un doigt d'eau à l'intérieur de l'huile. Ce scénario est également confirmé par la présence d'une multitude de zones d'huile piégée dans l'eau.

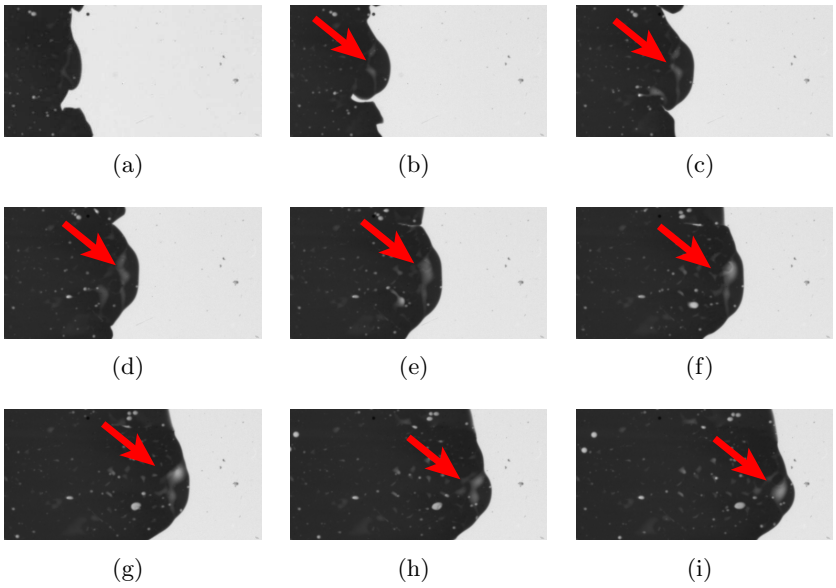


FIGURE 4.10 – Images illustrant le piégeage d'une zone d'huile (indiquée par la flèche rouge) dans l'écoulement de l'eau lors de l'expérience d'imbibition pour $M = 0.65$.

de film mince d'eau le long des parois. Pour les conditions de notre expérience, ce seuil est alors situé entre : $0.65 < M^* < 5$. Pour terminer sur l'influence du rapport de viscosité, on peut re-situer en terme de M l'ensemble des expériences d'avancées d'un ménisque du tableau 4.2 sur le diagramme de phase théorique établi précédemment (figure 4.11). On y représente que les cas où le fluide mobile mouille les parois, situations qui correspondent aux conditions d'établissement du diagramme théorique. On peut observer que, malgré le fait que les fluides et solides soient différents, les différentes expériences sont bien situées dans les zones attendues.

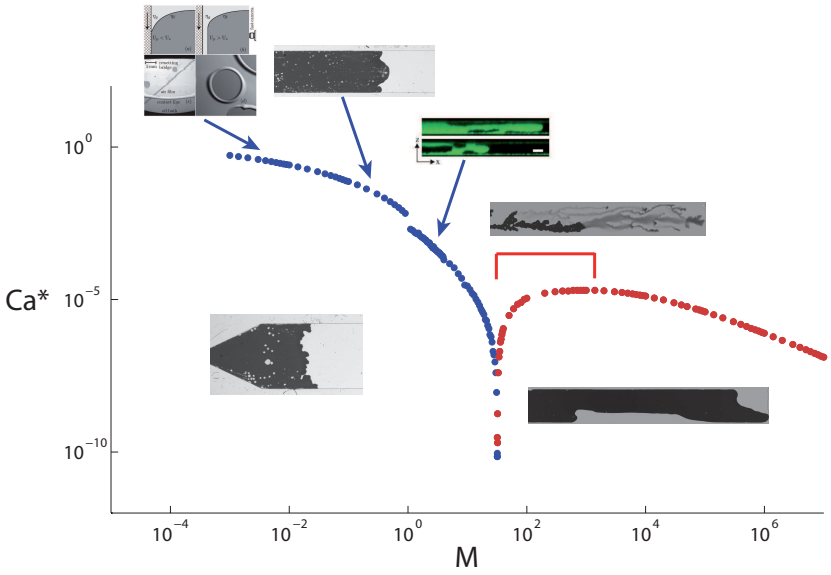


FIGURE 4.11 – Diagramme de stabilité du ménisque obtenu par résolution numérique sur lequel sont superposées différentes expériences d'imbibitions à travers leur rapport de viscosité.

EN RÉSUMÉ

- On résout le modèle théorique du chapitre 3 pour des rapports de viscosité plus faible afin de retrouver la transition d'entrainement sous forme de doigt visqueux. On capture ainsi les deux transitions à l'aide d'une même théorie en variant uniquement les paramètres de contrôle.
- On trace alors un diagramme de stabilité des ménisques contenant maintenant les deux transitions. Celui-ci met en évidence un rapport de viscosité seuil M^* séparant les deux transitions.
- On réalise enfin une expérience identique à celle du chapitre 3 en utilisant un rapport de viscosité très faible. On observe une transition d'entrainement de type doigt visqueux, on montre ainsi sans ambiguïté, l'existence de M^* et on en mesure une valeur approchée pour notre système.

4.3 Influence des interactions microscopiques liquides substrat : angle de contact et longueur de glissement

On a vu précédemment que le nombre capillaire détermine uniquement le moment à partir duquel l'entrainement de liquide se produit. Il n'a aucun impact sur la forme de l'entrainement. Le rapport de viscosité influence en revanche non seulement le déclenchement du seuil, mais également détermine si l'entrainement se fait sous forme d'un film mince ou d'un doigt visqueux. Il reste maintenant à comprendre l'impact du solide sur ces entrainements, on étudie tout d'abord l'effet de la longueur de glissement, puis celui de l'angle de contact à l'équilibre.

4.3.1 Influence de la longueur de glissement

Pour étudier l'effet de la longueur de glissement, on calcule le diagramme de stabilité des ménisques pour des valeurs de λ_l/H de 10^{-3}, 10^{-4} et 10^{-6} (figure 4.12). On observe que la forme des diagrammes ne change pas quelque soit la valeur de λ et M^* reste notamment constant. Le seul changement observé concerne les valeurs de Ca^* qui sont augmentées lorsque λ augmente. Ce comportement était attendu. En effet, une augmentation de la longueur de glissement correspond à une augmentation de la vitesse des fluides à la paroi, la ligne triple arrive ainsi à suivre l'avancée en volume des liquides pour des vitesses plus élevées. λ ne modifiant pas le rapport des dissipations entre les deux fluides, on comprend bien qu'il n'y a pas de raison que cela modifie M^*, ni les valeurs de transition vers les régimes asymptotiques.

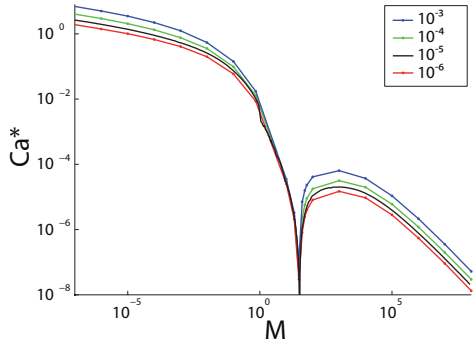


FIGURE 4.12 – Diagramme de stabilité des ménisques pour différentes valeurs de λ/H pour un angle de contact à l'équilibre de $\theta_e = 7°$. Seules les valeurs de Ca^* sont modifiés et augmentent avec la longueur de glissement.

4.3.2 Influence de l'angle de contact à l'équilibre

Étude numérique

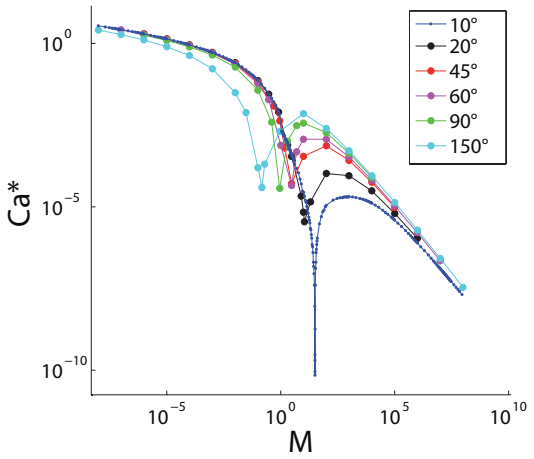


FIGURE 4.13 – Diagramme de stabilité des ménisques pour différents angles de contact avec une longueur de glissement de $\lambda_l = 10^{-5}H$. On observe un décalage de M^* vers les valeurs basses. Les comportements asymptotiques restent cependant identiques.

On regarde à présent l'influence de l'angle de contact sur les transitions d'entrainement. On calcule alors le diagramme de stabilité des ménisques pour différents angles de contact (figure 4.13). On remarque tout d'abord que la forme générale du diagramme est conservée pour l'ensemble des angles de contact. Les comportements asymptotiques sont notamment identiques, ce qui sous-entend que l'angle de contact n'est plus un paramètre important lorsque la viscosité d'un des deux fluides est largement supérieure à l'autre. Cela est bien en accord avec l'explication qualitative exposée dans la section précédente. Les changements du diagramme interviennent pour des rapports de viscosité intermédiaires. Lorsque l'on augmente l'angle de contact, le seuil en nombre capillaire diminue pour $M < M^*$, il augmente à l'inverse pour $M > M^*$. Augmenter l'angle de contact favorise ainsi l'entrainement de doigts visqueux et défavorise les films minces.

On remarque également que le seuil en rapport de viscosité M^* se décale vers les bas M lorsque l'angle de contact augmente. On représente en figure 4.14 les valeurs de M^* pour différents angles de contact (cercle bleu). La décroissance de M^* est assez surprenante, on s'attendrait plutôt à ce qu'une augmentation de l'angle de contact favorise la formation de doigts visqueux et donc augmente la valeur de M^*.

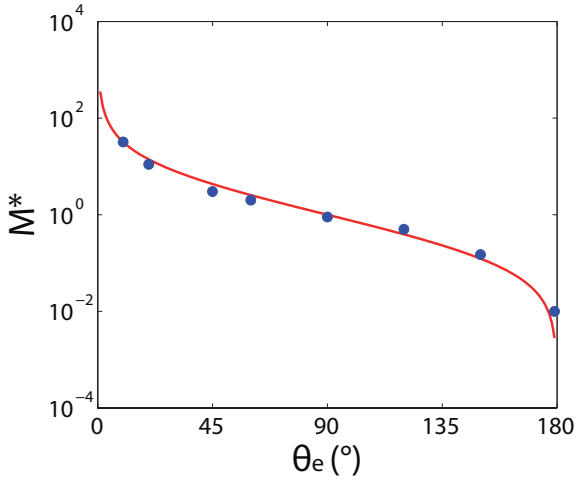


FIGURE 4.14 – *Marqueur* : rapport de viscosité critique M^* en fonction de l'angle de contact à l'équilibre θ_e obtenu lors de la résolution numérique. *Ligne rouge* : valeur de M correspondant à la singularité de la fonction $f(\theta, M)$.

Étude expérimentale

Pour vérifier l'influence de l'angle de contact prédit par le modèle, on effectue une expérience similaire aux précédentes en utilisant cependant un angle de contact plus élevé, ici d'environ 60°. On fixe $M = 1000$ et on augmente progressivement le Ca jusqu'à franchir le seuil d'entrainement (figure 4.15). Dans un premier temps, le fluide se comporte comme dans les expériences de drainages du chapitre 3. L'eau remplit entièrement l'épaisseur du canal et reste collée à un des bords du canal. Puis, au delà d'un débit seuil, on observe que l'épaisseur d'eau diminue et que le doigt se détache du bord en scotch. Ce dernier prend également une forme très proche d'un doigt de Saffman-Taylor. Pour bien se convaincre que l'on a formation d'un doigt visqueux, on peut constater sur les dernières images le re-mouillage de l'eau sur les deux parois. Le fait d'augmenter l'angle de contact nous a donc fait passer d'un scénario d'entrainement par film mince à celui de la formation d'un doigt visqueux, le seuil en rapport de viscosité a ainsi augmenté.

Les expériences de Landeau-Levich [39] et de Saffman-Taylor en drainage [89] pour lesquelles les paramètres de contrôles sont : $\theta_e > 120$ et $M \sim 10^3$ montrent également la création de doigts visqueux et confirment que M^* augmente bien avec θ_e. Le modèle théorique ne prévoit donc pas bien le comportement de M^* avec θ_e. Pour comprendre d'où provient l'erreur, on représente sur la figure 4.14 la valeur du rapport de viscosité correspondant à la singularité de la fonction $f(\theta, M)$ pour chaque angle θ_e (ligne rouge). On voit alors que la valeur de M^*

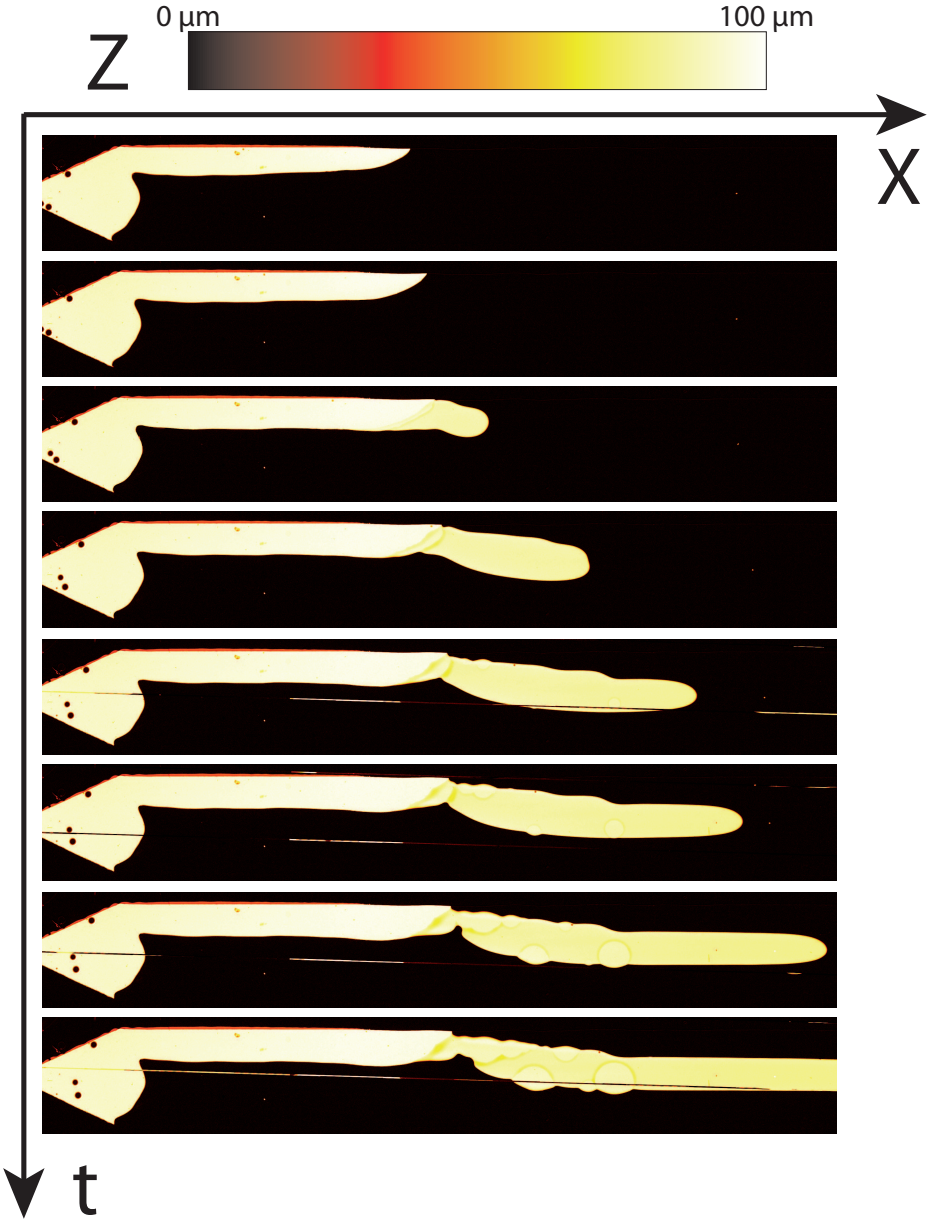


FIGURE 4.15 – Images issues d'une expérience d'invasion en régime d'imbibition dans une cellule de Hele-Shaw pour $\theta_e \sim 60°$ et $M = 1000$ et avec un débit croissant. Au delà d'un débit seuil, un doigt d'eau se développe à l'intérieur de l'huile et prend une forme typique d'un doigt de Saffman-Taylor.

correspond parfaitement à cette valeur. Les singularités mathématiques dans les équations physiques signalent habituellement qu'une des hypothèses du modèle n'est pas correcte. Dans notre cas, l'hypothèse que l'écoulement en chaque point est assimilé à celui dans un coin semble être la coupable le plus probable car c'est de là que provient cette singularité.

EN RÉSUMÉ

- On étudie l'influence de l'angle de contact sur les transitions d'entrainement. La résolution de notre modèle théorique montre une décroissance de M^* lorsque θ_e augmente.
- Une expérience similaire à celle du chapitre 3 avec un angle de contact plus élevé montre une évolution inverse de M^*, en accord avec les expériences issues de la littérature.
- L'hypothèse permettant de calculer les gradients de contraintes n'est plus valide pour des angles élevés. On peut néanmoins toujours utiliser le modèle pour des angles faibles comme le montre le bon accord avec les expériences des chapitres précédents.

4.4 Conclusion

Au cours de ce chapitre, on a pu unifier à l'aide d'une seule théorie les transitions d'entrainement reportées dans la littérature et dans le chapitre 3. On a alors montré l'existence d'un rapport de viscosité critique déterminant le choix du mode d'invasion choisi par le système. Ce rapport M^* ne dépend alors que des propriétés thermodynamiques des fluides et du solide (angle de contact).

Pour conclure sur ces chapitres 3 et 4, on peut à présent répondre aux différentes questions que l'on s'était posé en introduction, à savoir :

QUESTIONS

- Est-il possible d'observer la transition d'entraînement en milieu confiné pour $M \gg 1$ et des angles de contact faibles ?
- Le seuil d'entraînement en milieu confiné suit-il toujours les lois observées dans la littérature ?
- Comment cette transition influe sur les dynamiques d'invasion en milieu poreux ?

On a pu voir qu'il existait bien une transition d'entrainement pour $M \gg 1$ et un θ_e faible. Cependant celle-ci est alors totalement différente de celle reportée dans [8, 40, 42]. Dans la limite des grands M, l'entrainement se fait par création de films minces le long des parois. Le seuil d'entrainement dépend alors de façon non monotone du rapport de viscosité. Pour le régime asymptotique ($M \gg 1$), il tend vers une loi $Ca^* \propto M^{-2}$, une décroissance bien plus rapide que celle attendue théoriquement $Ca^* \propto M^{-1}$.

Du point de vue de l'écoulement global dans la cellule, on observe que ce nouveau régime d'entrainement change complètement le motif d'invasion. Au lieu de former un doigt visqueux semblable à celui de Saffman-Taylor, le fluide mobile avance sous la forme de doigts très rugueux, plus fins et d'épaisseurs hétérogènes. Cette dynamique d'invasion totalement nouvelle laisse penser que l'imbibition en milieu poreux sera elle aussi différente de ce qui est observé pour des M faibles. L'étude de l'imbibition en milieu poreux est l'objet du 5eme et dernier chapitre de cette thèse.

CHAPITRE 5

Dynamique d'imbibition dans des poreux modèles

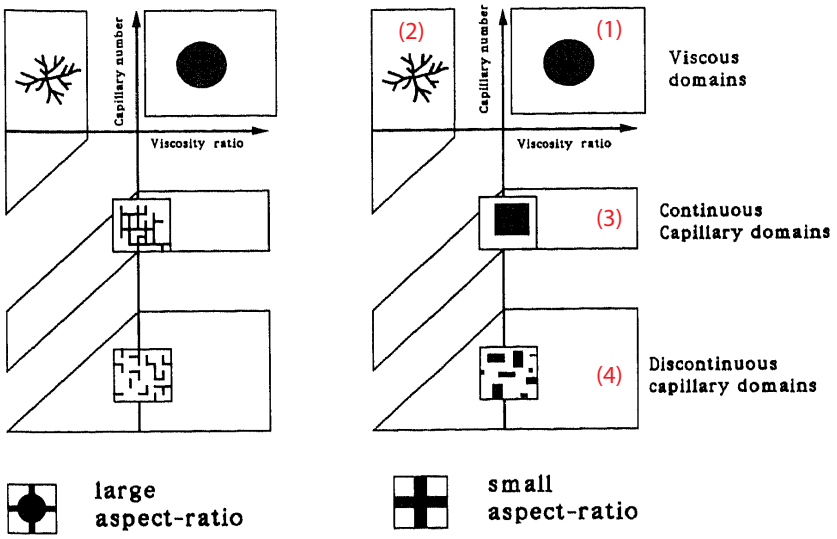


FIGURE 5.1 – Diagramme de phase établi par R. Lenormand et al [44] décrivant les morphologies des motifs d'invasion dans le régime d'imbibition.

5.1 Introduction

On a, jusqu'à présent, étudié l'imbibition uniquement dans une géométrie de type cellule de Hele-Shaw. Cette géométrie n'est cependant pas forcément représentative de ce qu'il existe dans la nature, notamment pour des procédés industriels telle que la récupération assistée du pétrole. Dans ces procédés, l'imbibition se déroule à l'intérieur de roches poreuses présentant des géométries beaucoup plus complexes. Ces milieux poreux ont été l'objet de nombreuses recherches (cf introduction). Pour rappel, R. Lenormand [44] a notamment conjecturé sur la base d'expériences et d'arguments heuristiques l'existence d'une multitude de modes d'invasions lors de l'injection d'un fluide dans un poreux rempli par un second fluide non miscible.

Le diagramme de la figure 5.1 montre les zones d'existence des différents types d'invasion dans le plan (Ca,M). Comme on a pu le voir dans l'introduction, ces différentes phases correspondent à des cas où l'avancée du fluide est dû, soit au forçage extérieur (phase (1) et (2)), soit à la pression capillaire des canaux constituant le poreux (phase (3)). La phase (4) correspond également à une invasion de type capillaire, mais où l'écoulement de la phase mobile est supposée se faire dans les coins des canaux. Cependant, aucune preuve expérimentale n'a été apportée jusqu'à présent sur l'existence de ces films. De plus, aucune expérience n'a validé

ce diagramme pour le cas des M élevés. Dans ce dernier chapitre, on regardera ainsi si ce diagramme est toujours valide dans le cas où $M \gg 1$.

Pour cela, on réalise dans un premier temps des expériences similaires à celles des chapitres précédents avec des géométries de poreux modèles. Ces expériences mettent en évidence une nouvelle phase d'invasion où l'eau envahit le poreux par création de films minces. Pour comprendre cette nouvelle phase, on s'intéresse, dans un second temps, à la dynamique d'invasion à l'échelle des pores et notamment à un nouveau mode où l'eau se propage en remplissant les contours des obstacles de proche en proche. La compréhension de cette nouvelle dynamique permet alors d'établir un critère géométrique délimitant la frontière de ce nouveau régime.

5.2 Transition d'entrainement en géométrie poreux

5.2.1 Choix du motif poreux et protocole expérimental

Les milieux poreux naturels ont des géométries très complexes constituées en général d'un réseau de pores connectés entre eux et dont les tailles peuvent varier de plusieurs ordres de grandeurs (figure 5.2). Utiliser directement de tels réseaux pour étudier l'imbibition étant extrêmement compliqué, on choisit à la place de réaliser un poreux modèle ayant des pores de tailles identiques et possédant tous la même connectivité. Pour cela, on réalise à l'aide des techniques micro-fluidiques développées au chapitre 1 un réseau d'obstacles carrés régulièrement espacés (figure 5.3). Les pores ont une taille de $80\,\mu$m de côté, leur connectivité est de 4, la distance entre deux pores est de $200\,\mu$m et la hauteur du dispositif est de $70\,\mu$m.

Pour réaliser nos expériences, on se base sur le même protocole expérimental que dans les chapitres précédents avec notamment la préparation de l'état initial à l'aide d'une jonction en T afin d'avoir un front net au moment de l'injection de la phase aqueuse pour mobiliser l'huile piégée dans le réseau. Les fluides utilisés sont toujours de l'eau contenant un colorant et du SDS et des huiles silicones de viscosités variables. On se place dans le régime de l'imbibition en imposant un angle de contact pour le système eau/huile silicone/NOA de $\theta_e = 7°$ à l'aide de la méthode de traitement de surface expliquée au chapitre 2. Enfin, on s'intéresse principalement au rôle du rapport de viscosité, c'est pourquoi on réalise toutes nos expériences au même débit $Q = 1\mu$L/min et on fait varier M de 5 à 3500. Enfin, on ne recycle pas les dispositifs micro-fluidiques afin de ne pas polluer le traitement de surface par des résidus des précédentes expériences, chaque point de mesure correspond ainsi à un dispositif expérimental.

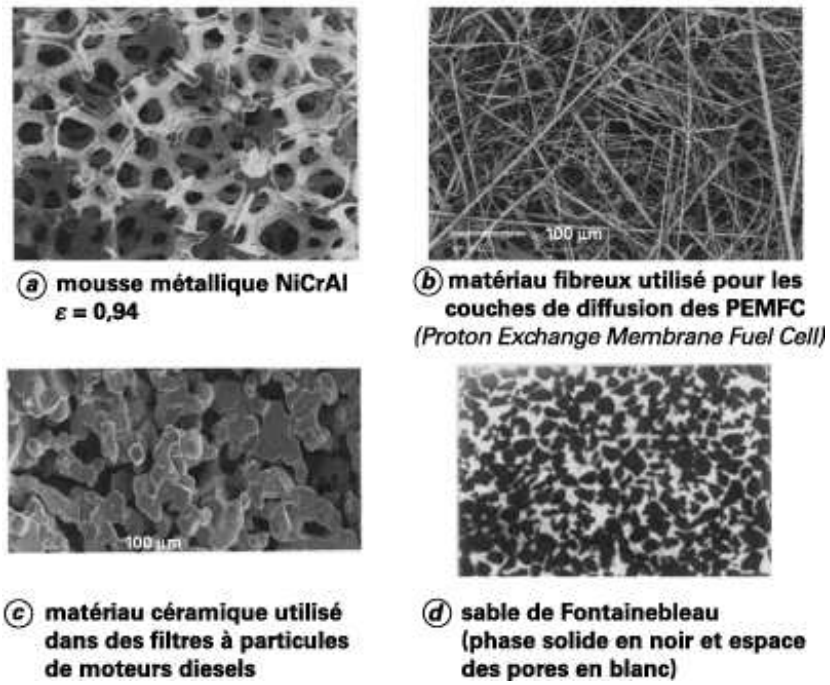


FIGURE 5.2 – Images de poreux présentant des géométries très variées.

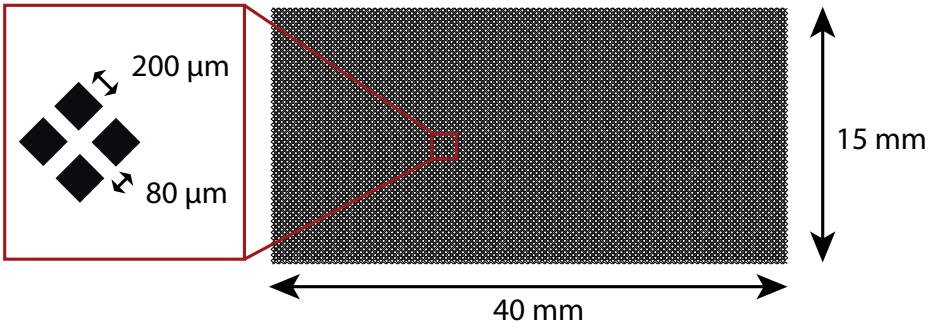


FIGURE 5.3 – Géométrie du poreux modèle utilisé pour nos expériences en microfluidique. Ces dispositifs sont réalisés à l'aide de la technique de "soft imprint" présentée au chapitre 1.

5.2.2 Motif d'imbibition dans un poreux modèle.

On montre en figure 5.4 la dynamique d'imbibition du réseau poreux modèle pour $M = 5$. L'eau envahit le poreux en suivant un front d'invasion plat à grande échelle, elle remplit ainsi intégralement l'espace accessible entre les obstacles. Il est également intéressant de remarquer que ce front présente une rugosité faible. Enfin, grâce au code couleur symbolisant l'épaisseur d'eau, on voit que l'eau remplit toute la hauteur du canal lors de son avancée. Si on regarde maintenant les motifs d'imbibition pour $M = 100$ (figure 5.5), on constate que l'invasion est totalement différente. On observe dès l'entrée dans le poreux la formation de plusieurs doigts se propageant jusqu'à la sortie. De plus, le front de ces doigts est beaucoup plus rugueux que le front pour $M = 5$. Enfin, l'épaisseur de ces doigts est maintenant plus faible, autour de $40\,\mu$m, et leur vitesse plus importante : on atteint la percolation environ deux fois plus rapidement que pour $M = 5$. Pour se faire une meilleur idée du passage entre ces deux morphologies d'invasion, on représente en figure 5.6 les motifs d'imbibition obtenus au moment de la percolation pour des rapports de viscosités de 5 à 3500. On observe, pour le motif d'invasion dans le plan xy, une augmentation progressive du nombre de doigts se propageant dans le poreux et une diminution de leur largeur. Le changement de rugosité du front est lui beaucoup plus marqué et a lieu autour de $M = 23$. Sous cette valeur, l'échelle de rugosité du front est de l'ordre d'une dizaine d'obstacles, elle chute brutalement au delà et devient de l'ordre de quelque obstacles. Enfin, le changement d'épaisseur des zones d'eau est lui aussi très marqué et a lieu à partir de $M = 23$. Sous cette valeur, l'épaisseur est constante et est égale à la hauteur du canal. Au delà, elle devient plus petite et semble diminuer lorsque le rapport de viscosité augmente.

Ce changement simultané de morphologie d'invasion et d'épaisseur d'eau est semblable aux observations effectuées pour la transition d'entrainement vers des films minces en cellule de Hele-Shaw. On va ainsi caractériser plus en détail ces motifs d'imbibition pour voir si la déstabilisation du ménisque est bien à l'origine de ce changement de comportement.

5.2.3 Caractérisation des hétérogénéités d'épaisseur d'eau

De la même façon qu'au chapitre 2, on regarde dans un premier temps l'évolution spatio-temporelle des hauteurs d'eau. Pour cela on calcule $< h(x,t) >_y$ pour chaque valeur de x et on le représente en fonction du temps. La figure 5.7 montre les résultats obtenus pour des valeurs de $M = 5$ (figure 5.7(a)), 23 (figure 5.7(b)) et 100 (figure 5.7(c)). Ces trois spatio-temporels sont très similaires, après une inflexion initiale dû à la géométrie particulière de l'entrée, le front de l'eau suit une droite qui nous indique que sa vitesse est constante et, comme remarqué

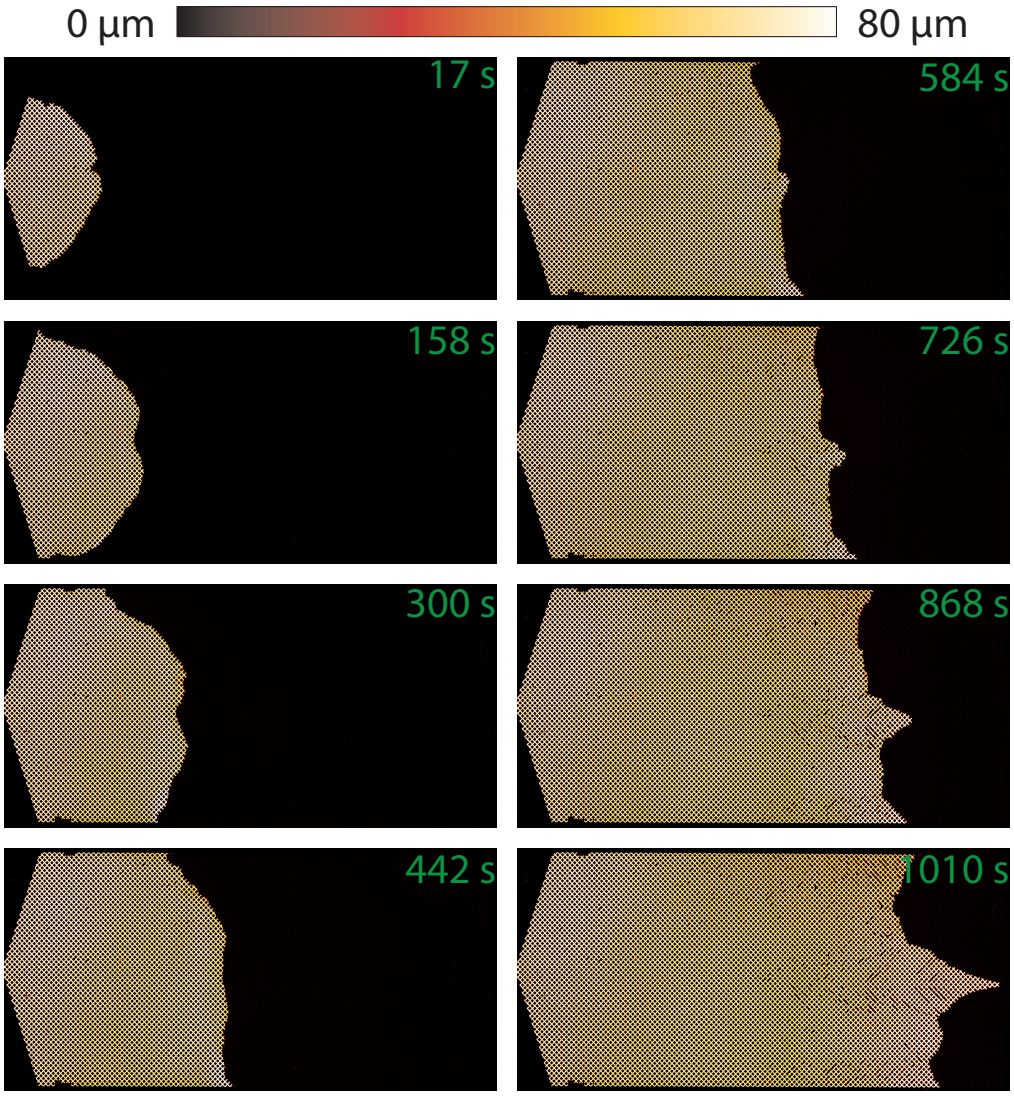


FIGURE 5.4 – Images issues d'une expérience d'invasion en régime d'imbibition dans un poreux modèle pour $Q = 1\,\mu$L/min, $\theta_e = 7°$ et $M = 5$. L'épaisseur d'eau est constante au cours de l'expérience et remplit entièrement la hauteur du canal. Le front d'eau est plat et avance à vitesse constante.

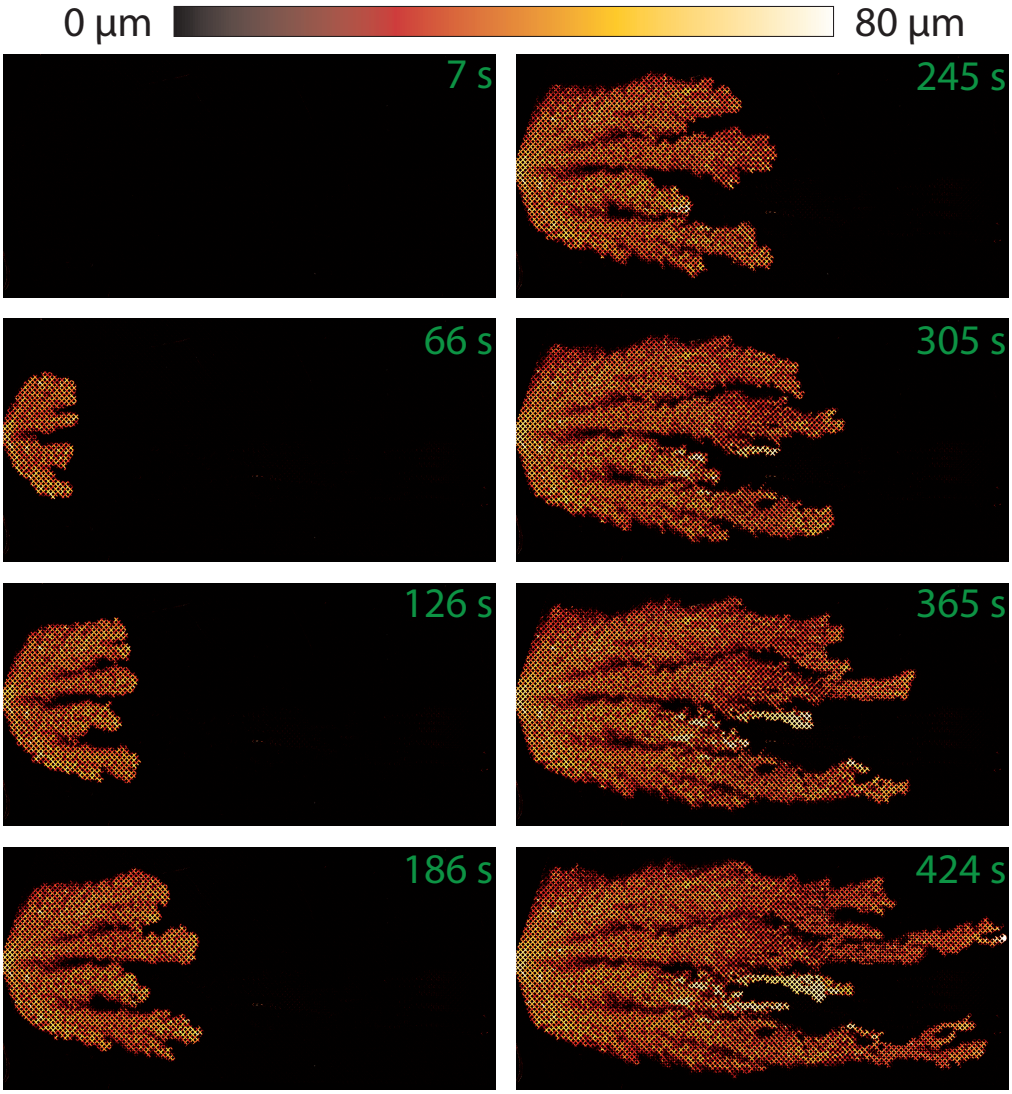


FIGURE 5.5 – Images issues d'une expérience d'invasion en régime d'imbibition dans un poreux modèle pour $Q = 1\,\mu\mathrm{L/min}$, $\theta_e = 7°$ et $M = 100$. L'eau envahit le poreux sous la forme de plusieurs doigts dont l'épaisseur est inférieure à la hauteur du canal. La rugosité de ses doigts est également beaucoup plus élevée que pour $M = 5$.

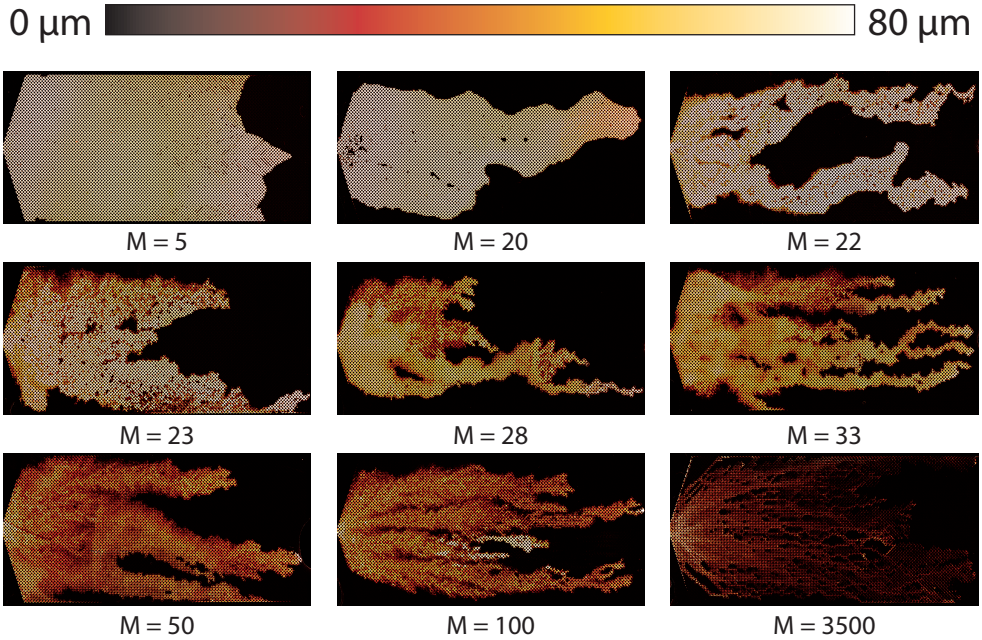
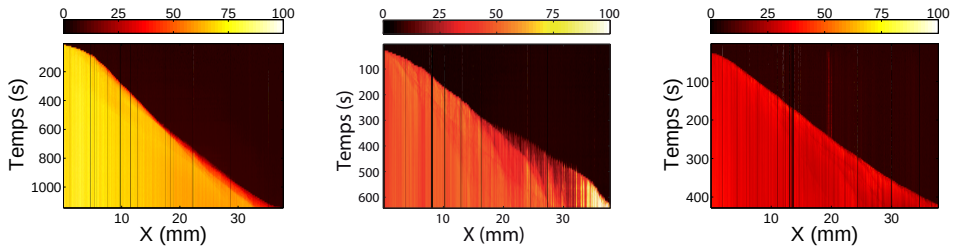


FIGURE 5.6 – Images au moment de la percolation pour plusieurs expériences d'imbibitions dans un poreux modèle pour $\theta_e = 7°$ et $Q = 1\,\mu$L/min. Le rapport de viscosité est varié sur pratiquement trois ordres de grandeurs. On observe, dans le plan xy, l'apparition progressive de doigts d'eau dont les épaisseurs diminuent avec la viscosité.



(a) $M = 5$ (b) $M = 23$ (c) $M = 100$

FIGURE 5.7 – Diagrammes spatio-temporels de la moyenne suivant y des épaisseurs d'eau pour trois débits. L'échelle du niveau de hauteur est en μm. Pour $M = 5\,\mu$L/min, l'eau envahit intégralement la hauteur du canal et avance à vitesse constante. Pour $M = 23\,\mu$L/min, ces épaisseurs d'eau deviennent inférieures à celle du canal, mais restent cependant identiques tout le long du canal. Pour $M = 100\,\mu$L/min, l'invasion est identique à (b) mais avec des épaisseurs plus faibles.

précédemment, on voit qu'elle augmente avec le rapport de viscosité. Le point le plus remarquable est que, pour les trois M, la hauteur moyenne suivant y d'eau est constante quelque soit l'endroit et le temps de l'expérience. On a ici une différence importante avec la transition vers les films minces discutée dans le chapitre précédent dans un canal de type Hele-Shaw où un bourrelet d'eau se propageait en aval de l'invasion. Enfin, on note que les moyennes suivant y des épaisseurs d'eau diminuent lorsque l'on augmente le rapport de viscosité : on passe d'une hauteur de $75\,\mu$m à $\sim 60\,\mu$m puis $\sim 30\,\mu$m.

5.2.4 Distribution des hauteurs d'eau

Pour $M > 23$, le fait que les moyennes suivant y des épaisseurs soient constantes est assez étonnant car on observe, sur les images à la percolation de la figure 5.6, que plusieurs hauteurs coexistent. Pour caractériser plus en détails ces différentes épaisseurs, on mesure à présent la distribution des hauteurs $\mathcal{P}(h\,(x, y))$ au moment de la percolation (figure 5.8). Pour $M = 5$, on observe deux pics, celui à droite est centré autour de $70\,\mu$m et correspond à l'avancée de l'eau remplissant intégralement la hauteur du canal. Le pic à gauche correspond, comme au chapitre 2, aux ménisques des fronts d'eau et est donc toujours présent. Pour $M = 23$, on observe, en plus des deux pics précédents, la présence de l'ensemble des hauteurs entre 5 et $70\,\mu$m. Pour $M = 100$, on n'observe plus de pic correspondant à la hauteur du canal. De même, les épaisseurs au delà de $50\,\mu$m sont beaucoup moins présentes. Enfin, pour $M = 3500$, il n'y a plus qu'un seul pic large centré sur les faibles

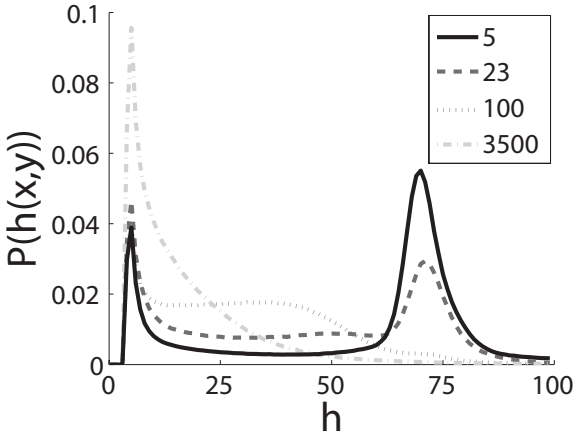


FIGURE 5.8 – Distribution des épaisseurs d'eau au moment de la percolation dans un régime d'imbibition pour $\theta_e = 7°$, $Q = 1\,\mu$L/min. Pour tous les M, on observe un pic à gauche correspondant aux contours des zones d'eau. Pour $M = 5$ et 23, on observe un pic à droite (75 μm) correspondant à de l'eau remplissant intégralement l'épaisseur du canal. Pour $M \geq 23$, les épaisseurs intermédiaires apparaissent et sont de plus en plus faibles à mesure que M augmente.

épaisseurs. On observe ainsi une diminution de l'épaisseur des films d'eau lorsque l'on augmente le rapport de viscosité. Pour caractériser cela plus précisément, on mesure la moyenne des épaisseurs d'eau $< h\,(x, y) >$ et ceci pour chaque M. On réalise cependant cette moyenne uniquement sur des épaisseurs supérieures à 10 μm pour s'affranchir du premier pic, les valeurs obtenues surestiment ainsi les valeurs réelles de hauteur notamment pour les grands rapports de viscosité. On observe bien sur la figure 5.9 une décroissance importante de l'épaisseur pour des $M > 23$.

Les observations et mesures précédentes nous montrent que l'on est en présence d'un phénomène de transition similaire à celui observé lors de l'entrainement de films minces avec notamment un changement morphologique très marqué et la propagation de doigt d'eau d'épaisseur plus faible que la hauteur du canal. Cependant, l'analyse des spatio-temporels ainsi que des distributions de hauteurs montre un certain nombre de différences probablement dues à la présence des obstacles.

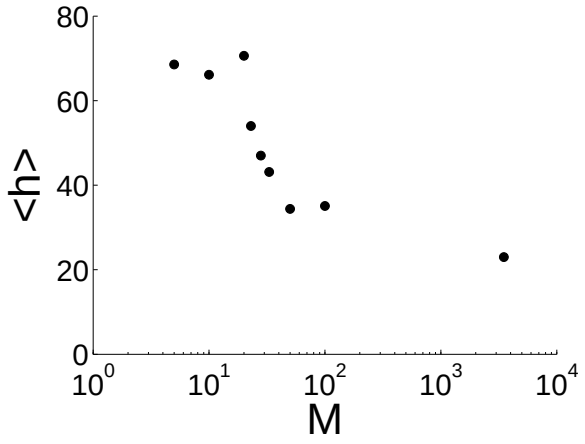


FIGURE 5.9 – Mesure de la hauteur moyenne des épaisseurs d'eau lors d'expérience d'imbibition en poreux modèle. Au dessus de $M = 22$, l'épaisseur moyenne chute très rapidement puis continue de diminuer lorsque l'on augmente encore M.

5.3 Dynamique d'invasion

Pour comprendre d'où proviennent ces différences, on s'intéresse à présent à la dynamique d'invasion à l'échelle du pore.

5.3.1 Régime de drainage

Pour le régime de drainage ($\theta_e > 120°$), le processus d'invasion est bien connu dans la littérature. Le fluide mobile est stoppé à chaque entrée de canal (constriction) jusqu'à ce que la différence de pression entre les deux fluides dépasse la pression capillaire [44, 20]. Une fois la constriction passée, le fluide progresse jusqu'à la suivante. En présence de plusieurs constrictions, le fluide choisit toujours celle dont la pression capillaire est la plus faible, c'est à dire dont la taille du canal est la plus grande. On montre en figure 5.10 une séquence d'images correspondant à une expérience de drainage réalisée à l'aide de notre dispositif expérimental. L'angle de contact est $\theta_e \sim 120°$, le rapport de viscosité $M = 300$ et le débit $Q = 2\,\mu$L/min. Dans notre cas les canaux ayant tous la même taille, le fluide mobile n'est plus arrêté par les constrictions une fois rentré dans le poreux. C'est bien ce que l'on observe en figure 5.10 où le fluide mobile progresse en tout point de façon continue.

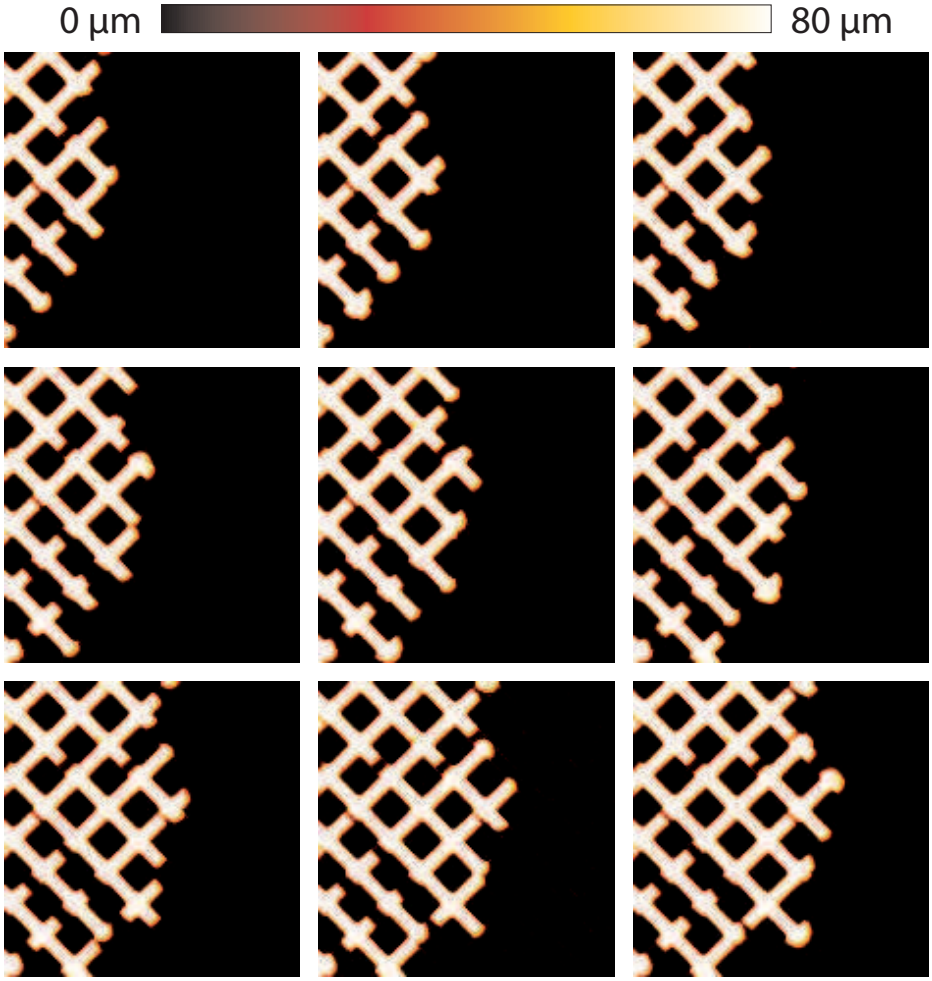


FIGURE 5.10 – Images zoomées lors de l'invasion du poreux modèle dans le régime de drainage pour $Q = 2\,\mu\mathrm{L/min}$, $M = 300$ et $\theta_e \sim 120°$. Le temps entre deux image est de 1 s. On observe que l'eau avance sous la forme d'un front comme s'il n'y avait pas d'obstacle.

5.3.2 Régime d'imbibition

Cas des faibles rapports de viscosités

La dynamique d'invasion à l'échelle du pore en régime d'imbibition est aussi en partie connue dans la littérature [46, 44, 84, 47]. La différence majeure provient du fait que la pression capillaire n'est maintenant plus un obstacle à l'invasion, mais devient un moteur de l'écoulement. Le fluide mobile envahit dans ce cas les canaux dont la largeur est la plus faible et s'arrête lorsqu'il rencontre une zone dont la largeur est plus grande. Ce processus d'invasion implique que le fluide envahit le poreux en suivant la géométrie des obstacles et, dans le cas de réseaux réguliers comme le nôtre, l'invasion se fait alors ligne par ligne. On montre en figure 5.11 une séquence d'image correspondant à une expérience en régime d'imbibition avec $\theta_e \sim 7°$, $M = 20$ et $Q = 1\,\mu$L/min. Sur la première image, l'eau a pénétré dans un canal d'une nouvelle ligne et s'est arrêtée au niveau du pore suivant. L'eau gonfle ensuite jusqu'à toucher l'angle de l'obstacle situé à côté sur la même ligne et envahit alors les canaux adjacents à cet obstacle. L'invasion se poursuit de la même façon jusqu'à avoir rempli entièrement la ligne ou jusqu'à ce qu'un canal d'une nouvelle ligne soit envahi au moment du gonflement. Cet envahissement de pore correspond à un processus d'imprégnation, déjà décrit dans [47], qui permet d'obtenir la phase (3) du diagramme 5.1. Nos expériences à faible rapport de viscosité correspondent ainsi à la phase *continuous capillary domains* de ce diagramme.

Cas des grands rapports de viscosités

Pour comprendre ce qu'il se passe au delà de la transition, on montre en figure 5.12 une séquence d'image montrant la progression de l'eau lors de l'expérience à $M = 100$. On part d'une situation où l'eau a atteint l'obstacle (1) et commence à créer un ménisque autour de lui. Celui-ci s'établit sur les deux images suivantes, puis vient toucher l'obstacle (2) sur la quatrième image. Un nouveau ménisque se crée alors très rapidement autour de ce nouvel obstacle (images cinq et six) alors que les ménisques des obstacles en amont ne se développent pas. Ce processus montre que la vitesse de remplissage des coins autour d'un obstacle est supérieure à celle de l'avancée des ménisques. Ceci peut s'expliquer par le fait que, dans ces coins, le fluide est en dépression du fait de sa courbure, mais également, la résistance hydrodynamique est faible car le coin de fluide reste macroscopique. Les obstacles vont ainsi faire office de moteur pour l'invasion. Le ménisque nouvellement créé touche ensuite le plot suivant et le processus se répète alors.

Ce mode d'invasion met en avant plusieurs différences avec le précédent :

- les pores ne sont plus envahis par l'eau et restent majoritairement remplis d'huile,

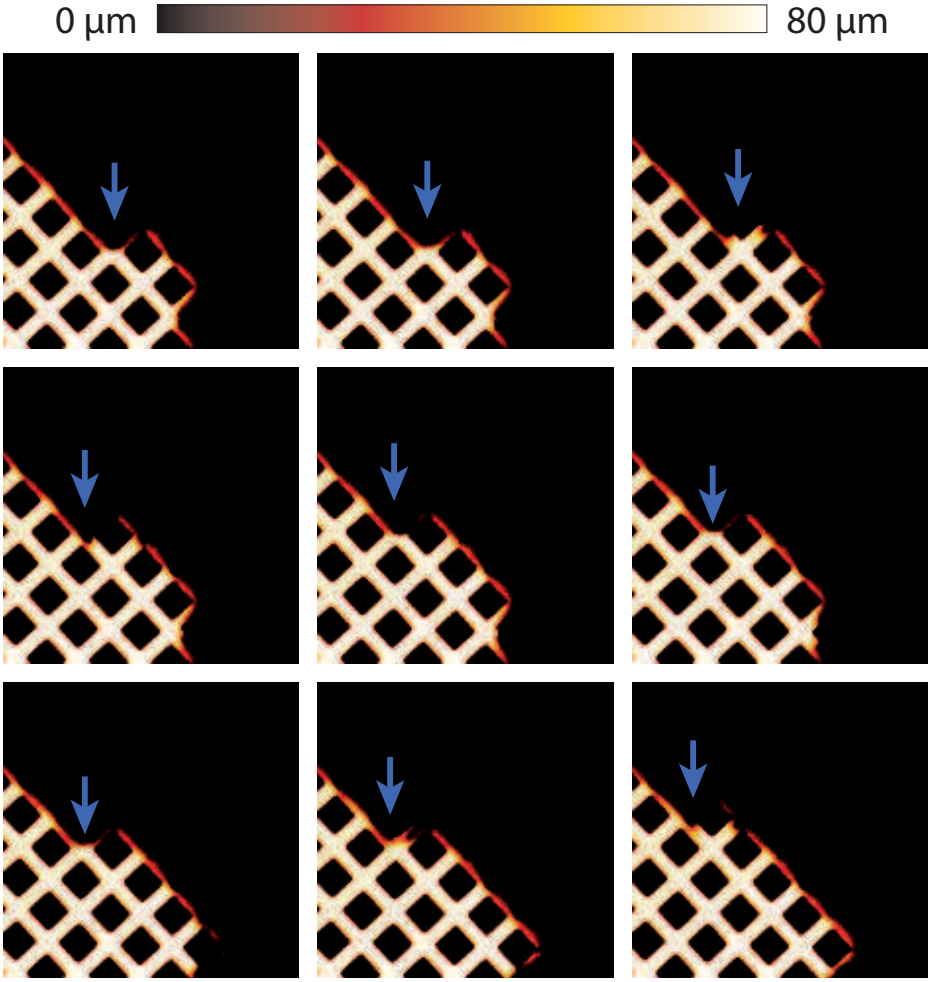


FIGURE 5.11 – Images zoomées lors de l'invasion du poreux modèle dans le régime d'imbibition à bas rapport de viscosité. Les paramètres sont $Q = 1\,\mu$L/min, $M = 20$ et $\theta_e \sim 7°$. Le temps entre deux images est de 0.66 s. L'eau envahit les canaux ligne par ligne et remplit intégralement la hauteur du dispositif, ce mode d'invasion correspond à la phase *continuous capillary domains* du diagramme de phase de la figure 5.1.

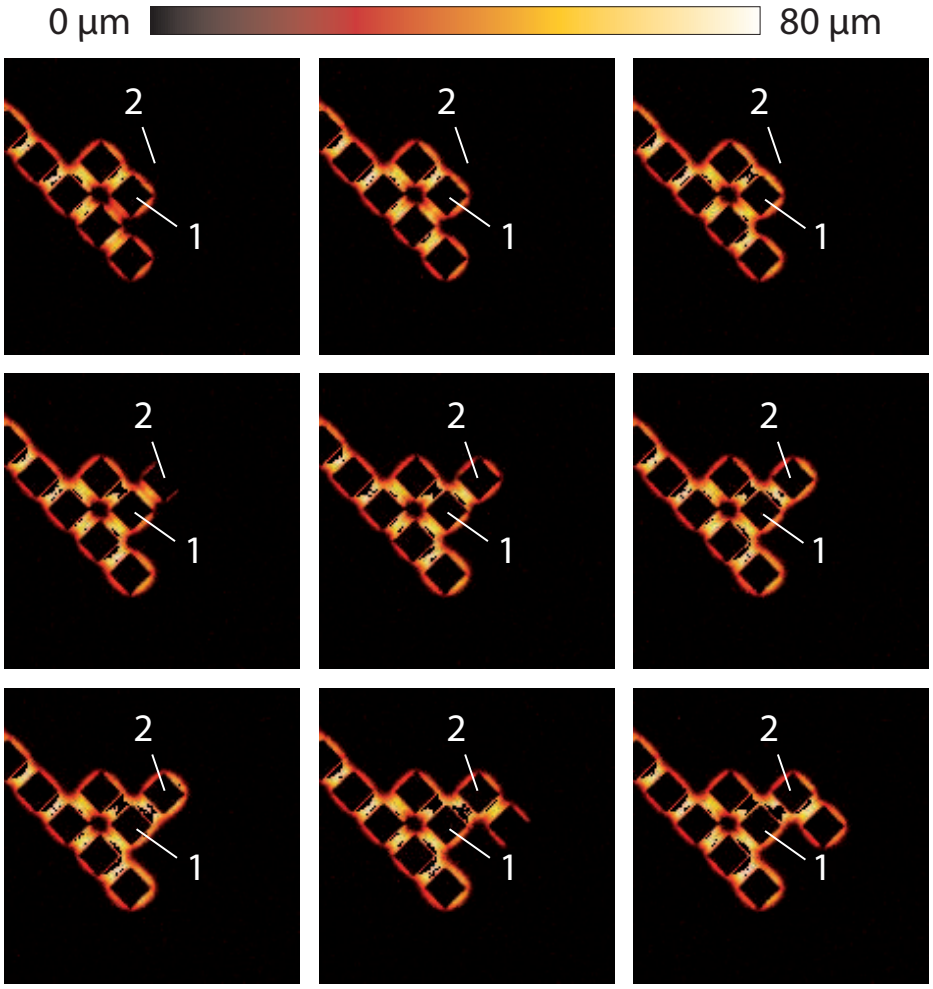


FIGURE 5.12 – Images zoomées lors de l'invasion du poreux modèle dans le régime d'imbibition à haut rapport de viscosité. Les paramètres sont $Q = 1\,\mu\mathrm{L/min}$, $M = 100$ et $\theta_e \sim 7°$. Le temps entre deux images est de 0.33 s. La longueur des ménisques est supérieure à la distance entre obstacles. Chaque ménisque vient toucher l'obstacle suivant et un nouveau ménisque se forme alors. L'invasion se fait ainsi par la création successive de ménisques et l'eau ne remplit jamais toute la hauteur du canal.

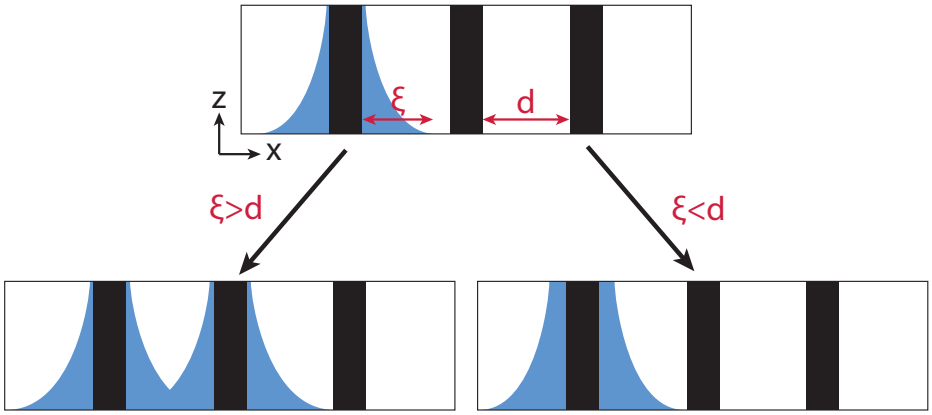


FIGURE 5.13 – Schéma d'un demi-canal montrant les deux modes d'invasions du poreux pour un régime d'imbibition. A gauche, la longueur du ménisque est supérieure à la distance entre deux obstacles et l'invasion se fait par succession de ménisques. A droite, elle est inférieure et l'invasion se fait ligne par ligne en remplissant tout le canal.

- l'invasion ne se fait plus en suivant la géométrie du réseau,
- il n'existe plus de front d'eau remplissant intégralement le canal, celui-ci est remplacé par une succession de ménisques.

On schématise ce nouveau mode d'envahissement en figure 5.13 où on représente l'évolution de l'eau dans la tranche d'un demi-canal. On part d'une situation où un ménisque vient de se former autour d'un obstacle (en haut). Si la longueur du ménisque ξ est supérieure à la distance entre deux obstacles d, ce ménisque vient toucher le nouvel obstacle. La vitesse de remplissage dans les coins étant beaucoup plus grande que celle de l'avancée des ménisques, l'eau crée alors un nouveau ménisque autour du nouvel obstacle (en bas à gauche) et les ménisques en amont n'ont pas le temps de progresser. Si à l'inverse $\xi < d$, alors les ménisques en amont se développent et on obtient le processus de l'invasion à bas M. La critère de sélection est ici géométrique, on compare une longueur caractéristique du milieu poreux à la taille du ménisque, caractérisant les fluides en jeu.

$$d = \xi\left(Ca, M, \theta_e\right) \tag{5.1}$$

Cette dernière, comme on a pu le voir dans les chapitres précédents, dépend très fortement des paramètres tel que le nombre capillaire, le rapport de viscosité et l'angle de contact. On comprend ainsi qu'en changeant M dans nos expériences de la figure 5.6, on augmente progressivement la longueur du ménisque et ainsi on transite d'un mode d'invasion à l'autre.

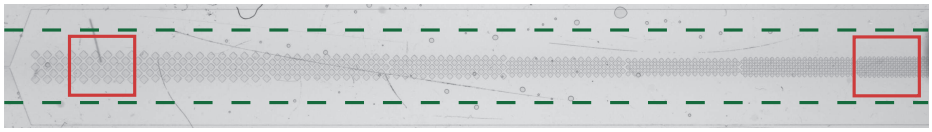
5.3.3 Influence de la géométrie sur la transition d'entrainement

Ce critère géométrique sous-entend qu'il est possible d'observer les deux modes d'invasion en changeant uniquement la distance entre deux obstacles. Pour tester cette idée, on réalise ainsi un nouveau dispositif micro-fluidique où le motif contient un gradient d'espacement entre les obstacles suivant l'axe x (figure 5.14(a)). La distance entre deux obstacles est de $180\,\mu$m en entrée du dispositif et de $40\,\mu$m en sortie. De plus, on effectue le traitement de surface uniquement sur la partie centrale du dispositif afin d'éviter que l'eau ne longe les parois sur les bords. Enfin, on fixe un rapport de viscosité de $M = 100$ et on injecte l'eau avec un débit constant de $1\,\mu$L/min. Les quatre images à gauche de la figure 5.14(b) montrent le processus d'invasion de l'eau en entrée du dispositif. On y constate que l'eau envahit le poreux en le remplissant ligne par ligne, on est ainsi dans le processus type bas M présenté précédemment. Les quatre images à droite correspondent à la sortie du dispositif, l'eau y envahit le poreux en avançant d'obstacle en obstacle et en laissant les pores remplis d'huile silicone. On est dans un processus type haut M. Enfin, la figure 5.14(c) permet de comparer la vitesse du front de l'eau à l'intérieur du poreux (indiqué par la flèche rouge) avec celle en dehors du poreux (indiqué par la flèche bleue). On observe ainsi que, pour le processus type bas M, ces deux fronts avancent à la même vitesse. Ce qui se comprend bien car la progression dans le poreux se fait par l'avancée des ménisques, tout comme en dehors du poreux. En revanche, pour le processus type haut M, le front d'eau dans le poreux est beaucoup plus rapide qu'à l'extérieur. Cela confirme ainsi l'effet "pompe" de la formation des ménisques à chaque obstacle.

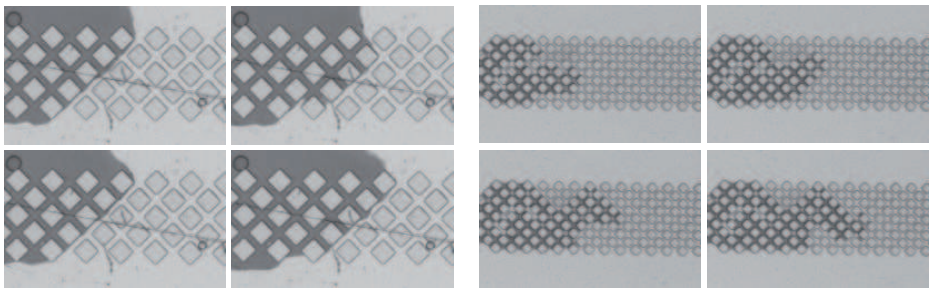
Cette expérience confirme notre critère géométrique de façon qualitative. On a voulu la répéter pour différentes viscosités et ainsi obtenir une courbe mesurant une distance seuil entre obstacles en fonction du rapport de viscosité. Cependant, les variations de vitesses entre les différentes expériences, dûes notamment à la largeur de la zone d'avancée de l'eau en dehors du poreux, ont fait qu'il n'a pas été possible d'avoir une reproductibilité suffisante pour obtenir cette courbe.

5.3.4 Transition d'entrainement en milieu hétérogène : vers un critère quantitatif.

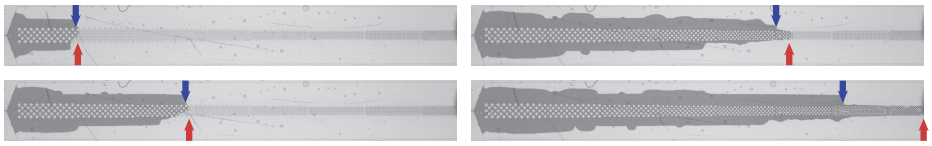
Pour déterminer plus en détail l'influence de la distance entre obstacles, on reprend les résultats numériques obtenus dans les chapitres précédents. On représente en figure 5.15(a) la variation de la longueur du ménisque en fonction du rapport de viscosité pour un nombre capillaire $Ca = 10^{-6}$. Pour comprendre l'effet du poreux, on rajoute sur cette courbe une droite correspondant à la distance entre obstacles du motif expérimental (droite noire). Ainsi, pour des M supérieurs à celui correspondant à l'intersection de ses deux courbes, chaque nouveau



(a) Image du dispositif contenant un gradient de distance entre obstacles avec $d = 180\,\mu$m en entrée et $d = 40\,\mu$m en sortie. Seule la partie entre les lignes en pointillées vertes a été insolée.

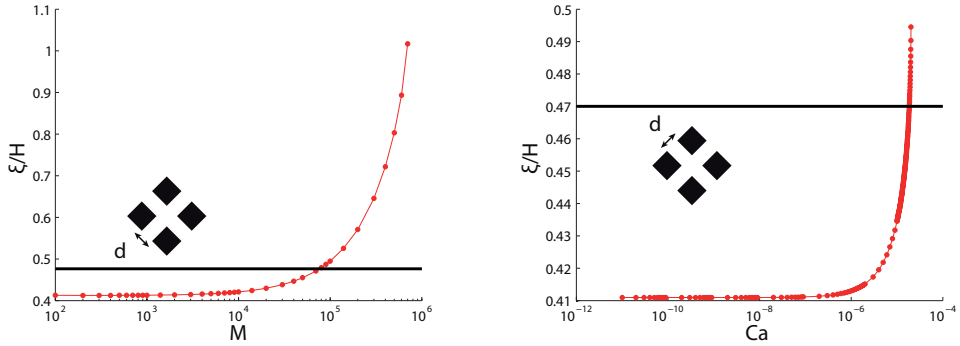


(b) Zoom sur le processus d'invasion de l'eau en entrée (gauche) et en sortie (droite). Le temps entre chaque image est de 2 s.



(c) Vue large lors de l'invasion de l'eau en entrée (gauche) et en sortie (droite) montrant une accélération du processus d'invasion dans le poreux. La flèche bleue indique le front d'eau en dehors du poreux et la flèche rouge à l'intérieur du poreux.

FIGURE 5.14 – Expérience d'imbibition de l'eau dans l'huile silicone dans un motif poreux contenant un gradient de distance entre obstacles. Les paramètres sont $M = 100$ et $Q = 1\,\mu$L/min. On observe les deux modes d'invasions, ligne par ligne (au début) et par succession de ménisques (à la fin).



(a) Longueur du ménisque en fonction du rapport de viscosité pour $Ca = 10^{-6}$.

(b) Longueur du ménisque en fonction du nombre capillaire pour $M = 1000$.

FIGURE 5.15 – Variation de la longueur du ménisque normalisée par la hauteur du canal en fonction des paramètres. La distance entre obstacles (droite noire horizontale) détermine les seuils à partir desquels on change de mode d'invasion. Ces seuils sont inférieurs à ceux obtenus pour la transition d'entrainement.

ménisque touche l'obstacle voisin et l'invasion se fait par création successive de ménisques. Ce seuil de la transition dans le poreux est inférieur à celui correspondant à l'entrainement de films minces. Ces deux transitions, bien qu'ayant des similitudes, ne sont ainsi pas directement liées. On peut définir de la même façon un seuil en nombres capillaires pour un M fixé, ici $M = 1000$ (figure 5.15(b)). Enfin, on montre en figure 5.16 la valeur de ξ en fonction Ca et M, l'intersection avec le plan noir détermine alors la frontière séparant les deux modes d'invasion.

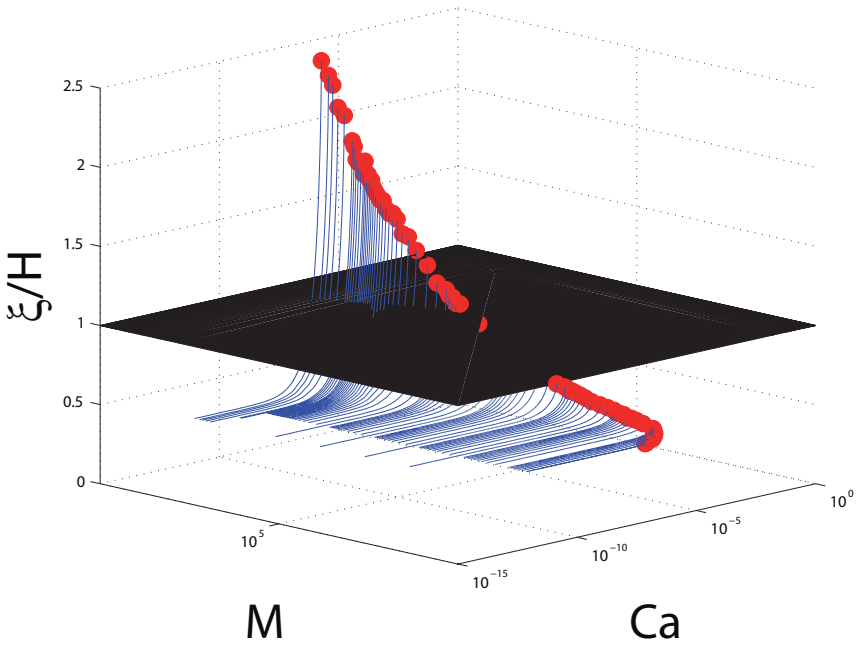


FIGURE 5.16 – Valeur de la longueur du ménisque en fonction de Ca et M. L'intersection avec le plan situé à la distance entre obstacles détermine la frontière de transition entre les deux modes d'invasions.

EN RÉSUMÉ

- On étudie le cas de l'imbibition pour $R \gg 1$ à l'aide d'un milieu poreux modèle totalement homogène.

- Une série d'expériences réalisée en variant uniquement le rapport de viscosité permet d'observer en détail le passage d'un régime capillaire continue (phase 3 du diagramme 5.1) à un régime d'invasion par films minces. On observe alors des similitudes entre cette transition et celle de l'entrainement des films minces mais plusieurs différences laissent penser que ces deux transitions ne sont pas les mêmes.

- Pour comprendre plus en détail cette transition, on regarde les dynamiques d'invasion à l'échelle des pores. On observe alors une phénoménologie nouvelle où l'eau se propage d'obstacle en obstacle par formation de ménisques. L'écoulement dans les coins autour de ces obstacles sert de moteur à l'invasion.

- Ce nouveau mode met alors en évidence un critère géométrique comparant une distance caractéristique du poreux à la longueur du ménisque déterminant le passage d'un mode d'invasion à l'autre :

  $$d = \xi\left(Ca, M, \theta_e\right).$$

  On confirme alors qualitativement ce critère à l'aide d'une expérience utilisant un gradient de distance entre obstacles.

- Finalement, l'utilisation des résultats numériques obtenus pour la transition d'entrainement de films minces permet de déterminer précisément la frontière séparant les deux régimes d'invasion.

Bibliographie

[1] http://www.melpro.fr/artweb/pdf/huiles47_FR_2008.pdf.

[2] http://www.nikonusa.com/en/Nikon-Products/Product/Camera-Lenses/2177/AF-S-Micro-Nikkor-60mm-f%252F2.8G-ED.html.

[3] http://www.kaiser-fototechnik.de/pdf/prospekte/leuchtplatten_en.pdf.

[4] http://www.schott.com/lightingimaging/english/download/mg-wave_series_int.pdf.

[5] http://www.alliedvisiontec.com/apac/products/cameras/gigabit-ethernet/prosilica-gx/gx3300.html.

[6] http://ocz.com/consumer/revodrive-3-x2-pcie-ssd.

[7] http://en.wikipedia.org/wiki/Moiré_pattern.

[8] D. G. a. L. Aarts, S. A. Setu, I. Zacharoudiou, G. Davies, D. Bartolo, S. Moulinet, a. a. Louis, and J. Yeomans. Viscous fingering at ultralow interfacial tension. *Soft Matter*, 2013.

[9] E. Aker, K. J. Maloy, and A. Hansen. Percolation effects in immiscible displacement. *Phys. Rev. E*, 58, 1998.

[10] A. Azioune, N. Carpi, J. Fink, M. M. Chehimi, D. Cuvelier, and M. Piel. Robust Method for High-Throughput Surface Patterning of Deformable Substrates. *Langmuir*, 27(12) :7349–7352, Jan. 2011.

[11] A. Azioune, M. Storch, M. Bornens, M. Thery, and M. Piel. Simple and rapid process for single cell micro-patterning. *Lab on a Chip*, 9(11) :1640–1642, Jan. 2009.

[12] D. Bartolo, G. Degre, P. Nghe, and V. Studer. Microfluidic stickers. *Lab Chip*, 8(2) :274–279, Jan. 2008.

[13] H. Benkreira and J. Ikin. Dynamic wetting and gas viscosity effects. *Chemical Engineering Science*, 65(5) :1790–1796, Mar. 2010.

[14] H. Benkreira and M. Khan. Air entrainment in dip coating under reduced air pressures. *Chemical Engineering Science*, 63(2) :448–459, Jan. 2008.

[15] D. Bensimon, L. Kananoff, S. kiang, B. Shraiman, and C. Tang. VISCOUS FLOWS IN 2 DIMENSIONS. *Reviews of Modern Physics*, 58(4) :977–999, 1986.

[16] V. Berejnov, N. Djilali, and D. Sinton. Lab-on-chip methodologies for the study of transport in porous media : energy applications. *Lab on a Chip*, 8(5) :689–693, Jan. 2008.

[17] D. Bonn, J. Eggers, J. Indekeu, J. Meunier, and E. Rolley. Wetting and spreading. *Reviews of Modern Physics*, 81(2) :739–805, May 2009.

[18] R. Burley and P. Brady. Displacement of an air/liquid interface by a moving web of fibers. *Journal of Colloid and Interface Science*, (I), 1973.

[19] C. F. Carlborg, T. Haraldsson, K. Öberg, M. Malkoch, and W. V. D. Wijngaart. Beyond PDMS : off-stoichiometry thiol–ene (OSTE) based soft lithography for rapid prototyping of microfluidic devices. *Lab on a Chip*, pages 1–12, Jan. 2011.

[20] C. Cottin, H. Bodiguel, and A. Colin. Drainage in two-dimensional porous media : From capillary fingering to viscous flow. *Physical Review E*, 82(4) :046315, Oct. 2010.

[21] Y. Couder. *Perspectives in Fluid Dynamics : A Collective Introduction to Current Research*. Cambridge University Press, 2002.

[22] R. G. Cox. The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. Part 1. Viscous flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 168(-1) :169–194, Apr. 1986.

[23] T. Cubaud and C.-M. Ho. Transport of bubbles in square microchannels. *Physics of Fluids*, 16(12) :4575, 2004.

[24] H. Darcy. Les fontaines publiques de la ville de Dijon. *V. Dalmont*, 1856.

[25] G. Delon, M. Fermigier, J. Sneijer, and B. Andreotti. Relaxation of a dewetting contact line. *Journal of Fluid Mechanics*, 604, 2008.

[26] B. Derjaguin. Thickness of liquid layer adhering to walls of vessels on their emtying and the theory of photo and motion picture film coating. *Dokl. Acad. Sci.*, 39 :13–19, 1943.

[27] L. Derzsi, P. Jankowski, W. Lisowski, and P. Garstecki. Hydrophilic polycarbonate for generation of oil in water emulsions in microfluidic devices. *Lab on a Chip*, 11(6) :1151–1156, Jan. 2011.

[28] C. Duez, C. Ybert, C. Clanet, and L. Bocquet. Making a splash with water repellency. *Nature Physics*, 3(3) :180–183, Feb. 2007.

[29] J. Eggers. Air Entrainment through Free-Surface Cusps. *Physical Review Letters*, 86(19) :4290–4293, May 2001.

[30] J. Eggers. Contact line motion for partially wetting fluids. *Physical Review E*, 72(6), 2005.

[31] J. El-Ali, P. K. Sorger, and K. F. Jensen. Cells on chips. *Nature*, 442(7101) :403–411, Jan. 2006.

[32] M. Ferer, G. S. Bromhal, and D. H. Smith. Percolation effects in immiscible displacement. *Phys. Rev. E*, 71, 2005.

[33] M. Flury and H. Fluhler. Modeling Solute Leaching in Soils by Diffusion Limited Aggregation : Basic Concepts and Application to Conservative Solutes. *Water Resources Research*, 1995.

[34] F. Goucher and H. Ward. A problem in viscosity - the thickness of liquid films formed on solid surfaces under dynamic conditions. *Philosophical Magazine*, 44(44) :1002–1014, 1922.

[35] F. S. Goucher and H. Ward. The thickness of liquid films formed on solid surfaces under dynamic condition. *Phil. Mag.*, 44 :1002–1014, 1922.

[36] G. Homsy. VISCOUS FINGERING IN POROUS-MEDIA. *Annual Review of Fluid Mechanics, Vol 43*, 19 :271–311, July 2002.

[37] C. Huh and L. Scriven. Hydrodynamic model of steady movement of a solid/liquid/fluid contact line. *Journal of Colloid and Interface Science*, 35(1) :85–101, Jan. 1971.

[38] E. Lajeunesse and Y. Couder. On the tip-splitting instability of viscous fingers. *Journal of Fluid Mechanics*, 419 :125–149, Sept. 2000.

[39] L. Landau and B. Levich. *Acta Physicochim.*, 17 :42–54, 1942.

[40] R. Ledesma-Aguilar, a. Hernández-Machado, and I. Pagonabarraga. Three-dimensional aspects of fluid flows in channels. I. Meniscus and thin film regimes. *Physics of Fluids*, 19(10) :102112, 2007.

[41] R. Ledesma-Aguilar, a. Hernández-Machado, and I. Pagonabarraga. Dynamics of driven three-dimensional thin films : From hydrophilic to superhydrophobic regimes. *Physics of Fluids*, 20(7) :072101, 2008.

[42] R. Ledesma-Aguilar, a. Hernández-Machado, and I. Pagonabarraga. Theory of Wetting-Induced Fluid Entrainment by Advancing Contact Lines on Dry Surfaces. *Physical Review Letters*, 110(26) :264502, June 2013.

[43] R. Ledesma-Aguilar, I. Pagonabarraga, and a. Hernández-Machado. Three-dimensional aspects of fluid flows in channels. II. Effects of meniscus and thin film regimes on viscous fingers. *Physics of Fluids*, 19(10) :102113, 2007.

[44] R. Lenormand. LIQUIDS IN POROUS-MEDIA. *J Phys-Condens Mat*, 2 :SA79—-SA88, Jan. 1990.

[45] R. Lenormand. Liquids in porous media. *Journal of Physics-Condensed Matter*, 2 :SA79–SA88, Feb. 2001.

[46] R. Lenormand and C. Zarcone. Role of roughness and edges during imbibition in square capillaries. *SPE Annual Technical Conference and ...*, 1984.

[47] R. Lenormand and C. Zarcone. Invasion percolation in an etched network : Measurement of a fractal dimension. *Physical Review Letter*, 54(20), 1985.

[48] R. Lenormand, C. Zarcone, and A. Sarr. Mechanisms of the displacement of one fluid by another in a network of capillary ducts. *Journal of Fluid Mechanics*, 135, 1983.

[49] B. Levaché, A. Azioune, M. Bourrel, V. Studer, and D. Bartolo. Traitement de surface de dispositif microfluidique.

[50] B. Levaché, A. Azioune, M. Bourrel, V. Studer, and D. Bartolo. Engineering the surface properties of microfluidic stickers. *Lab on a chip*, 12(17) :3028–31, July 2012.

[51] L. D. Levich and E. Lifshitz. *Theory of elasticity, third edition : volume 7.* Butterworth-Heinemann (Oxford), 1986.

[52] E. Lorenceau, D. Quéré, and J. Eggers. Air Entrainment by a Viscous Jet Plunging into a Bath. *Physical Review Letters*, 93(25) :254501, Dec. 2004.

[53] E. Lorenceau, F. Restagno, and D. Quéré. Fracture of a viscous liquid. *Physical review letters*, 90(18) :184501, May 2003.

[54] K. Ma, J. Rivera, G. J. Hirasaki, and S. L. Biswal. Wettability control and patterning of PDMS using UV ozone and water immersion. *Journal of Colloid and Interface Science*, 363(1) :371–378, Nov. 2011.

[55] A. Marchand, T. Chan, J. Snoeijer, and B. Andreotti. Air Entrainment by Contact Lines of a Solid Plate Plunged into a Viscous Fluid. *Physical Review Letters*, 108(20) :3–7, May 2012.

[56] J. W. McLean and P. G. Saffman. The effect of surface tension on the shape of fingers in a Hele Shaw cell. *Journal of Fluid Mechanics*, 102(-1) :455, Apr. 1981.

[57] P. Meakin and J. M. Deutch. The formation of surfaces by diffusion limited annihilation. *The Journal of Chemical Physics*, 85(4), 1986.

[58] F. Morey. Thickness of a liquid film adhering to a suface slowly withdrawn from the liquid. *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 25(3), 1940.

[59] C. W. Park and G. M. Homsy. The instability of long fingers in Hele–Shaw flows. *Physics of Fluids*, 28(6) :1583, 1985.

[60] L. Paterson. Diffusion limited aggregation and two fluid displacements in porous media. *Phys. Rev. Lett.*, 52, 1984.

[61] T. Podgorski, J. Flesselles, and L. Limat. Corners, cusps, and pearls in running drops. *Physical Review Letters*, 87(3), 2001.

[62] C. Priest. Surface patterning of bonded microfluidic channels. *Biomicrofluidics*, 4(3) :32206, Jan. 2010.

[63] E. Rio, A. Daerr, B. Andreotti, and L. Limat. Boundary conditions in the vicinity of a dynamic contact line : Experimental investigation of viscous drops sliding down an inclined plane. *Physical Review Letters*, 94(2), 2005.

[64] M. B. Romanowsky, M. Heymann, A. R. Abate, A. T. Krummel, S. Fraden, and D. A. Weitz. Functional patterning of PDMS microfluidic devices using integrated chemo-masks. *Lab on a Chip*, 10(12) :1521, Jan. 2010.

[65] M. Rosso, J. F. Gouyet, and B. Sapoval. Determination of percolation probability from the use of a concentration gradient. *Phys. Rev. B*, 32, 1985.

[66] P. G. Saffman and G. Taylor. The Penetration of a Fluid into a Porous Medium or Hele-Shaw Cell Containing a More Viscous Liquid. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 245(1242) :312–329, June 1958.

[67] B. Sandnes, E. G. Flekkø y, H. a. Knudsen, K. J. Må løy, and H. See. Patterns and flow in frictional fluid dynamics. *Nature communications*, 2 :288, Jan. 2011.

[68] M. H. Schneider, H. Willaime, Y. Tran, F. Rezgui, and P. Tabeling. Wettability Patterning by UV-Initiated Graft Polymerization of Poly(acrylic acid) in Closed Microfluidic Systems of Complex Geometry. *Anal Chem*, 82(21) :8848–8855, Jan. 2010.

[69] J. Sneijer, G. Delon, M. Fermigier, and B. Andreotti. Avoided critical behavior in dynamically forced wetting. *Physical Review Letters*, 96, 2006.

[70] J. H. Snoeijer, B. Andreotti, G. Delon, and M. Fermigier. Relaxation of a dewetting contact line. Part 1. A full-scale hydrodynamic calculation. *Journal of Fluid Mechanics*, 579 :63, May 2007.

[71] E. Sollier, C. Murray, P. Maoddi, and D. D. Carlo. Rapid prototyping polymers for microfluidic devices and high pressure injections. *Lab on a Chip*, 11(22) :3752–3765, Jan. 2011.

[72] J. Stokes, D. Weitz, J. Gollub, a. Dougherty, M. Robbins, P. Chaikin, and H. Lindsay. Interfacial stability of immiscible displacement in a porous medium. *Physical review letters*, 57(14) :1718–1721, Oct. 1986.

[73] P. Tabeling and A. Libchaber. Film draining and the Saffman-Taylor problem. *Physical Review A*, 33(1) :3–5, 1986.

[74] P. Tabeling, G. Zocchi, and A. Libchaber. An experimental study of the Saffman-Taylor instability. *Journal of Fluid Mechanics*, 177 :67–82, Apr. 1987.

[75] M. Théry, A. Jiménez-Dalmaroni, V. Racine, M. Bornens, and F. Jülicher. Experimental and theoretical study of mitotic spindle orientation. *Nature*, 447(7143) :493–496, 2007.

[76] M. Théry, V. Racine, A. Pépin, M. Piel, Y. Chen, J.-B. Sibarita, and M. Bornens. The extracellular matrix guides the orientation of the cell division axis. *Nat Cell Biol*, 7(10) :947–953, Oct. 2005.

[77] M. Thery, V. Racine, M. Piel, A. Pepin, A. Dimitrov, Y. Chen, J.-B. Sibarita, and M. Bornens. Anisotropy of cell adhesive microenvironment governs cell internal organization and orientation of polarity. *P Natl Acad Sci Usa*, 103(52) :19771–19776, Jan. 2006.

[78] G. Tryggvason and H. Aref. Numerical experiments on Hele Shaw flow with a sharp interface. *Journal of Fluid Mechanics*, 136, 1983.

[79] Q. Tseng, I. Wang, E. Duchemin-Pelletier, A. Azioune, N. Carpi, J. Gao, O. Filhol, M. Piel, M. Thery, and M. Balland. A new micropatterning method of soft substrates reveals that different tumorigenic signals can promote or reduce cell contraction levels. *Lab on a Chip*, 11(13) :2231–2240, Jan. 2011.

[80] A. S. Utada, L.-Y. Chu, A. Fernandez-Nieves, D. R. Link, C. Holtze, and D. A. Weitz. Dripping, jetting, drops, and wetting : The magic of microfluidics. *Mrs Bull*, 32(9) :702–708, Jan. 2007.

[81] O. Vizika and A. C. Payatakes. Parametric experimental study of force imbibition in porous media. *Physicochemical Hydrodyn*, 11, 1989.

[82] T. von Kàrmàn. The impact on seaplane floats during landing. *NACA Technical Note*, 321, 1929.

[83] H. Wagner. Phenomena associated with impacts and sliding on liquid surfaces. *Z. Angew. Math. Mech.*, 1932.

[84] N. Wardlaw and L. Yu. Fluid topology, pore size and aspect ratio during imbibition. *Transport in porous media*, 3, 1988.

[85] A. Welle and E. Gottwald. UV-based patterning of polymeric substrates for cell culture applications. *Biomed Microdevices*, 4(1) :33–41, Jan. 2002.

[86] D. Wilkinson. Percolation effects in immiscible displacement. *Phys. Rev. A*, 34, 1986.

[87] D. Wilkinson and J. F. Willemsen. Invasion percolation : a new form of percolation theory. *Journal of Physics A : Mathematical and General*, 16(14), 1983.

[88] J. Zhou, A. V. Ellis, and N. H. Voelcker. Recent developments in PDMS surface modification for microfluidic devices. *Electrophoresis*, 31(1) :2–16, Jan. 2010.

[89] G. Zocchi, A. Libchaber, and P. Tabeling. An experimental study of the Saffman-Taylor instability. *Control*, pages 67–82, 1987.