Dynamique d'une goutte 2D dans une cellule de Hele-Shaw

Benjamin Reichert

▶ **To cite this version:**

Benjamin Reichert. Dynamique d'une goutte 2D dans une cellule de Hele-Shaw. Mécanique [physics]. Université Paris sciences et lettres, 2017. Français. NNT : 2017PSLET028 . tel-02365250

HAL Id: tel-02365250
https://pastel.hal.science/tel-02365250

Submitted on 15 Nov 2019

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 de recherche Paris Sciences et Lettres
PSL Research University

Préparée à l'École Supérieure de Physique et de Chimie Industrielles de la ville de Paris

Dynamique d'une goutte 2D dans une cellule de Hele-Shaw

École doctorale n°391

SCIENCES MÉCANIQUES, ACOUSTIQUE, ELECTRONIQUE ROBOTIQUE DE PARIS

Spécialité MÉCANIQUE

COMPOSITION DU JURY :

M. Stéphane Popinet
Institut d'Alembert, Président du jury

Mme Marie-Caroline Jullien
ESPCI, Directrice de Thèse

M. Benoit Scheid
Laboratoire TIPs (ULB), Rapporteur

M. Jean-Christophe Baret
CRPP (Univ. Bordeaux), Rapporteur

Mme Élise Lorenceau
LiPhy (Univ. Grenoble), Examinateur

M. Denis Bartolo
ENS de Lyon, Examinateur

Mme Isabelle Cantat
IPR (Univ. Rennes), Invitée

Soutenue par **Benjamin REICHERT**
le 12 décembre 2017

Dirigée par **Marie-Caroline Jullien**

ESPCI PARIS
EDUCATION SCIENCE INNOVATION

PSL
RESEARCH UNIVERSITY PARIS

Table des matières

Table des matières **i**

Introduction **1**

1 Dynamique de gouttes - aspects généraux **3**
1.1 Contexte de l'étude . . . 3
1.2 Hydrodynamique d'un système biphasique confiné . . . 5
1.2.1 Équation de Stokes . . . 6
1.2.2 Approximation de lubrification . . . 7
1.3 Effets de surface . . . 8
1.3.1 Capillarité, mouillage et tensioactif . . . 8
1.3.2 Conditions aux limites à l'interface . . . 11
1.4 Propriétés du film de lubrification d'une goutte non mouillante en géométrie confinée . . . 11
1.4.1 Géométrie axisymétrique . . . 12
1.4.2 Géométrie de Hele-Shaw . . . 24
1.4.3 Objectifs de la thèse . . . 29

2 Topographie de l'interface d'une goutte visqueuse en géométrie de Hele-Shaw - aspects théoriques **33**
2.1 Goutte dans un capillaire-développement de l'approche de Hodges *et al.* [1] . . . 34
2.1.1 Équation générale de l'interface . . . 34
2.1.2 Analyse des écoulements au sein de la goutte . . . 34
2.1.3 Résolution de l'équation du film dans deux cas limites sur le rapport de viscosité . . . 39
2.2 Vers un modèle de la topographie de l'interface d'une goutte dans une cellule de Hele-Shaw . . . 41
2.2.1 Équation générale de l'interface . . . 42
2.2.2 Analyse des écoulements par lois d'échelle . . . 43
2.2.3 Équation du film pour $\lambda \ll \left(\frac{h_f(0)}{H_o}\right)^{-1/2}$ . . . 45

2.2.4 Équation du film pour $\lambda \gg \left(\frac{h_f(\frac{\pi}{2})}{H_o}\right)^{-1/2}$: modèle visqueux 47
2.3 Conclusion 49

3 Dispositif expérimental **51**
3.1 Dispositif microfluidique 51
3.1.1 Objectifs 51
3.1.2 Fabrication 52
3.2 Solutions utilisées 54
3.3 Méthode de mesure de la vitesse de la goutte 54
3.4 Dispositif optique 56
3.4.1 Principe de la formation d'une image par RICM (Reflection Interference Contrast Microscopy) 57
3.4.2 Amélioration du contraste 58
3.4.3 Prise en compte de la réflexion au plafond du canal 59
3.4.4 Modification du modèle optique pour des gouttes rapides 60

4 Topographie du film de lubrification d'une goutte en géométrie de Hele-Shaw : expérience et théorie **65**
4.1 Mesure de la topographie du film pour une goutte très peu visqueuse $\lambda < 1$. 65
4.1.1 Analyse préliminaire de la forme de l'interface 66
4.1.2 Ménisque avant et région centrale 67
4.1.3 Ménisque dynamique arrière 70
4.1.4 Ménisque latéral 77
4.2 Mesure de la topographie du film pour une goutte très visqueuse $\lambda \simeq 1000$ . . 81
4.2.1 Analyse qualitative de la forme de l'interface 81
4.2.2 Ménisque avant et région centrale 83
4.2.3 Ménisque dynamique arrière 86
4.3 Mise en évidence expérimentale de l'influence des tensioactifs sur l'épaisseur du film 88
4.3.1 Ménisque avant et région centrale 89
4.3.2 Ménisque dynamique arrière 92
4.3.3 Discussion 94
4.4 Conclusion 98

5 Mobilité d'une goutte en géométrie de Hele-Shaw **101**
5.1 Relevés expérimentaux de la mobilité $\beta = U_d/U_f$ en fonction du nombre capillaire Ca 102
5.2 Mobilité théorique d'une goutte pancake 105
5.2.1 Relation formelle entre la mobilité et la dissipation visqueuse dans le système 105

5.2.2 Détermination de la dissipation totale dans le volume de contrôle . . . 108
5.2.3 Détermination numérique de la dissipation visqueuse D_Ω grâce à la topographie théorique du film . . . 110
5.2.4 Expression de la mobilité en loi d'échelle . . . 112
5.3 Confrontation du modèle théorique aux données expérimentales de mobilité de gouttes . . . 113
5.3.1 Mobilité d'une bulle . . . 113
5.3.2 Mobilité d'une goutte peu visqueuse dans une solution très concentrée en tensioactifs . . . 115
5.3.3 Mobilité d'une goutte très visqueuse . . . 117
5.3.4 Mobilité d'une goutte peu visqueuse dans une solution peu concentrée en tensioactifs . . . 120
5.4 Conclusion . . . 123

Conclusion **125**

Articles et brevet **129**

Appendix A Résolution de l'équation de Bretherton [2] **151**

Appendix B Équation du film de lubrification d'une bulle pancake en géométrie de Hele-Shaw [3] **153**

Appendix C Résolution de l'équation du film dans les ménisques dynamiques avant/arrière d'une bulle pancake [3] **155**

Appendix D Détermination du champ des vitesses dans la région I : géométrie axisymétrique **157**

Appendix E Taux de dissipation visqueuse dans un écoulement **159**

Appendix F Détermination du champ des vitesses dans la région I : géométrie de Hele-Shaw **161**

Appendix G Détermination de l'épaisseur du film au niveau de l'oscillation arrière **163**

Bibliographie **167**

Nomenclature

$2H_o$	Épaisseur de la cellule de Hele-Shaw
β	Mobilité de la goutte, $\beta = U_d/U_f$
η_i	Viscosité de la phase interne
η_o	Viscosité de la phase externe
γ	Tension superficielle
λ	Rapport des viscosités, $\lambda = \frac{\eta_i}{\eta_o}$
θ	Angle polaire pour une goutte pancake en géométrie de Hele-Shaw
θ^{fr}	Angle polaire dans le ménisque dynamique avant pour une goutte pancake en géométrie de Hele-Shaw
C	Courbure de l'interface
Ca	Nombre capillaire, $Ca = \frac{\eta_o U_d}{\gamma}$
f	Facteur d'épaississement défini par $f = h_\infty/h^{\mathrm{Breth}}$
$f^{\mathrm{BF,\,c}}$	Facteur d'épaississement du film de lubrification dans la région centrale I pour une interface *stress-free* établi par le modèle de Burgess & Foster pour une bulle pancake en géométrie de Hele-Shaw $f^{\mathrm{BF,\,c}} = \cos^{2/3}(\theta^{\mathrm{fr}})$
f^{Hodg}	Facteur d'épaississement du modèle de Hodges *et al.* en géométrie axisymétrique pour $\lambda \gg Ca^{-1/3}$, $f^{\mathrm{Hodg}} = 2^{2/3}\left[\frac{2+5.348\lambda f^{\mathrm{Hodg}} Ca^{2/3}}{1+5.348\lambda f^{\mathrm{Hodg}} Ca^{2/3}}\right]^{2/3}$
f^{roll}	Facteur d'épaississement du modèle *rolling* défini par $f^{\mathrm{roll}} = h^{\mathrm{roll}}/h^{\mathrm{Breth}} = 4^{2/3}$
f^{slid}	Facteur d'épaississement du modèle *sliding* défini par $f^{\mathrm{slid}} = h^{\mathrm{slid}}/h^{\mathrm{Breth}} = 2^{2/3}$
$f^{\mathrm{visq,\,c}}$	Facteur d'épaississement du film de lubrification dans la région centrale I pour $\lambda \gg \left(\frac{h_f(\frac{\pi}{2})}{H_o}\right)^{-1/2}$ établi par le modèle visqueux pour une goutte pancake en géométrie de Hele-Shaw, $f^{\mathrm{visq,\,c}} = 2^{2/3}\left[\frac{2+4\lambda f^{\mathrm{visq,\,c}} Ca^{2/3}}{1+4\lambda f^{\mathrm{visq,\,c}} Ca^{2/3}}\right]^{2/3}\cos^{2/3}(\theta^{\mathrm{fr}})$
h	Épaisseur du film

$h^{\mathrm{BF,\,c}}$ Épaisseur du film de lubrification dans la région centrale I pour une interface *stress-free* établie par le modèle de Burgess & Foster pour une bulle pancake en géométrie de Hele-Shaw $h^{\mathrm{BF,\,c}} = 1.337 H_o \left[Ca \cos(\theta^{\mathrm{fr}}) \right]^{2/3}$

h^{Breth} Épaisseur du film de Bretherton pour une interface *stress-free* en géométrie axisymétrique, $h^{\mathrm{Breth}} = 1.337 r Ca^{2/3}$

h^{roll} Épaisseur du film donnée par le modèle *rolling*, dans lequel l'interface a une vitesse uniforme, égale à celle de la paroi du canal, $h^{\mathrm{roll}} = 4^{2/3} h^{\mathrm{Breth}}$

h^{slid} Épaisseur du film donnée par le modèle *sliding*, dans lequel l'interface est rigide, $h^{\mathrm{slid}} = 2^{2/3} h^{\mathrm{Breth}}$

h_∞ Épaisseur du film dans la région centrale

h_f Épaisseur du film à la frontière entre le ménisque dynamique III et la région centrale I pour une goutte pancake en géométrie de Hele-Shaw

I Région centrale du film de lubrification

II Ménisque statique

III Ménisque dynamique

R Rayon de la goutte

r Rayon du capillaire

U_d Vitesse de la goutte

U_f Vitesse de la phase externe

rolling Adjectif qualifiant un modèle dans lequel l'interface de la goutte est animée d'une vitesse uniformément égale à celle de la paroi du canal

sliding Adjectif qualifiant un modèle dans lequel l'interface de la goutte est rigide. La vitesse interfaciale est alors uniformément nulle dans le référentiel de la goutte.

stress-free Adjectif qualifiant un modèle dans lequel la contrainte visqueuse tangentielle à l'interface est nulle

Pancake Adjectif qualifiant une goutte dans une cellule de Hele-Shaw dont le diamètre est très supérieur à l'épaisseur de la cellule

Introduction

Depuis une quinzaine d'années, la branche de l'hydrodynamique s'intéressant aux écoulements aux petites échelles (100 μm), la microfluidique, est en plein essort. Ceci s'explique par l'étendue du champ d'applications de cette science nouvelle. Il va de la biologie avec la PCR (amplification de l'ADN) à la modélisation de l'écoulement dans le système sanguin et des écoulements biphasiques dans la roche poreuse (extraction du pétrole) en passant par la microfluidique digitale (jets d'imprimante).

La microfluidique digitale s'intéresse au comportement des gouttes dans les microcanaux. Ces dernières demandent à être manipulées et contrôlées. Malgré l'utilisation omniprésente de ces objets en microfluidique, leur dynamique est encore largement incomprise. A ces échelles, les effets de surface dominent ceux en volume, et la vitesse d'une goutte est alors régie par la forme et les propriétés de l'interface séparant la phase interne à la goutte de la phase externe. On comprend alors que la détermination de la vitesse d'une goutte en environnement confiné est complexe, puisqu'elle suppose de sonder et de modéliser la topographie et les propriétés de son interface afin de rendre compte de la friction visqueuse, notamment dans les ménisques, qui freinent la goutte. A cet égard cette question s'inscrit dans l'étude générale ayant pour objet la compréhension de la dynamique des films de mouillage au sein d'un écoulement biphasique (cf. dépôt de film mince de Landau-Levich).

Ce travail est consacré à l'étude de la dynamique de gouttes en environnement confiné. En couplant une méthode de microscopie interférentielle aux techniques de microfluidique digitale, nous avons pu caractériser expérimentalement la topographie du film de mouillage et les propriétés physico-chimiques de l'interface. Cette donnée expérimentale a alors été mise à profit dans la modélisation de la friction dans le film de mouillage afin de déterminer la dynamique de la goutte.

Ce manuscrit est divisé en cinq chapitres. Dans le chapitre 1, les concepts principaux d'hydrodynamique et de physico-chimie sont présentés afin d'éclairer les différentes problématiques de ce travail. En particulier un état de l'art sur les différents modèles théoriques existant de la topographie du film de lubrification se développant sous une goutte, dans deux géométries particulières, est effectué. Au chapitre 2, un développement théorique est réalisé afin de modéliser la topographie du film de lubrification pour une goutte se déplaçant dans un canal dont la géométrie est identique à celle de nos expériences. Le chapitre 3 est consacré

à la description du dispositif expérimental : il comprend la puce microfluidique permettant la génération de gouttes de manière contrôlée, et le système de microscopie interférentielle servant à la mesure d'épaisseur du film de lubrification. Au chapitre 4, les mesures de topographies du film de lubrification expérimentales sont présentées et analysées en fonction de la viscosité de la goutte et de la concentration en agent de surface. La comparaison de ces données expérimentales aux modèles introduits dans les deux premiers chapitres permet alors de comprendre l'évolution de la forme de l'interface avec la viscosité de la goutte. Par ailleurs, des effets physiques additionnels, liés à la présence d'agents de surface, sont mis en évidence et caractérisés. Pour finir, au chapitre 5, un modèle de la dynamique de goutte est développé et confronté aux données expérimentales de vitesses de goutte. Ce modèle est basé sur une modélisation du film de mouillage tenant compte des propriétés de l'interface mise en évidence expérimentalement au chapitre 4.

CHAPITRE 1

Dynamique de gouttes - aspects généraux

1.1 Contexte de l'étude

La microfluidique à goutte a connu un essor remarquable ces dix dernières années. Pourtant, la dynamique de ces objets reste largement inexplorée et incomprise. En effet, une question aussi fondamentale que de prédire la vitesse d'une goutte poussée par une phase porteuse à vitesse imposée, est restée jusqu'à ce jour, sans réponse.

Une étude du mouvement de gouttes et de bulles au sein d'un environnement confiné fut publiée pour la première fois en 1959 par G. I Taylor et P. G. Saffman [4]. Leur motivation initiale était de mieux comprendre le phénomène de digitation visqueuse apparaissant lors de l'extraction du pétrole de la roche poreuse. Dans ce but, une cellule de Hele-Shaw fut utilisée pour modéliser l'écoulement biphasique ayant lieu dans la roche. Cette cellule est un canal à section rectangulaire dont l'épaisseur est négligeable par rapport à ses deux autres dimensions. Elle porte le nom de son créateur, Henry Selby Hele-Shaw, qui l'a inventée dans le but de visualiser expérimentalement les écoulements potentiels 2D autour d'obstacles solides. Au cours de la description du phénomène de digitation visqueuse, ces derniers observèrent l'apparition de bulles se déplaçant dans la cellule et publièrent un modèle décrivant leur dynamique "*A note on the motion of bubbles in Hele-Shaw cell and porous media*" [4]. La résolution de ce problème expérimental est effectuée pour une bulle dont le diamètre est grand devant l'épaisseur de la cellule, qualifiée de bulle pancake, en mouvement stationnaire dans une cellule de Hele-Shaw remplie d'un fluide visqueux au sein duquel un gradient de pression est appliqué. Les auteurs s'intéressent à la forme de la bulle dans le plan de la cellule ainsi qu'à la vitesse adoptée par cette dernière, notée U_d, en fonction de la vitesse de la phase externe,

notée U_f (voir Fig. 1.1). Pour modéliser ce système, l'écoulement est considéré comme étant laminaire et les effets de la gravité sont ignorés. De surcroît, la pression à l'intérieur de la bulle est considérée comme uniforme et la tension de surface négligée. La bulle est équivalente à un cylindre mouillant, dépourvue de ménisque et de film de lubrification séparant son interface de la paroi de la cellule, imposant uniquement à la phase externe sa vitesse normale à l'interface latérale du cylindre. Cette dernière condition limite, ainsi que le raccord à U_f à une distance infinie de la bulle, permettent de déterminer l'écoulement dans la phase externe dans le cadre de la théorie potentielle. La résolution mathématique montre que le rapport entre la vitesse de la bulle et celle du fluide externe, nommé mobilité dans la suite de cet ouvrage, n'est fonction que de la forme de la bulle dans le plan de la cellule et peut prendre une infinité de valeurs entre 1 et $+\infty$. Parmi cette infinité de solutions, les auteurs choisirent celle correspondant à une bulle circulaire qui dans ce cas se déplace deux fois plus vite que le fluide externe. Ce choix est justifié par leurs observations expérimentales sans qu'une explication physique évidente ne soit fournie. Par la suite, il fut démontré que c'est la tension interfaciale de l'interface air/liquide qui est à l'origine du mécanisme de sélection de la forme de la bulle [5, 6] : sa forme tend spontanément vers un cercle se déplaçant deux fois plus vite que la phase externe.

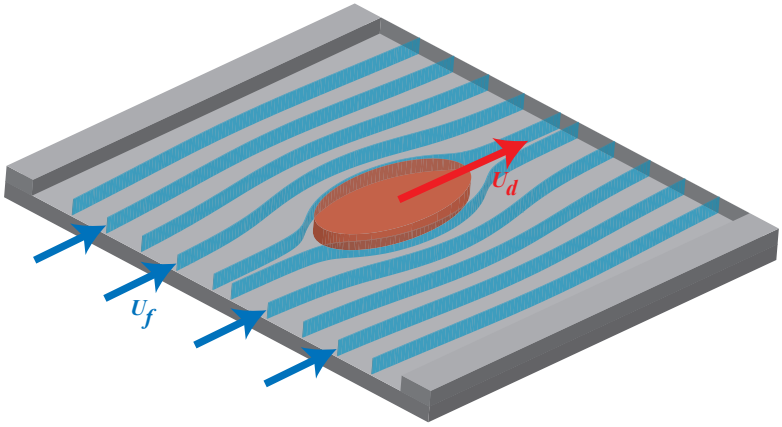

FIGURE 1.1: Schéma du modèle de Taylor & Saffman d'une bulle se déplaçant dans une cellule de Hele-Shaw. Adapté de [6]

La solution de Taylor & Saffman n'a jamais été observée expérimentalement et toute une variété de formes de bulles a été mise en évidence par Kopf-Sill & Homsy [7]. D'autre part, les bulles circulaires se déplacent toujours à des vitesses inférieures à $2U_f$ [8][9]. Une explication possible de l'écart de forme par rapport à la solution de Taylor & Saffman est la présence de molécules tensioactives, mises en solution afin de stabiliser l'interface. L'écart en vitesse, notamment pour des systèmes en présence de molécules tensioactives, peut être attribué à la friction entre l'interface et la paroi de la cellule de Hele-Shaw. Pour tenir compte de cette friction, Maruvada & Park [9] modélisèrent la bulle comme une ellipse dont l'interface est

rigide. L'expression de la mobilité fait alors intervernir le paramètre de forme de l'ellipse. En ajustant ce paramètre pour reproduire la forme de la bulle expérimentale, ils parviennent à reproduire leurs données sur la vitesse de bulle/goutte en présence de tensioactifs. Cependant, dans le cas de bulles circulaires se déplaçant dans de l'huile sans tensioactif, la friction dans le film de lubrification disparaît et l'interface ne peut plus être considérée comme rigide. Pour une bulle circulaire, sans friction dans le film, leur modèle se résume à celui de Taylor & Saffman qui surestime la mobilité de la bulle. Ceci montre qu'une autre source de friction doit être prise en compte afin de comprendre la dynamique d'un tel système. Dans le cas d'une bulle se déplaçant dans un tube capillaire rempli de liquide, il a été démontré théoriquement par Bretherton [2] que le ménisque séparant le nez de la bulle du film plat est le siège de dissipation visqueuse freinant la bulle. La source de friction supplémentaire est donc localisée dans ce ménisque et est par conséquent fonction du profil de l'interface dans cette région. Il devient alors clair que *la dynamique de tels objets est étroitement liée à la topographie de l'interface*, mais aussi à la physico-chimie de l'interface, susceptible d'induire une rigidification de cette dernière. Dans le cas plus complexe d'une goutte, comprendre sa dynamique suppose de tenir compte de la dissipation visqueuse ayant lieu à l'intérieur de celle-ci (cette contribution est négligée dans le cas d'une bulle), mais aussi de l'influence de la viscosité de la phase interne sur la topographie de l'interface ainsi que sur la condition aux limites à l'interface.

C'est dans ce contexte que s'inscrit cette étude qui *a pour objectif de comprendre le lien qui existe entre la dynamique d'une goutte et la topographie et les propriétés de son interface en environnement confiné*. L'intérêt porté à ce système physique s'explique premièrement du point de vue fondamental par la richesse des phénomènes physiques résultant du couplage entre hydrodynamique et physico-chimie des interfaces. Deuxièmement, il existe un intérêt pratique en lien avec la compréhension du transport de gouttes en microfluidique digitale ainsi qu'avec l'optimisation de l'extraction d'hydrocarbure.

Dans la suite de ce premier chapitre, nous commencerons par énoncer les approximations utilisées dans la description d'écoulements hydrodynamiques biphasiques confinés, puis, une brève présentation des effets de surface prépondérants au sein de tels systèmes sera donnée. Sur la base des concepts et équations introduits, nous présenterons ensuite les résultats expérimentaux et théoriques portant sur la topographie de film de lubrification donnés par la littérature. Nous verrons que, suivant la géometrie du canal dans lequel se déplace la bulle/goutte (*i.e.* capillaire à section circulaire ou cellule de Hele-Shaw), le lien entre topographie et mobilité n'est pas aussi évident à établir.

1.2 Hydrodynamique d'un système biphasique confiné

Ce travail porte sur des écoulements incompressibles et biphasiques de fluides newtoniens. Ceci implique que le mouvement de chaque fluide peut être décrit par l'équation de Navier-Stokes et que la condition sur les contraintes s'exercant à l'interface doit être considérée.

1.2.1 Équation de Stokes

La dynamique d'un fluide newtonien en écoulement incompressible est décrite par l'équation de Navier-Stokes :

$$\rho\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \rho(\mathbf{v}.\mathbf{grad})\mathbf{v} = -\mathbf{grad}p + \eta\mathbf{\Delta v} + \rho\mathbf{f} \tag{1.1}$$

où ρ désigne la masse volumique du fluide ; t le temps ; $\mathbf{v}$ le champ des vitesses ; p la pression ; η la viscosité dynamique du fluide et $\mathbf{f}$ l'ensemble des forces extérieures par unité de masse.

En outre, l'écoulement étant incompressible, l'équation de continuité nous donne

$$\mathrm{div}(\mathbf{v}) = 0 \tag{1.2}$$

Pour des écoulements stationnaires de fluide visqueux s'écoulant lentement en géométrie confinée, l'équation (1.1) peut être simplifiée. Ces écoulements sont caractérisés par la petitesse du nombre de Reynolds correspondant au rapport entre les effets inertiels et visqueux $Re = \frac{\rho UH}{\eta} \ll 1$. Dans le cas de la microfluidique, cadre dans lequel se déroule toute cette étude, les grandeurs caractéristiques intervenant dans le nombre de Reynolds sont de l'ordre de, $U \sim 1$ mm/s pour la vitesse, $\rho \sim 10^3$ Kg/m^3 pour la masse volumique, $\eta \sim 1$ mPa.s pour la viscosité et de H$\sim$ 10 μm pour la distance, ce qui assure $Re \ll 1$. Dans ces conditions, le terme inertiel peut être négligé et on obtient l'équation de Stokes :

$$-\mathbf{grad}p + \eta\mathbf{\Delta v} + \rho\mathbf{f} = 0 \tag{1.3}$$

La force extérieure par unité de volume $\rho\mathbf{f}$ peut s'écrire sous la forme $\mathbf{grad}(p_o)$ lorsqu'elle dérive d'un potentiel p_o. Dans cette étude, la seule force extérieure est celle de gravité, ce qui donne $\mathbf{f} = \mathbf{g} = \mathbf{grad}(p_o)/\rho$ où $\mathbf{grad}(p_o)$ est le gradient de pression hydrostatique. En intégrant le potentiel p_o implicitement dans le gradient de pression, on obtient :

$$\mathbf{grad}p' = \eta\mathbf{\Delta v} \tag{1.4}$$

Pour un écoulement biphasique, l'équation de Stokes est valable dans chacune des deux phases. Pour déterminer le champ des vitesses au sein de chaque phase, il faut de plus considérer les conditions aux limites cinématique et dynamique au niveau des parois solides et de l'interface séparant les deux fluides. La condition cinématique aux parois solides et à l'interface se traduit respectivement par l'égalité entre la vitesse du fluide et celle de la paroi, et par l'égalité des vitesses au sein de chaque phase au niveau de l'interface. La condition limite dynamique à l'interface se traduit par la continuité des contraintes normale et tangentielle. Ces deux dernières relations seront explicitées en sous-section 1.3.2 puisqu'elles font intervenir une notion développée dans une section ultérieure : la tension superficielle.

1.2.2 Approximation de lubrification

L'approximation de lubrification permet de simplifier l'équation de Stokes lorsque les distances caractéristiques de variation des paramètres de l'écoulement sont très différentes suivant la direction considérée. Cette approximation permet d'obtenir une relation simple entre le champ des vitesses et le gradient de pression au sein de l'écoulement et sera utilisée dans la détermination de la topographie du film de lubrification.

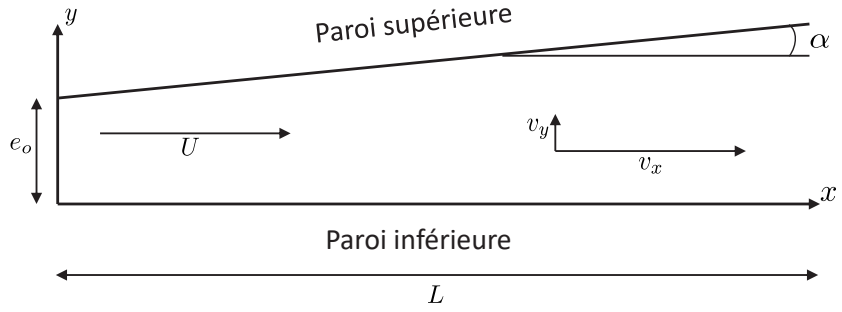

FIGURE 1.2: Schéma de la géométrie d'un écoulement de lubrification bidimensionnel

Illustrons cette approximation par un exemple simple. Considérons l'écoulement bidimensionnel dans le plan (xy) entre deux parois, la paroi supérieure étant légèrement inclinée d'un angle $\alpha \ll 1$ par rapport à l'axe x. Supposons que la distance caractéristique de variation des paramètres de l'écoulement parallèlement aux parois, nommée L, est bien plus grande que la distance caractéristique entre celles-ci e_o (voir Fig. 1.2) et cherchons ce que deviennent les différents termes de l'équation de Stokes. Pour cela nous commençons par déterminer la relation liant les vitesses caractéristiques de l'écoulement suivant x et y, nommées respectivement U et V, à l'aide de l'équation de continuité :

$$\frac{\partial v_x}{\partial x} = -\frac{\partial v_y}{\partial y} \Rightarrow \frac{U}{L} \approx \frac{V}{e_o}$$

L'équation de Stokes projetée suivant l'axe x et y nous donne :

$$\begin{aligned} \frac{\partial p}{\partial x} &= \eta \left(\frac{\partial^2 v_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v_x}{\partial y^2} \right) \\ \frac{\partial p}{\partial y} &= \eta \left(\frac{\partial^2 v_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v_y}{\partial y^2} \right) \end{aligned} \tag{1.5}$$

Les ordres de grandeur de chacun des termes du laplacien des vitesses sont donnés par

$$\frac{\partial^2 v_x}{\partial x^2} \approx \frac{U}{L^2} \qquad \frac{\partial^2 v_x}{\partial y^2} \approx \frac{U}{e_o^2}$$
$$\frac{\partial^2 v_y}{\partial x^2} \approx \frac{e_o}{L^3} U \qquad \frac{\partial^2 v_y}{\partial y^2} \approx \frac{U}{e_o L}$$

Étant donnée que $e_o \ll L$, l'équation de Stokes à l'ordre le plus bas devient :

$$\begin{aligned} \frac{\partial p}{\partial x} &\approx \eta \frac{\partial^2 v_x}{\partial y^2} \\ \frac{\partial p}{\partial y} &\approx 0 \end{aligned} \tag{1.6}$$

On voit que dans l'approximation de lubrification, le champ des vitesses est considéré unidirectionnel et ne dépendant que de la coordonnée y. D'autre part, comme le champ de pression est considéré uniforme le long de l'axe y, il devient facile d'intégrer par rapport à y l'équation de Stokes projetée suivant x et d'obtenir la relation liant la vitesse au gradient de pression. Cette approximation sera utilisée par la suite au niveau du film de lubrification.

1.3 Effets de surface

Les écoulements biphasiques en géométrie confinée étant caractérisés par la prédominance des effets de surface par rapport à ceux en volume, il devient nécessaire de tenir compte de phénomènes tels que la capillarité et le mouillage pour décrire les écoulements à ces échelles.

1.3.1 Capillarité, mouillage et tensioactif

1.3.1.1 Capillarité

La capillarité est l'étude des interfaces entre deux liquides non miscibles, ou entre un liquide et l'air [10]. Une goutte d'huile dans l'eau possède une forme bien définie qui implique la présence d'une force (ou tension) maintenant cette géométrie bien particulière, c'est la tension de surface. Lorsque l'on cherche à créer de l'interface entre deux fluides, il faut fournir de l'énergie au système (par exemple pour faire une mayonnaise). Si on augmente la surface A de l'interface d'une quantité dA, il faut fournir un travail δW proportionnel au nombre de molécules à amener à l'interface, soit à dA :

$$\delta W = \gamma dA$$

où γ est le coefficient de tension superficielle, homogène à une force par unité de longueur (unité N/m).

Les phénomènes de tension superficielle ont pour effet de minimiser l'aire de l'interface entre deux fluides, compte tenu des contraintes imposées par ailleurs au système (pression, gravité). En particulier, en l'absence de gravité, une bulle ou une goutte adopte une forme sphérique car celle-ci assure une surface minimale à volume donné Fig. 1.3.

La tension superficielle est aussi à l'origine du saut de pression lorsqu'une surface (ou interface) est traversée. Par exemple, pour qu'une goutte sphérique de rayon R soit en équilibre, il est nécessaire que l'intérieur de la goutte soit en surpression par rapport à l'extérieur d'une quantité :

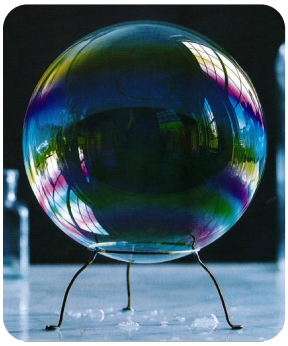

FIGURE 1.3: Manifestation de la tension superficielle : la bulle forme une sphère parfaite. Adapté de [11].

$$\Delta p = \frac{2\gamma}{R}$$

Cette relation, appelée loi de Laplace [12], implique que la pression à l'intérieur d'une petite goutte est plus élevée qu'à l'intérieur d'une grande. Dans le cas où la surface de séparation entre les deux fluides est quelconque, la loi de Laplace prend la forme générale :

$$\Delta p = \gamma \left(\frac{1}{R} + \frac{1}{R'} \right) = \gamma C$$

où R et R' sont les rayons de courbure principaux de la surface au point considéré et C est la courbure moyenne locale de l'interface.

1.3.1.2 Mouillage

Le mouillage est l'étude de l'étalement d'un liquide déposé sur un substrat (solide ou liquide). Il permet de comprendre par exemple l'étalement d'une goutte sur une surface de verre. Le mouillage peut être total (grande affinité du liquide pour le substrat) ou partiel. Pour différencier ces deux cas, on définit le paramètre d'étalement S comme la différence entre l'énergie de surface du substrat sec et celle du substrat mouillé :

$$S = \gamma_S - (\gamma_{SL} + \gamma)$$

où γ_S, γ_{SL} et γ sont respectivement les tensions superficielles pour les couples solide-air, liquide-solide et liquide-air. Si $S > 0$, le mouillage est total, sinon il est partiel. En microfluidique biphasique, les canaux doivent être traités de façon à ce que l'on soit en situation de mouillage total pour la phase externe. Pour des gouttes d'huile dans l'eau, les canaux sont donc hydrophiles, et hydrophobes dans le cas contraire. De plus, pour stabiliser ces émulsions et faciliter leur création, l'utilisation d'agents de surface (appelés surfactants ou tensioactifs) est souvent nécessaire.

1.3.1.3 Surfactants

Un surfactant est un composé amphiphile qui permet d'abaisser la tension superficielle. Il s'adsorbe naturellement aux interfaces car il est composé d'une partie hydrophile et d'une partie hydrophobe (Fig. 1.4.a). Dans la plupart des cas, la partie hydrophobe est formée de chaînes aliphatiques $CH3(CH2)_n$. La partie hydrophile est en général un ion (cation ou anion) qui forme une tête polaire ou alors une chaîne courte soluble dans l'eau (possibilité de liaisons-H). Lorsque ces surfactants se retrouvent dans une phase en volume, ils peuvent s'associer sous forme de micelles (Fig. 1.4.b). Ils mettent alors en commun leurs parties hydrophiles (pour des surfactants dans l'huile) de manière à n'exposer au liquide que des parties hydrophobes. Ce comportement apparaît au delà d'une concentration appelée concentration micellaire critique (CMC). La CMC est aussi caractéristique puisqu'elle définit la concentration au delà de laquelle l'ajout de surfactants en volume ne fait plus varier la tension superficielle (Fig. 1.4.c).

La présence de molécules tensioactives au sein d'une interface peut générer des inhomogénéités spatiales de tension superficielle si la concentration surfacique de ces molécules n'est pas homogène. Un gradient de tension superficielle induit une contrainte sur l'interface qui peut alors entraîner une partie du fluide et générer un écoulement en volume ; c'est *l'effet Marangoni*. La contrainte tangentielle associée est $\mathbf{grad}(\gamma)$.

Dans la sous-section suivante, les effets liés à la tension superficielle seront pris en compte dans l'écriture du bilan des contraintes à l'interface.

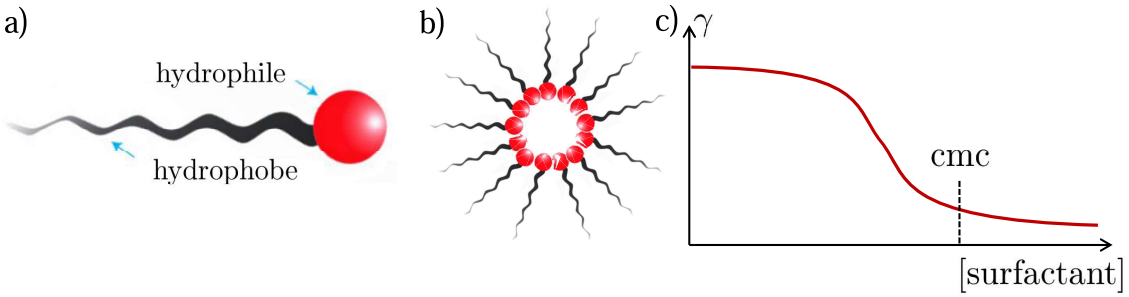

FIGURE 1.4: **(a)** Structure du surfactant ; **(b)** Exemple de micelle ; **(c)** Exemple d'évolution de la tension superficielle avec la concentration en surfactant. La concentration micellaire critique (CMC) est définie lorsque la tension superficielle cesse de diminuer.

Dans le cadre de cette étude deux surfactants ont été utilisés. Le premier est le $C_{10}TAB$ (Decyltrimethylammonium bromide) composé d'une chaîne de dix carbones et d'une tête azote chargée positivement. Le second est le SDS (Sodium Dodecyl Sulfate), composé d'une chaîne de douze carbones et d'une tête sulfate chargée négativement. Ces deux surfactants ont la caractéristique d'être de faible masse moléculaire (M <1000 g/mol), ce qui leur confère la capacité de se déplacer rapidement en solution par diffusion browniene. D'autre part, ils

sont plus prompts à s'adsorber (et à désorber) sur une interface que des tensioactifs de forte masse moléculaire.

1.3.2 Conditions aux limites à l'interface

Dans un écoulement biphasique, les écoulements dans les phases 1 et 2 sont couplés par les relations cinématique et dynamique à l'interface. La première se traduit par la continuité des vitesses à l'interface :

$$\mathbf{v}_1 = \mathbf{v}_2 \tag{1.7}$$

La seconde se traduit par la continuité des contraintes normale et tangentielle à l'interface. En appelant $[\boldsymbol{\sigma}]_j$ $(j = 1, 2)$ le tenseur des contraintes visqueuses dans la phase j, p_j $(j = 1, 2)$ la pression dans la phase j, $\mathbf{t}_k$ $(k = 1, 2)$ les vecteurs unitaires tangents à l'interface et $\mathbf{n}_{1\to2}$ le vecteur normal à l'interface orienté de de la phase 1 vers 2, les deux relations s'écrivent :

$$\begin{aligned} [-p_2 + \mathbf{n}_{1\to2}.([\boldsymbol{\sigma}]_2.\mathbf{n}_{1\to2})] - [-p_1 + \mathbf{n}_{1\to2}.([\boldsymbol{\sigma}]_1.\mathbf{n}_{1\to2})] &= \gamma C \\ \mathbf{t}_k.([\boldsymbol{\sigma}]_2.\mathbf{n}_{1\to2}) - \mathbf{t}_k.([\boldsymbol{\sigma}]_1.\mathbf{n}_{1\to2}) + \mathbf{t}_k.\mathbf{grad}(\gamma) &= 0 \end{aligned} \tag{1.8}$$

où $C = \mathbf{div}(\mathbf{n}_{1\to2})$ est la courbure de l'interface.

Par la suite, l'approximation de lubrification nous permettra de simplifier ces relations.

1.4 Propriétés du film de lubrification d'une goutte non mouillante en géométrie confinée

Comprendre la dynamique d'une bulle ou d'une goutte non mouillante lorsqu'elle est poussée dans un environnement confiné est un problème étudié depuis les années cinquante. Comme évoqué en section 1.1, les premiers travaux sur le sujet sont dus à Taylor & Saffman [4]. Pour modéliser une bulle d'air poussée par de l'eau dans une cellule de Hele-Shaw, ils assimilent cette dernière à un cylindre mouillant dépourvu de ménisque et de film de lubrification, et déduisent qu'en régime stationnaire, une bulle adopte une forme circulaire et se déplace à une vitesse $U_d = 2U_f$ où U_f est la vitesse du liquide poussant la bulle.

La présence d'un film liquide entre la bulle et la paroi du canal ainsi que son influence sur la vitesse de la bulle ont d'abord été étudiés dans le cas d'une bulle se déplaçant dans un tube capillaire (géométrie axisymétrique) par Bretherton [2], supposant que de la friction visqueuse entre la bulle et la paroi pouvait se localiser dans ce film. En établisssant dans un premier temps la relation entre U_d et U_f, faisant intervenir l'épaisseur du film de lubrification, puis en déterminant théoriquement l'épaisseur du film en fonction des paramètres du système (*i.e.* viscosité, tension superficielle, rayon du capillaire), il parvint à reproduire quantitativement ses mesures expérimentales de U_d/U_f dans une large gamme de vitesses de bulle. Ainsi, connaître le profil géométrique de l'interface est nécessaire pour déterminer la

vitesse de la bulle en fonction de la vitesse de la phase externe porteuse. C'est pourquoi nous détaillons dans cette section les différents résultats déjà établis sur la topographie de film de lubrification de bulle et de goutte non mouillantes en environnement confiné. Les deux géométries d'écoulement auxquelles nous nous intéressons sont celle d'un capillaire circulaire (géométrie axisymétrique) et celle d'une cellule de Hele-Shaw (géométrie 2D).

1.4.1 Géométrie axisymétrique

1.4.1.1 Bulle

Dans l'article de Bretherton [2], une bulle confinée dans un capillaire circulaire est poussée par un fluide visqueux dans la direction x (Fig. 1.5.a et .b). Le rayon r du capillaire et la vitesse U_d de la bulle sont supposés suffisamment petits pour que les effets inertiels soient négligeables devant les effets visqueux et capillaires. D'autre part, le confinement étant important, les effets capillaires prennent le pas sur la gravité. Le ménisque avant dépose lors de son passage un film liquide d'épaisseur h_∞ supposé négligeable devant r. Le profil de l'interface dans la moitié avant (ou arrière) de la bulle peut être divisé en trois régions : le ménisque statique (région II), le ménisque dynamique (région III située à une distance r du nez de la bulle) et le film plat (région I). Au sein du ménisque statique, la contrainte visqueuse exercée par le fluide externe de viscosité η_o est $O(\eta_o U_d/r)$, tandis que la contrainte capillaire est $O(\gamma C)$ où l'ordre de grandeur de la courbure correspond à celui d'une bulle au repos ($C_{repos} = 2/r$). Le rapport de ces deux contraintes vaut $O(\eta_o U_d/\gamma)$, nommé nombre capillaire, $Ca = \eta_o U_d/\gamma$. Si $Ca \ll 1$, ce que l'on supposera vrai dans tout cet ouvrage, les effets capillaires dominent par rapport aux effets visqueux dans le ménisque statique et l'interface garde la même forme que lorsque la bulle est au repos. En particulier, la courbure de l'interface est égale à $C_{repos} = 2/r$. Au sein du ménisque dynamique, les contraintes visqueuses sont beaucoup plus importantes, de l'ordre de $O(\eta_o U_d/h_\infty)$, et la courbure de l'interface passe d'approximativement $2/r$ dans le ménisque statique à $1/r$ dans le film plat. Le ménisque dynamique est le lieu où l'épaisseur h_∞ déposée dans le film plat est déterminée par une compétition entre effets visqueux et capillaires. Dans la région I, un film plat d'épaisseur h_∞ uniforme se développe. Dans le cas d'une bulle, l'absence de contrainte interfaciale implique que ce film est au repos sur la paroi du canal.

Pour déterminer l'épaisseur du profil de l'interface h, et, en particulier, l'épaisseur du film plat h_∞, Bretherton résout l'équation de Stokes dans l'approximation de lubrification dans le ménisque dynamique en prenant comme conditions aux limites la nullité de la contrainte visqueuse tangentielle à l'interface ainsi que le non-glissement à la paroi. D'autre part, le fait de considérer la pression homogène au sein de la bulle, et de négliger les contraintes visqueuses normales à l'interface par rapport au saut de pression de Laplace, permet d'écrire le gradient de pression dans la phase externe en fonction du gradient de courbure ($\partial p/\partial x = -\gamma \partial C/\partial x$). En intégrant l'équation de Stokes deux fois, ceci lui permet d'exprimer le champ des vitesses

en fonction du gradient de courbure. En considérant ensuite la conservation du débit le long de l'axe de migration de la bulle x entre le ménisque dynamique et le film plat d'épaisseur h_∞, il établit l'équation du profil (1.9), qu'il résout en imposant à la solution d'être raccordée à un profil de courbure constante dans la région II. L'établissement de l'équation (1.9) sera détaillé en section 2.1 du chapitre 2. Sa résolution est présentée en Annexe A.

$$U_d(h - h_\infty) = \frac{\gamma}{3\eta_o}\frac{\partial^3 h}{\partial x^3}h^3 \tag{1.9}$$

Dans l'éq. (1.9), le membre de gauche est lié à l'entraînement visqueux de liquide par la paroi qui tend à épaissir le film alors que le terme du membre de droite est lié au gradient de courbure de l'interface qui tend à vider le film.

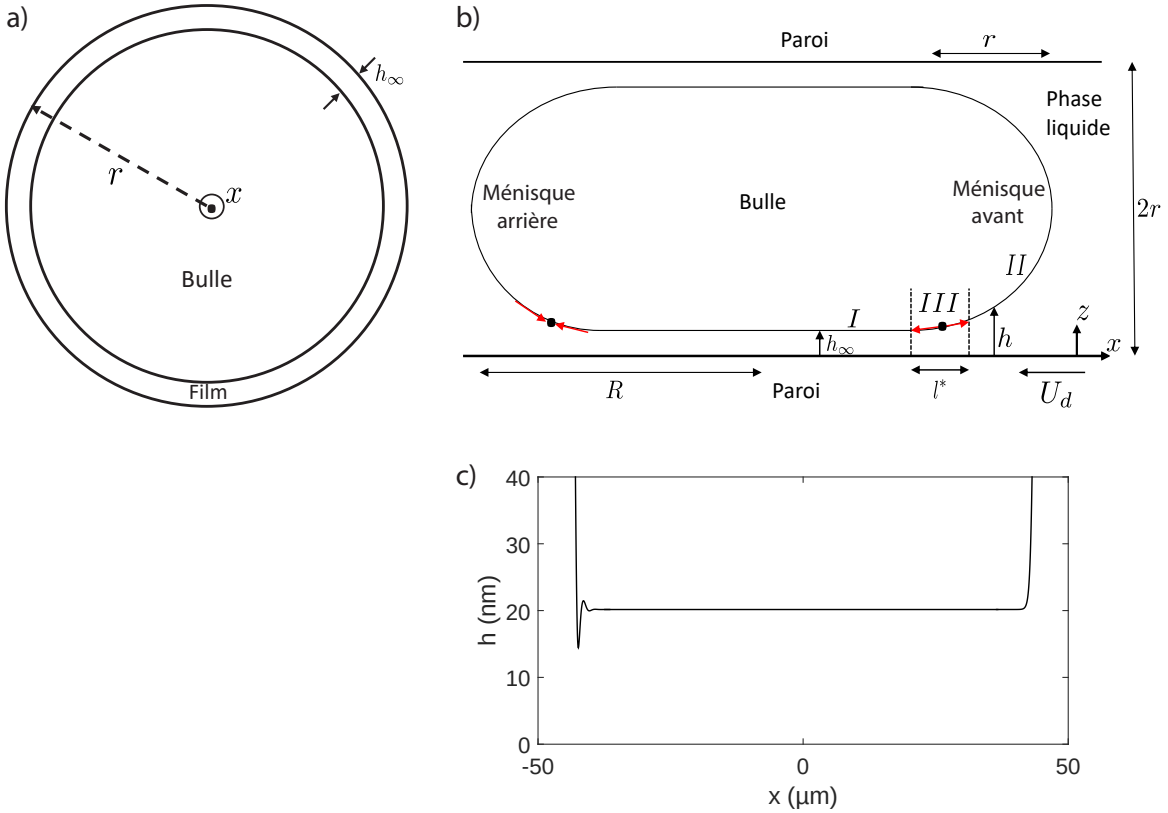

FIGURE 1.5: Coupes transverse **(a)** et axiale **(b)** d'une bulle confinée dans un capilaire circulaire. ; **(c)** Profil de l'interface de la bulle donné par l'équations de Bretherton (1.9) [2]

La résolution de l'équation du profil permet de déterminer l'épaisseur du film plat en fonction du rayon du capillaire r et du nombre capillaire [2] :

$$\boxed{h^{\text{Breth}} = r1.337Ca^{2/3}} \tag{1.10}$$

La connaisance du profil permet aussi d'évaluer la friction dans les ménisques et donc la chute de pression due à la présence de la bulle $\Delta P = 4.52(3Ca)^{2/3}\gamma/r$ [2]. D'autre part, la conservation du débit entre une section du capillaire en amont de la bulle et une section comprenant la bulle donne $\pi r^2 U_f = \pi(r - h_\infty)^2 U_d$, ce qui permet d'établir la relation entre U_d et U_f :

$$\frac{U_d}{U_f} = \frac{1}{1 - 2.67Ca^{2/3}} \tag{1.11}$$

C'est cette dernière expression que Bretherton compare avec ses données expérimentales de U_d/U_f en fonction de Ca, qui fournissent en réalité, une mesure indirecte de l'épaisseur du film.

Remarques :

- Le calcul du profil montre qu'il n'est pas symétrique entre les ménisques avant et arrière : il varie de façon monotone à l'avant et présente une oscillation à l'arrière (Fig. 1.5.c). La dissymétrie entre l'avant et l'arrière peut se comprendre en se plaçant dans le référentiel de la bulle où la paroi a une vitesse $-U_d\mathbf{e}_x$ (Fig. 1.5.b). La plaque tend à déplacer le liquide dans la direction $-\mathbf{e}_x$ générant une densité volumique de force visqueuse dans cette même direction. A l'avant, la courbure de l'interface augmente avec x et génère une dépression au sein du liquide équilibrant ces forces visqueuses. A l'arrière en revanche, si la courbure de l'interface croît de façon monotone avec x, l'équilibre avec les forces visqueuses ne peut être respecté.
- La théorie de Bretherton prédit deux points de stagnation (points noirs sur la Fig. 1.5.b) situés à l'interface lorsqu'on se place dans le référentiel de la bulle : un point de stagnation divergent dans le ménisque dynamique avant où l'interface est créée, un point de stagnation convergent dans le ménisque dynamique arrière où l'interface est détruite. L'existence de ces points a été mise en évidence par des simulations numériques 2D d'une goutte se déplaçant dans un capillaire cylindrique [13]. Nous mentionnons leur existence ici car nous verrons au chapitre 4, qu'au sein des sytèmes présentant des tensioactifs, ces points permettent d'expliquer pourquoi les surfactants peuvent s'accumuler à l'arrière de la bulle/goutte et être moins concentrés à l'avant.
- Il est intéressant de remarquer que les lois d'échelle pour l'épaisseur du film plat h_∞, ainsi que pour l'extension suivant x du ménisque dynamique l^*(Fig. 1.5.b) peuvent être établies simplement. Le problème étant axisymétrique avec $h_\infty \ll r$, il peut être traité de façon 2D dans le plan (xz). D'autre part, la seule courbure responsable d'un gradient de pression est celle dans le plan (xz) valant $C_{xz} = \frac{\partial^2 h}{\partial x^2}/[1 + (\frac{\partial h}{\partial x})^2]^{3/2}$, l'autre étant constante et valant $1/r$. Dans l'approximation de lubrification, $C_{xz} \simeq \frac{\partial^2 h}{\partial x^2}$, et l'ordre de grandeur du gradient de courbure au sein du ménisque dynamique est :

$$\frac{\partial C_{xz}}{\partial x} \sim \frac{h_\infty}{l^{*3}}$$

Par ailleurs, le gradient de courbure peut être vu comme une différence de courbure $1/r$ s'établissant sur une longueur l^* et par conséquent :

$$\frac{\partial C_{xz}}{\partial x} \sim \frac{1}{r l^*}$$

Ces deux dernières équivalences donne la première relation entre h_∞ et l^*

$$h_\infty \sim \frac{{l^*}^2}{r} \tag{1.12}$$

Après avoir exprimé le gradient de pression en fonction du gradient de courbure ($\frac{\partial p}{\partial x} = -\gamma \frac{\partial^3 h}{\partial x^3}$), la seconde relation liant h_∞ et l^* est celle provenant de l'équation de Stokes :

$$\gamma \frac{h_\infty}{{l^*}^3} \sim \eta_o \frac{U_d}{h_\infty^2}$$

Les lois d'échelle recherchées sont finalement :

$$h_\infty \sim r\, Ca^{2/3} \qquad l^* \sim r\, Ca^{1/3} \tag{1.13}$$

Il convient de remarquer que tous ces résultats ne sont théoriquement valides que lorsque l'approximation de lubrification est vérifiée, c'est-à-dire lorsque $h_\infty \ll l^*$, ou bien $Ca < 10^{-3}$.

1.4.1.2 Bulle en présence de surfactants

La théorie de Bretherton est difficile à valider expérimentalement car elle ne tient pas compte de la présence de surfactants. Que ce soit pour des quantités très faibles [14] (gradients de concentration en volume) ou pour des solutions concentrées [15] (les transferts de masse sont contrôlés par les cinétiques d'adsorption-desorption), les films de lubrification sont plus épais en présence de surfactants que la prédiction de Bretherton. Les valeurs d'épaisseur de film de lubrification sont comprises entre l'épaisseur de Bretherton h^{Breth} et une limite supérieure h^{roll} correspondant à une vitesse interfaciale uniforme et égale à $-U_d\,\mathbf{e}_x$ dans le ménisque dynamique dans le référentiel de la bulle. Ce cas limite sera appelé *rolling* puisque le mouvement de l'interface dans le référentiel de la paroi est semblable à celui d'une chenille de blindé roulant sur le sol. Les surfactants peuvent modifier la rhéologie interfaciale et ainsi les conditions limites à l'interface [16, 17]. Un autre cas limite est le cas *sliding* dans lequel l'interface est rigide avec une vitesse interfaciale en tout point égale à la vitesse de la bulle dans le référentiel de la paroi. La friction avec la paroi a alors lieu dans le ménisque dynamique mais aussi dans le film plat. Une illustration des deux types de mouvements associé est donnée en Fig. 1.6. Les épaississements associés à ces conditions aux limites sont

$$h^{\text{roll}} = 4^{2/3} h^{\text{Breth}} \qquad h^{\text{slid}} = 2^{2/3} h^{\text{Breth}} \tag{1.14}$$

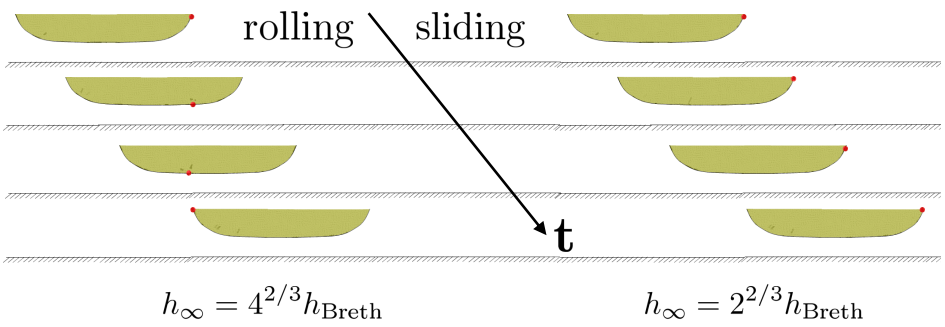

FIGURE 1.6: Illustration des mouvements de rolling (gauche) et de sliding (droite). Le point rouge représente un point de l'interface. Chaque ligne représente l'interface à un instant t. Adapté de [18]

Les résultats théorique et numérique de ce problème pour les trois cas limites (Bretherton, *rolling* et *sliding*) ont récemment été compilés par Cantat [17].

La comparaison avec les données expérimentales de profils de bulle en présence de surfactants [19], montre un bon accord du modèle *sliding* avec les données expérimentales (Fig. 1.7)

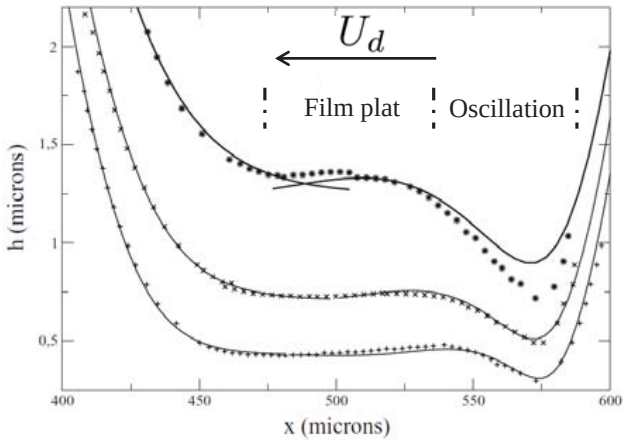

FIGURE 1.7: Profils de film de lubrification pour une bulle confinée à différents Ca. h croît avec Ca. La bulle se déplace de la droite vers la gauche, on remarque l'oscillation à l'arrière. Les points son extraits d'expériences [19] et les lignes sont les profils théoriques correspondant au cas *sliding* [17]

Comme expliqué par Teletzke *et al.* [20], les effets Marangoni résultant d'une concentration plus élevée aux extrémités de la goutte pourraient engendrer des écoulements qui épaississent le film de lubrification. La viscosité aussi peut jouer un rôle d'épaississement et on verra alors apparaître un comportement différent entre la bulle et la goutte.

1.4.1.3 Goutte

Lorsque une goutte visqueuse non mouillante se déplace dans un capillaire, la viscosité de la phase interne peut modifier de façon significative la topologie des écoulements interne et externe et amener à un épaississement du film [20, 1, 21]. Deux modèles déterminant l'épaisseur du film de lubrification en fonction du rapport des viscosités entre la phase interne (viscosité η_i) et la phase externe (viscosité η_o), $\lambda = \eta_i/\eta_o$ vont être exposés. Nous rappellerons et complèterons l'analyse comparative qu'a faite Axel Huerre [18] entre ces deux modèles et la comparaison avec ses données expérimentales.

Modèle de Teletzke *et al.* [20]

On considère l'écoulement d'une goutte visqueuse (viscosité η_i) dans un autre fluide visqueux (viscosité η_o) (Fig. 1.8). La goutte a une longueur $2R$, très grande devant le diamètre du capillaire $2r$, de façon à ce qu'elle soit confinée. La goutte se déplace à une vitesse moyenne U_d et le problème est décrit dans le référentiel de la goutte, où la paroi se déplace à la vitesse $-U_d$ (Fig. 1.8). L'épaisseur du film est noté $h(x)$ et tend vers la valeur h_∞ dans le film plat. Le but de cette étude est d'établir la dépendance de l'épaisseur du film de lubrification en fonction du nombre capillaire et du rapport des viscosités $\lambda = \eta_i/\eta_o$.

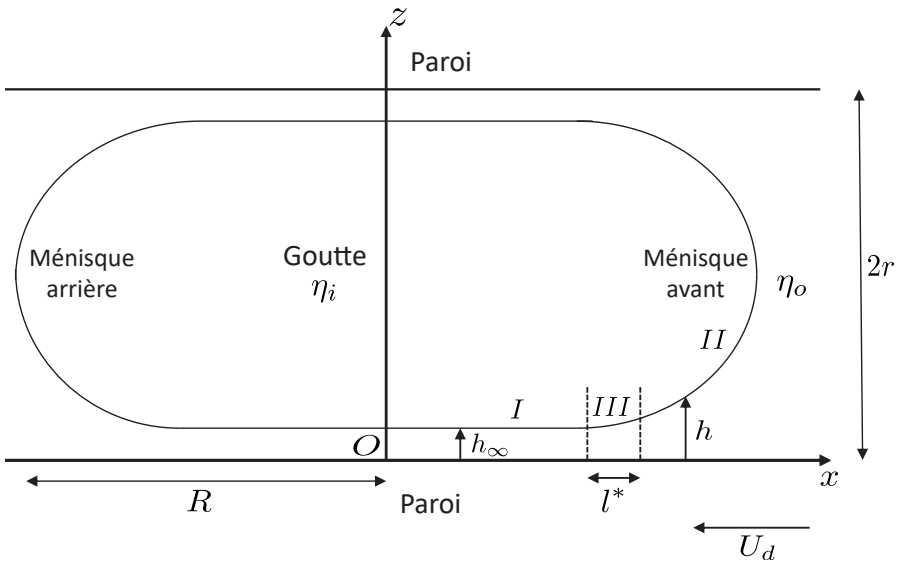

FIGURE 1.8: Coupe de la goutte selon un plan contenant l'axe de symétrie du capillaire.

L'approche adoptée par Teletzke *et al.* pour décrire ce système est la suivante. L'écoulement étant axisymétrique avec $h_\infty \ll r$, il est étudié dans le plan (xz). Les écoulements sont stationnaires et les effets inertiels et de pesanteur sont négligés. Ils font l'hypothèse que $Ca \ll 1$. L'équation de Stokes est écrite dans les deux phases en considérant l'écoulement

à l'intérieur de la goutte comme un Poiseuille unidirectionnel suivant $\mathbf{e}_x$ dans les régions I et III. L'écoulement dans la phase continue est traité dans l'approximation de lubrification dans les régions III et I (Fig. 1.8).

$$\frac{\partial p_i}{\partial x} = \eta_i \frac{\partial^2 u_i}{\partial z^2}$$

$$\frac{\partial p_o}{\partial x} = \eta_i \frac{\partial^2 u_o}{\partial z^2}$$

où (p_i, u_i) et (p_o, u_o) sont respectivement la pression et la vitesse suivant $\mathbf{e}_x$ à l'intérieur et à l'extérieur de la goutte.

On fait l'hypothèse que les contraintes visqueuses normales à l'interface sont négligeables devant la pression de Laplace dans la région III ce qui implique que $\frac{\partial p_o}{\partial x}$ est principalement dû au gradient de courbure de l'interface. Ceci sera démontré dans la première section du chapitre 2.

La détermination des champs des vitesses dans les deux phases s'effectue en considérant les conditions aux limites suivantes

– Non glissement à la paroi

$$u_o(x, 0) = -U_d$$

– Symétrie en z=r

$$\left(\frac{\partial u_i}{\partial z}\right)_r = 0$$

– Continuité de la vitesse en $z = h(x)$

$$u_i(x, h(x)) = u_o(x, h(x))$$

– Continuité des contraintes tangentielles à l'interface

$$\eta_i \left(\frac{\partial u_i}{\partial z}\right)_{h(x)} = \eta_o \left(\frac{\partial u_o}{\partial z}\right)_{h(x)}$$

Une fois déterminées les expressions analytiques des champs des vitesses, l'équation différentielle gouvernant l'évolution spatiale de l'épaisseur du film de lubrification $h(x)$ peut être établie en utilisant la conservation du débit dans chaque phase. L'équation du film a pour paramètres le nombre capillaire Ca, le rayon du tube r et le rapport des viscosités λ. Le profil de l'interface est déterminé numériquement en imposant à la solution d'être raccordée à un film plat pour $|x| \longrightarrow 0$ et à un profil de courbure constante $1/r$ lorsque $|x| \longrightarrow R$. Le raccord à un ménisque de courbure constante dans la région II, égale à celle de la goutte au repos suppose que les contraintes visqueuses à l'intérieur de la goutte sont négligeables devant γ/r dans cette région. Il sera démontré dans la première section du chapitre 2 que cette hypothèse est vraie dans la limite $Ca \ll 1$.

La résolution de l'équation du film de lubrification permet en particulier de déterminer la dépendance de l'épaisseur du film plat h_∞ avec Ca et λ [18]. Afin de caractériser l'effet de la viscosité dans ce modèle, on définit le *facteur d'épaississement du film* comme le rapport entre l'épaisseur du film plat h_∞ et l'épaisseur de Bretherton $h^{\mathrm{Breth}} = 1.337\, r\, Ca^{2/3}$:

$$f = \frac{h_\infty}{h^{\mathrm{Breth}}} \tag{1.15}$$

La Fig. 1.9.a présente ce facteur d'épaississement en fonction du rapport des viscosités λ pour différents Ca. La forme des courbes est la même pour tous les Ca : un plateau ($f = 1$) correspondant à la solution de Bretherton à bas rapport de viscosités, un plateau ($f^{\mathrm{slid}} = 2^{2/3}$) correspondant au cas *sliding* à grand rapport de viscosités, et une croissance monotone sur deux décades entre les deux plateaux. D'autre part, on observe qu'à λ fixé f croît avec Ca (Fig. 1.9.a) et donc le facteur d'épaississement est une fonction croissante de λ et Ca.

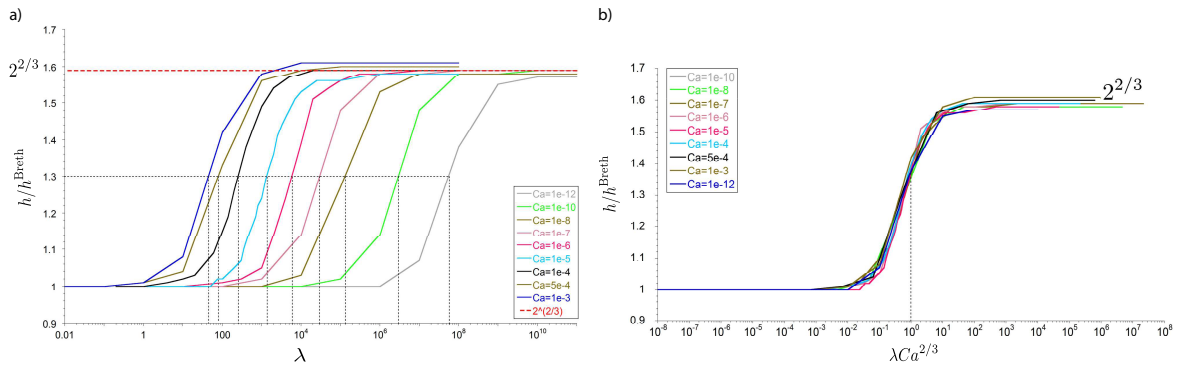

FIGURE 1.9: **(a)** Facteur d'épaississement f en fonction du rapport des viscosités λ pour différentes valeurs du nombre capillaire Ca ; **(b)** Facteur d'épaississement en fonction de $\lambda Ca^{2/3}$. [18]

On remarque sur la Fig. 1.9.a que la transition entre les deux plateaux a lieu pour des rapports de viscosités d'autant plus grands que le nombre capillaire est petit. Autrement dit, l'effet de la viscosité de la phase interne est ressenti pour des λ d'autant plus grands que la goutte se déplace lentement. En relevant la valeur de transition λ^* pour les différents Ca, on remarque que $\lambda^* \propto Ca^{-2/3}$. Le tracé de f en fonction du nombre sans dimension $\lambda Ca^{2/3}$ (Fig. 1.9.b) montre alors que toutes les courbes de la Fig. 1.9.a se superposent sur une courbe maîtresse. Ceci implique que dans ce modèle, l'épaississement du film est exclusivement déterminé par le paramètre $\lambda Ca^{2/3}$. On constate que pour $\lambda \ll Ca^{-2/3}$, la viscosité de la goutte n'influence pas l'épaississement du film et on retrouve la solution de Bretherton pour $\lambda = 0$. Pour $\lambda \sim Ca^{-2/3}$, l'épaississement du film ne dépend que de $\lambda Ca^{2/3}$. Pour $\lambda \gg Ca^{-2/3}$, la viscosité de la goutte immobilise l'interface et l'épaississement correspondant à une situation *sliding* est retrouvé.

Signification physique du paramètre $\lambda Ca^{2/3}$

En écrivant le paramètre $\lambda Ca^{2/3}$ sous la forme $(\frac{\eta_i}{r})/(\frac{\eta_o}{h_\infty})$ (cf. éq. (1.13)), on constate qu'il caractérise le couplage visqueux entre les écoulements à l'intérieur de la goutte et dans le film par l'intermédiaire de la continuité des contraintes visqueuses tangentielles à l'interface. Il pilote la façon dont le cisaillement est réparti à l'intérieur et à l'extérieur de la goutte en fonction des viscosités et des longueurs caractéristiques. Lorsque $\lambda \ll Ca^{-2/3}$, le cisaillement s'établit dans la goutte et le film reste au repos par rapport à la paroi. Dans ce cas, on dit que l'interface est mobile car elle n'oppose pas de résistance à l'entraînement visqueux de la paroi. On retrouve une épaisseur *stress-free* puisque celle-ci est alors uniquement déterminée par le gradient de pression dans le ménisque dynamique.

Si $\lambda \gg Ca^{-2/3}$, le cisaillement s'établit dans le film et le champ des vitesses au sein de la goutte est uniforme. Dans ce cas, l'interface est immobile dans le référentiel de la goutte et oppose une forte résistance à l'entraînement de la paroi. On retrouve alors une épaisseur de type *sliding*, épaissie d'un facteur d'épaississement $2^{2/3}$ par rapport au cas *stress-free*.

Dans le cas intermédiaire $\lambda \sim Ca^{-2/3}$, les écoulements dans les deux phases sont couplés et il devient nécessaire de calculer les champs des vitesses dans les deux phases pour déterminer l'épaisseur du film déposé. Contrairement aux deux cas limites précédents, l'épaisseur du film dépend alors aussi de λ.

On voit que le paramètre $\lambda Ca^{2/3}$ caractérise en fait le degré de mobilité de l'interface et, dans la suite, nous l'appellerons paramètre de mobilité interfaciale à l'instar de Davis, Schonberg & Rallison [22].

Modèle plus complet : Hodges *et al.* [1]

En 2004, Hodges *et al.* [1] publient une nouvelle étude théorique sur l'évolution de l'épaisseur du film de lubrification en fonction du rapport de viscosité et du nombre capillaire en géométrie axisymétrique. Les hypothèses faites sur les écoulements sont les mêmes que celles de Teletzke *et al.*, excepté sur un seul point : l'écoulement dans la région du ménisque dynamique à l'intérieur de la goutte (région III) n'est plus considéré comme un Poiseuille unidirectionnel sur toute l'épaisseur de la goutte et un écoulement local bidimensionnel dans la region III_i est pris en compte (Fig. 1.10). Cet écoulement local peut influencer l'écoulement dans la région du ménisque dynamique où se situe la phase externe (III_o) et donc l'épaississement du film.

Nous indiquons ici les résultats principaux de l'analyse de Hodges *et al.*. La justification des ces résultats par des arguments en lois d'échelle, ainsi que l'établissement de l'équation du film et sa résolution, sont détaillés au début du chapitre 2. Nous rentrons dans le détail de cette approche en début de chapitre 2, car nous nous appuierons sur celle-ci afin de modéliser la topographie du film pour une goutte en géométrie de Hele-Shaw dans la seconde partie de ce même chapitre.

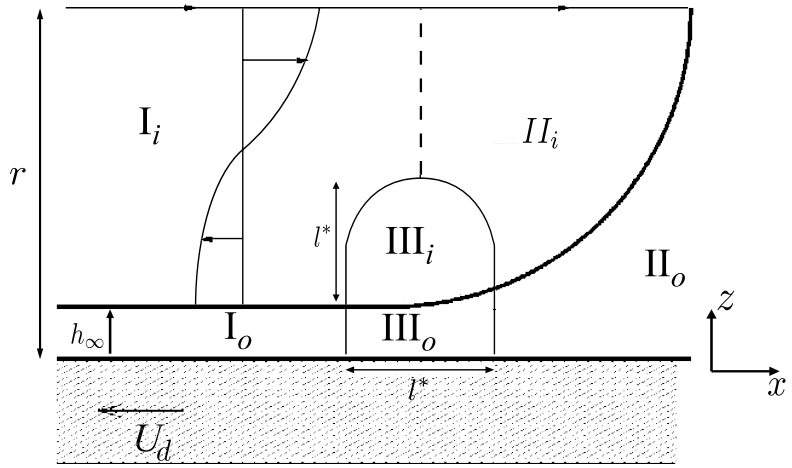

FIGURE 1.10: Schéma du ménisque avant d'une goutte se déplaçant dans un capillaire cylindrique dans le referentiel de la goutte, montrant trois régions asymptotiques distinctes. Les indices i et o se réfèrent respectivement aux régions à l'intérieur et à l'extérieur de la goutte. Adapté de [1]

Par rapport à l'analyse de Teletzke *et al.*, celle de Hodges *et al.* fait apparaître un nouveau paramètre $\lambda Ca^{1/3}$ qui caractérise le couplage visqueux entre les écoulements dans les régions III_i et III_o. Ce nombre indique le degré de mobilité de l'interface dans la région III et peut être écrit sous la forme (cf. (1.13)) $\lambda Ca^{1/3} \sim (\frac{\eta_i}{l^*})/(\frac{\eta_o}{h_\infty})$, où $l^* \sim rCa^{1/3}$ est l'extension suivant z de la région III_i (Fig. 1.10). La loi d'échelle pour cette dernière longueur sera justifiée au chapitre 2. Il est important de comprendre que le paramètre de mobilité interfaciale dans la région III quantifie la mobilité de l'interface dans la région III *relativement* à celle dans la région I où le paramètre est $\lambda Ca^{2/3}$. Ceci implique en particulier que pour $\lambda \gg Ca^{-1/3}$, la vitesse interfaciale dans la région III n'est pas nulle dans le référentiel de la goutte mais égale à celle dans la région I. Dans ce cas, le cisaillement disparaît dans la région III_i et l'écoulement dans la région III_o devient couplé à celui dans le corps de la goutte sur une longueur r. Nous allons à présent donner l'épaississement du film de lubrification pour les différentes valeurs du rapport de viscosité λ :

1. si $\lambda \ll Ca^{-1/3} \ll Ca^{-2/3}$, les interfaces sont mobiles dans les régions I et III, l'épaisseur du film est alors uniquement piloté par le gradient de courbure dans le ménisque dynamique et le facteur d'épaississement se réduit à celui du cas *stress-free*, $f = f^{\text{Breth}} = 1$
2. si $\lambda \sim Ca^{-1/3} \ll Ca^{-2/3}$, l'interface dans la région I est mobile, et la vitesse interfaciale dans la région III résulte du couplage complexe entre les écoulements dans les régions III_i et III_o. Dans ce cas, le facteur d'épaississement dépend uniquement de $\lambda Ca^{1/3}$, et Hodges *et al.* le déterminent numériquement en résolvant l'écoulement dans les régions III_i et III_o par une méthode d'intégrale de bord. L'épaississement calculé

numériquement tend bien vers f^{Breth} lorsque $\lambda \ll Ca^{-1/3}$

3. si $\lambda \gg Ca^{-1/3}$, l'interface dans la région III est immobile et la vitesse interfaciale en son sein est égale à celle dans la région I. Le facteur d'épaississement dépend alors uniquement de $\lambda Ca^{2/3}$ et a pour expression

$$\boxed{f^{\text{Hodg}} = 2^{2/3}\left[\frac{2+5.348\lambda f^{\text{Hodg}} Ca^{2/3}}{1+5.348\lambda f^{\text{Hodg}} Ca^{2/3}}\right]^{2/3}} \tag{1.16}$$

Cette expression montre que $f^{\text{Hodg}} = f^{\text{slid}} = 2^{2/3}$ lorsque $\lambda \gg Ca^{-2/3}$, et $f^{\text{Hodg}} = f^{\text{roll}} = 4^{2/3}$ lorsque $\lambda \ll Ca^{-2/3}$. Cette dernière limite correspond au régime d'épaississement maximal, non prévu par l'analyse de Teletzke *et al.*. En principe, pour observer un régime d'épaississement s'approchant de $f^{\text{roll}} = 4^{2/3}$, il faut satisfaire la condition $Ca^{-1/3} \ll \lambda \ll Ca^{-2/3}$, ce qui suppose d'avoir $Ca \leq 10^{-6}$.

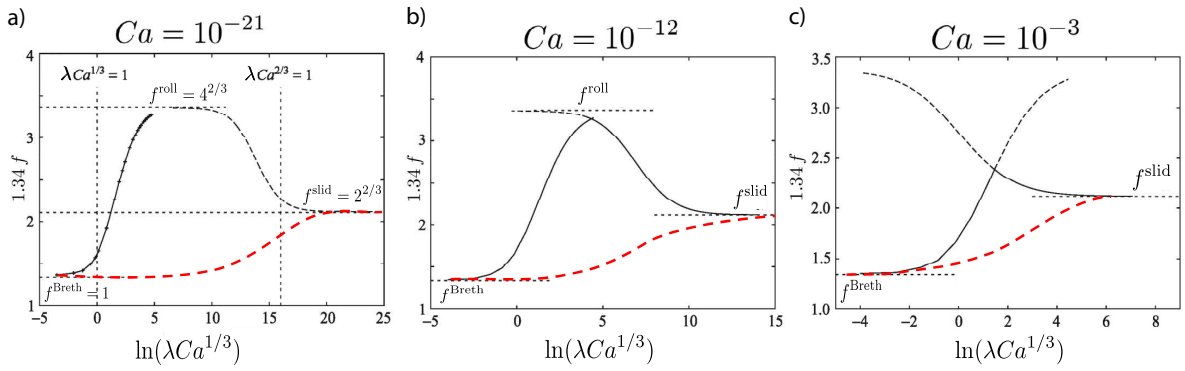

FIGURE 1.11: Facteur d'épaississement $f = h_\infty / h^{Breth}$ en fonction de $\lambda Ca^{1/3}$ pour trois nombre capillaire : **(a)** $Ca = 10^{-21}$; **(b)** $Ca = 10^{-12}$ et **(c)** $Ca = 10^{-3}$. Les asymptotes correspondent au cas : $f^{\text{Breth}} = 1$ (*stress-free*), $f^{\text{roll}} = 4^{2/3}$ (*rolling*) et $f^{\text{slid}} = 2^{2/3}$ (*sliding*). Les traits pointillés rouges représentent les valeurs obtenues avec le modèle de Teletzke *et al.*. Par rapport au modèle de Hodges *et al.*, l'épaississement apparaît plus tard et est moins important. Adapté de [1] et [18]

En considérant les solutions pour les deux cas $\lambda \sim Ca^{-1/3}$ et $\lambda \gg Ca^{-1/3}$, le facteur d'épaississement peut être tracé pour différents Ca en fonction du paramètre $\lambda Ca^{1/3}$ (trait plein noir en Fig. 1.11). On voit que le facteur d'épaississement varie de façon non-monotone en fonction de λ contrairement au facteur d'épaississement obtenu à partir du modèle de Teletzke *et al.* (tiret rouge), mais que les asymptotes à très faible et à très haut rapport de viscosités sont les mêmes. Le plateau correspondant à du *rolling* ($f^{\text{roll}} = 4^{2/3}$) n'est bien défini que pour des nombres capillaires plus petits que $Ca = 10^{-18}$ (Fig. 1.11.a). Pour des nombres capillaires plus accessibles en microfluidique, (*i.e.* $Ca = 10^{-3}$), les deux régimes $\lambda \sim Ca^{-1/3}$ et $\lambda \gg Ca^{-1/3}$ se chevauchent et l'écart entre l'épaississement maximum et f^{slid} se réduit

Modèle	Condition à l'interface (référentiel de la goutte)	Rapport des viscosités (λ)	Facteur d'épaississement
Bretherton	$\eta_o \frac{\partial u_o}{\partial z} = 0$	$\lambda = 0$	$f^{\text{Breth}} = 1$
Sliding	$U_{\text{int}} = 0$	$\lambda = 0$	$f^{\text{slid}} = 2^{2/3}$
Rolling	$U_{\text{int}} = -U_d$	$\lambda = 0$	$f^{\text{roll}} = 4^{2/3}$
Teletzke	$\eta_o \frac{\partial u_o}{\partial z} = \eta_i \frac{\partial u_i}{\partial z}$	$\lambda \ll Ca^{-2/3}$ $\lambda \gg Ca^{-2/3}$ $\lambda \sim Ca^{-2/3}$	$f = f^{\text{Breth}}$ $f = f^{\text{slid}}$ $f = g(\lambda Ca^{2/3})$
Hodges	$\eta_o \frac{\partial u_o}{\partial z} = \eta_i \frac{\partial u_i}{\partial z}$	$\lambda \ll Ca^{-1/3}$ $\lambda \sim Ca^{-1/3}$ $\lambda \gg Ca^{-1/3}$	$f = f^{\text{Breth}}$ $f = g(\lambda Ca^{1/3})$ $f = g(\lambda Ca^{2/3})$ (éq. 1.16)

TABLE 1.1: Résumé des résultats théoriques pour une goutte dans un tube capillaire. U_{int} est la vitesse interfaciale dans le référentiel de la goutte

(Fig. 1.11.c). Dans le cadre de la microfluidique, $10^{-6} \leq Ca \leq 10^{-3}$ et l'observation d'un épaississement supérieur au *sliding* est envisageable pour des λ de l'ordre de 50 et de 1000, respectivement pour $Ca = 10^{-3}$ et $Ca = 10^{-6}$.

En comparant les modèles de Hodges *et al.* et Teletzke *et al.*, on remarque que le facteur d'épaississement déduit du modèle de Hodges *et al.* est supérieur à celui de Teletzke *et al.* pour $Ca^{-1/3} \leq \lambda \leq Ca^{-2/3}$. Ce comportement résulte du fait que la contrainte visqueuse dans la région III_i tend à limiter la mobilité de l'interface dans la région III et ce faisant empêche le gradient de pression de vider le film. En dehors de cette gamme de λ, on retrouve le même épaississement avec les deux modèles puisque l'interface dans la région III a le même comportement dans les deux : mobile pour $\lambda \ll Ca^{-1/3}$ et immobile pour $\lambda \gg Ca^{-2/3}$

L'ensemble des résultats sur l'épaisseur du film de lubrification en géométrie axisymétrique est résumé dans le tableaux 1.1

Il s'agit maintenant de savoir sur quelle approche on va se fonder (Hodges ou Teletzke), pour élaborer dans la suite (voir chapitre 2) un modèle du film de lubrification se développant sous une goutte visqueuse en géométrie de Hele-Shaw.

Les mesures d'Axel Huerre [18], de l'épaisseur du film de lubrification en fonction du nombre capillaire pour des gouttes visqueuses telles que $\lambda = 25$, montrent deux régimes : un régime dominé par les interactions électrostatiques répulsives entre l'interface et la paroi (régime de pression de disjonction) à bas Ca, et un régime à haut Ca dominé par l'hydrodynamique dans lequel ces interactions sont négligeables (régime capillaire). Par ailleurs, la courbe expérimentale montre un meilleur accord avec l'épaississsment de Hodges *et al.* (Fig. 1.12) que celui de Teletzke *et al.* à haut Ca, ce qui nous pousse à retenir l'approche de Hodges *et al.* pour la suite.

Avant d'établir un modèle général de la topographie du film pour une goutte en géométrie de Hele-Shaw au chapitre 2, que nous confronterons quantitativement à nos données expé-

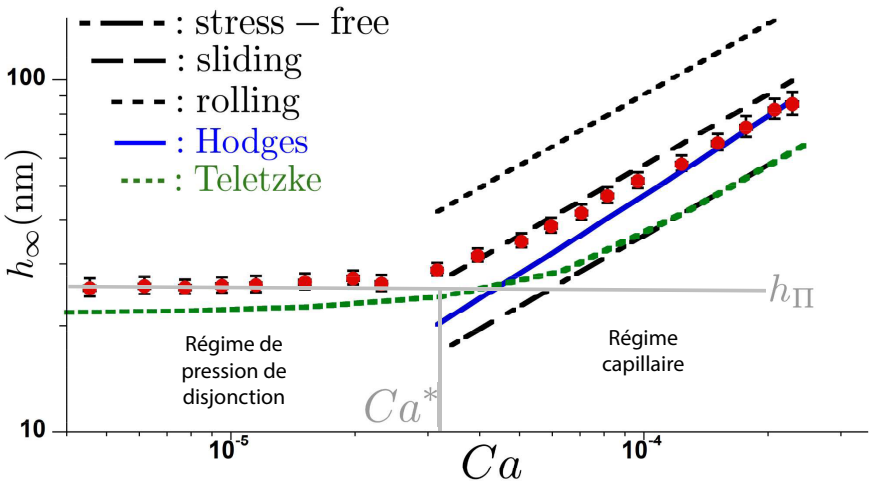

FIGURE 1.12: Epaisseur du film de lubrification en fonction de Ca. Les points rouges sont les données expérimentales. Les symboles des différents modèles sont indiqués dans la légende. Le modèle de Teletzke *et al.* a été modifié par Axel Huerre pour tenir aussi compte de l'influence de la pression de disjonction à bas Ca. h_Π est l'épaisseur du film statique [18]

rimentales au chapitre 4, nous commençons par rappeler les résultats théoriques de Burgess & Foster [3] sur cette topographie dans le cas limite d'une bulle. Ensuite, une comparaison qualitative est faite entre ce modèle et les récentes données expérimentales de Huerre *et al.* [23] sur la topographie du film de goutte visqueuses ($\lambda = 25$) en géométrie de Hele-Shaw.

1.4.2 Géométrie de Hele-Shaw

1.4.2.1 Bulle

Nous allons maintenant nous intéresser à la forme adoptée par le film de lubrification lorsque une bulle se déplace dans une cellule de Hele-Shaw (Fig. 1.13). Pour rappel, une cellule de Hele-Shaw est un canal à section rectangulaire dont l'épaisseur $2H_o$ est négligeable par rapport à ses dimensions dans le plan (Oxy), correspondant au plan de la cellule (Fig. 1.13.a). Cette différence d'échelle de longueur permet de négliger la composante suivant z devant les composantes dans le plan (xOy) du champ des vitesses qui s'écrit alors sous la forme :

$$\mathbf{u}_{||} = \mathbf{V}_{||}(x,y)\frac{6z(2H_o - z)}{(2H_o)^2} \tag{1.17}$$

où la variation rapide du champ des vitesses suivant z est séparée de la variation lente dans le plan (Oxy). L'indice $||$ désigne la composante vectorielle dans le plan (Oxy). $\mathbf{V}_{||}(x,y)$ est la moyenne du champ des vitesses sur l'épaisseur de la cellule de Hele-Shaw :

$$\mathbf{V}_{||}(x,y) = \frac{-(2H_o)^2}{12\eta_o}\mathbf{grad}_{||}^{2D}(p) \tag{1.18}$$

Le développement théorique présenté pour la topographie du film est celui de Burgess & Foster [3] et repose sur les mêmes hypothèses que celui de Bretherton dans le cas axisymétrique : les effets inertiels et de pesanteur sont négligeables devant les effets visqueux et capillaires. Cela suppose que l'épaisseur de la cellule de Hele-Shaw H_o soit faible, notamment devant la longueur capillaire $l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}} \sim 1$ mm pour une tension superficielle γ =15 mN/m, une masse volumique ρ =10^3 Kg/m^3 et g =9.8 m/s^2. La seule différence avec la situation axisymétrique de Bretherton est que l'on perd l'invariance suivant y. Par ailleurs, on suppose la bulle circulaire, de rayon R très grand devant la H_o (*i.e.* bulle pancake) et que $Ca = \eta_o U_d/\gamma \ll 1$ où η_o est la viscosité de la phase externe et U_d la vitesse de la bulle.

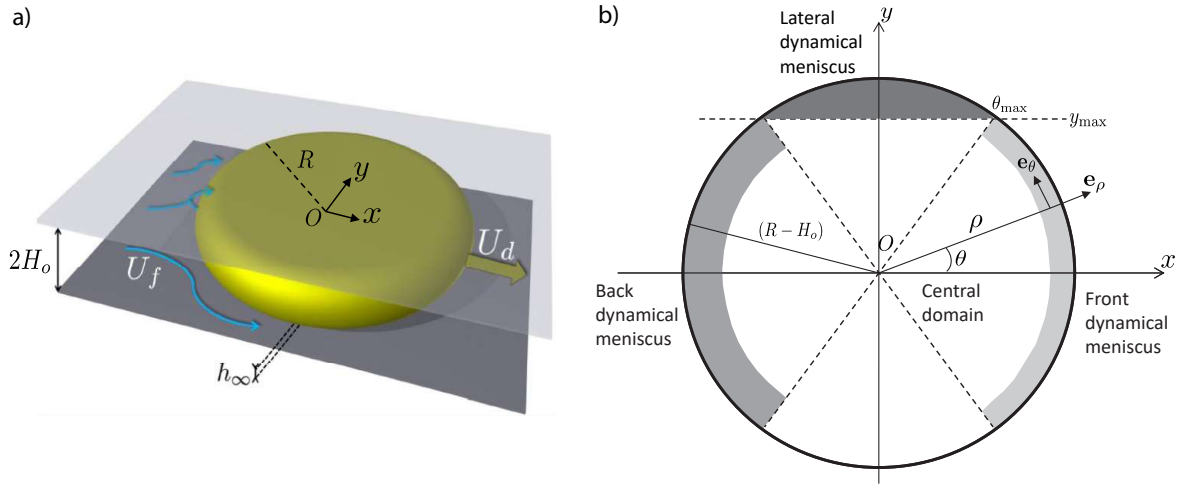

FIGURE 1.13: **(a)** Bulle pancake se déplaçant dans une cellule de Hele-Shaw : $2H_o$ est l'épaisseur de la cellule, U_d et U_f sont respectivement les vitesses de la bulle et du fluide externe poussant la bulle, h_∞ est l'épaisseur du film de lubrification ; **(b)** Définition des différents domaines à l'interface de la bulle : la région centrale est séparée du ménisque statique (non représenté) par le ménisque dynamique (zones grisées) situé à une distance $(R - H_o)$ du centre O. Le ménisque dynamique est divisé en quatre zones : les ménisques dynamiques avant/ arrière et deux latéraux, indiqués par des teintes différentes.

On fait l'hypothèse que l'ordre de grandeur caractéristique du film de lubrification au centre de la bulle, h_∞, vérifie $h_\infty \ll H_o \ll R$. De façon similaire au cas axisymétrique, l'interface de la bulle peut être décomposée en trois régions : la région centrale de courbure caractéristique h_∞/R^2 (Fig. 1.13.b), le ménisque statique de courbure bien plus importante et égale à celle de la bulle au repos $[1/H_o + \pi/(4R)] \sim 1/H_o$ [12] (non représenté dans la Fig. 1.13.b), et le ménisque dynamique qui est la région de transition (zone grisée dans la Fig. 1.13.b) entre ces deux domaines où les gradients de courbure se concentrent.

Pour déterminer l'équation du film, on écrit l'équation de Stokes dans l'approximation de lubrification, $\boldsymbol{\nabla}^{2D} p_o = \eta_o \partial^2 \mathbf{u}_o / \partial z^2$, valable dans les régions centrale et de transition. Dans cette équation, l'indice o fait référence à la phase externe à la goutte et $\boldsymbol{\nabla}^{2D}$ et $\mathbf{u}$ correspondent respectivement au gradient et au champ des vitesses dans le plan (xy).

L'équation écrite en coordonnées cylindriques (ρ, θ, z) est alors intégrée deux fois par rapport à z pour obtenir le champ des vitesses en fonction du gradient de pression $\boldsymbol{\nabla}^{2D} p$. Dans le référentiel de la bulle, les conditions aux limites pour l'intégration sont $\mathbf{u}(0) = -U_d \mathbf{e}_x$ et $\partial \mathbf{u} / \partial z(h) = 0$. Une troisième intégration suivant z permet d'obtenir le flux du champ des vitesses sur l'épaisseur h du film en fonction $\boldsymbol{\nabla}^{2D} p$. Ce gradient de pression peut être écrit simplement en tenant compte du fait que dans l'approximation de lubrification et pour $H_o \ll R$, la courbure de l'interface vérifie $C \simeq \partial^2 h / \partial \rho^2$.

En appliquant l'équation de continuité au flux et en négligeant les termes d'ordre le plus élevé en $\epsilon = H_o / R$ (détails en Annexe B), on obtient

$$U_d \cos(\theta) \frac{\partial h}{\partial \rho} - \frac{U_d \sin(\theta)}{\rho} \frac{\partial h}{\partial \theta} = \frac{\partial}{\partial \rho} \left[\frac{\gamma}{3\eta_o} \frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3} h^3 \right] \tag{1.19}$$

Dans l'éq. (1.19), les deux termes du membre de gauche sont liés à l'entraînement visqueux de liquide par la paroi dans les directions radiale à la vitesse $-U_d \cos(\theta)$ et orthoradiale à la vitesse $U_d \sin(\theta)$, qui tend à épaissir le film. Le terme du membre de droite est lié au gradient de courbure radial de l'interface qui tend à vider le film.

On constate que le long de l'axe x (*i.e.* $\theta = 0 \mod \pi$), l'éq. (1.19) se résume à l'équation de Bretherton qui peut être mise sous la forme de l'éq. (1.9) en intégrant (1.19) entre un point du ménisque dynamique et le point à la frontière entre le ménisque dynamique et la région centrale :

$$U_d [h - h_f(\theta = 0 \mod \pi)] = \frac{\gamma}{3\eta_o} \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} h^3 \tag{1.20}$$

où h_f est l'épaisseur du film à la frontière entre le ménisque dynamique et la région centrale considérée comme plate. En effet, la longueur l^* du ménisque dynamique vérifie (cf. éq. (1.12) en remplaçant r par H_o) $l^* \sim H_o \sqrt{\frac{h_\infty}{H_o}} \ll R$, et donc sur cette échelle de longueur, on peut estimer que le ménisque dynamique est raccordé à un film plat, puisque la variation caractéristique de l'épaisseur du film dans la région centrale I vérifie $h_\infty l^* / R \ll h_\infty$, où h_∞ / R est l'ordre de grandeur caractéristique de la pente de l'interface dans la région centrale.

La résolution numérique de l'éq. (1.20), donne une épaisseur de film plat identique au cas axisymétrique :

$$h_f(\theta = 0) = h^{\text{Breth}} = 1.337 H_o Ca^{2/3} \tag{1.21}$$

L'approche adoptée par Burgess & Foster pour résoudre l'équation du film (1.19) consiste à diviser le ménisque dynamique en trois zones, les ménisques dynamiques avant/arrière et

latéral (voir Fig. 1.13.b), et à résoudre la forme asymptotique que prend l'éq. (1.19) dans chacune des régions. L'intégralité du profil interfacial est ensuite obtenu en joignant les solutions correspondant aux différentes zones.

Ménisque dynamiques avant/arrière

Dans les ménisques avant/ arrière, on peut négliger le terme incluant $\sin(\theta)$ dans l'éq. (1.19) puisque l'épaisseur varie beaucoup plus lentement dans la direction orthoradiale que radiale. En négligeant ce terme on retrouve une équation de Bretherton où la vitesse de la paroi U_d est remplacée par sa projection sur la normale $\mathbf{e}_\rho$ au contour de la bulle, $U_d\cos(\theta)$ (voir Fig. 1.13.b) :

$$U_d\cos(\theta)[h - h_f(\theta)] = \frac{\gamma}{3\eta_o}\frac{\partial^3 h}{\partial\rho^3}h^3 \tag{1.22}$$

L'équation (1.22) reste vraie dans un secteur angulaire $[-\theta_{max}, \theta_{max}]$ (Fig. 1.13.b) où le terme incluant le $\sin(\theta)$ reste négligeable. La méthode de résolution de l'éq. (1.22) est similaire à celle de l'équation de Bretherton (éq. (1.9)). Le détail de la résolution se trouve en Annexe C.

L'équation (1.22) montre que le résultat de Bretherton donnant l'épaisseur du film plat reste valide si le nombre capillaire est écrit avec la vitesse $U_d\cos(\theta)$ plutôt que U_d. Ceci peut être compris qualitativement à l'échelle du ménisque dynamique, dans le repère local $(\mathbf{e}_\rho, \mathbf{e}_\theta, \mathbf{e}_z)$. Dans le plan $(\mathbf{e}_\rho, \mathbf{e}_z)$, pour un angle arbitraire $\theta^{\text{fr}} \ll \pi/2$, on retrouve le problème de Bretherton : la pression de Laplace est gouvernée par la courbure $1/H_o$ du ménisque statique quasi invariante dans la direction orthoradiale, les forces visqueuses sont gouvernées par la vitesse normale de la paroi $-U_d\cos(\theta^{\text{fr}})$, et la vitesse tangentielle de la paroi $U_d\sin(\theta^{\text{fr}})$ n'a pas d'influence sur le profil. L'équilibre de ces deux forces détermine l'épaisseur du film de lubrification déposé juste derrière le ménisque dynamique avant, h_f, et par conséquent, cette épaisseur diminue quand θ^{fr} augmente. Puis, à une distance suffisante du ménisque dynamique avant dans la direction $\mathbf{e}_\rho$, l'ordre de grandeur du gradient de pression est $\nabla P^{\text{film}} \sim \gamma\frac{h_\infty}{R^3}$. Ce gradient de pression induit des vitesses de l'ordre de $\nabla P^{\text{film}}h_\infty^2/\eta_o \sim \dfrac{h_\infty^3}{CaR^3}U_d$ négligeables devant la vitesse de la plaque U_d (ceci se vérifie simplement en utilisant le scaling de h_∞ en fonction de Ca donné par l'équation (1.23)). Ceci montre qu'une fois généré dans la région du ménisque dynamique avant, le film reste au repos par rapport à la paroi dans la région centrale jusqu'à ce qu'il atteigne la région du ménisque dynamique arrière. L'épaisseur du film de lubrification dans la région centrale $h_\infty(x, y)$, à une position (x, y), est ainsi déterminée par la vitesse normale de la plaque au contour de la bulle $-U_d\cos(\theta^{\text{fr}})$ à la même valeur de y, et ne dépend pas de x. On a ainsi l'égalité $h_\infty[y = (R - H_o)\sin(\theta_{fr})] = h_f(\theta_{fr})$. Ceci conduit à la prédiction de Burgess & Foster sur l'épaisseur du film dans la région centrale

$$\boxed{h^{\mathrm{BF,c}}(y) = 1.337 H_o \left[Ca\cos(\theta^{\mathrm{fr}})\right]^{2/3} = 1.337 H_o Ca^{2/3}\left[1 - \frac{y^2}{(R-H_o)^2}\right]^{1/3}} \tag{1.23}$$

Cette loi correspond à une épaisseur de Bretherton pondérée, basée sur la vitesse locale normale dans la région du ménisque avant et on a $h^{BF,c} = h^{\mathrm{Breth}}\cos^{2/3}(\theta^{fr})$.

Ménisque dynamique latéral

Dans le ménisque dynamique latéral, la composante orthoradiale de l'entraînement visqueux généré par la paroi doit être considérée et les trois termes de l'éq. (1.19) sont alors pris en compte. Sa résolution, détaillée en sous-section 2.2.3 du chapitre 2, s'appuie sur une simplification consistant à développer au premier ordre le sin et le cos au voisinnage de $\pi/2$ dans l'éq. (1.19).

Topographie totale

En joignant les profils dans les ménisques dynamiques avant/arrière et latéraux avec celui de la région centrale, on peut déterminer la topographie entière du film de lubrification (Fig. 1.14.a). Celle-ci présente une forme dite de "catamaran" avec deux zones latérales d'épaisseur plus faibles reliées entre elles par une voûte dans la région centrale. En outre, l'interface présente une oscillation dans la région du ménisque dynamique arrière (zoom en Fig. 1.14.b). La présence de cette oscillation n'est pas surprenante si l'on songe au fait que le ménisque dynamique arrière est décrit par une équation de type Bretherton dont la solution présente une oscillation à l'arrière (Fig. 1.5.c). A notre connaissance, cette forme a été pour la première fois mise en évidence expérimentalement par Huerre *et al.* [23] dans le cas de gouttes visqueuses telles que $\lambda = 25$ (Fig. 1.14.c). On constate que la topographie de Burgess & Foster reproduit, au moins qualitativement, la topographie expérimentale, puisque les deux creux sur les côtés de la goutte ainsi que l'oscillation arrière sont retrouvés. On cite pour finir les travaux de Zhu *et al.* [13] qui on récemment mis en évidence cette forme de catamaran par simulation numérique de gouttes pancake telle que $\lambda = 1$ (Fig. 1.14.d)

Il convient de remarquer que cette forme de catamaran n'a jamais été analysée dans le détail à partir de mesures expérimentales, ni comparée quantitativement dans son ensemble à des modèles tels que celui de Burgess & Foster. Ceci s'explique principalement par l'incapacité des anciennes techniques expérimentales à mesurer l'épaisseur du film localement. En effet, contrairement à la mesure directe de l'épaisseur du film par microscopie interférentielle [23], la méthode de mesure indirecte de Bretherton ne permettait que d'évaluer l'épaisseur moyenne du film.

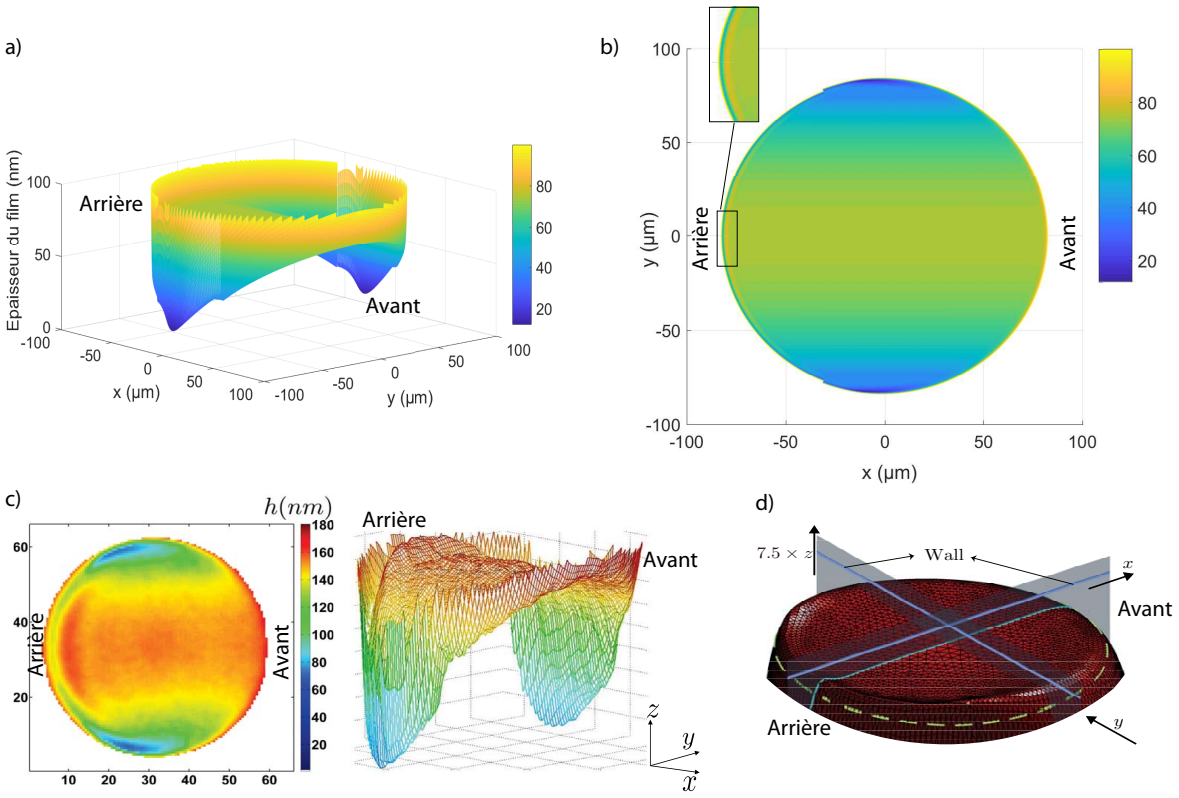

FIGURE 1.14: **(a)** Topographie numérique obtenue en reliant les profils dans les différents ménisques dynamiques avec la région centrale pour $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$ en utilisant le modèle de Burgess & Foster. Deux zones d'épaisseur plus faible sont localisées sur les flancs de la bulle ; **(b)** Topographie numérique projetée dans le plan (xy) : on remarque l'oscillation de l'interface à l'arrière ; **(c)** Topographie expérimentale pour $\lambda = 25$ et $Ca = 3 \times 10^{-4}$: les zones d'épaisseur plus faible sur les côtés ainsi que l'oscillation arrière sont bien visibles [23] ; **(d)** Topographie du film de lubrification pour $\lambda = 1$ obtenue par simulation. Dans ce cas, l'image correspond au film supérieur. On observe aussi les deux zones d'épaisseur plus faible sur les côtés de la goutte [13]

1.4.2.2 Goutte

Un modèle de la topographie du film pour une goutte en géométrie de Hele-Shaw n'existe pas encore et fait l'objet d'un développement théorique présenté au chapitre suivant.

1.4.3 Objectifs de la thèse

La dynamique de goutte et de bulle en environnement confiné est un sujet étudié depuis les années 1950 [4]. Pourtant, la compréhension de cette dynamique est restée jusqu'à ce jour limitée puisque, même dans le cas simple d'une bulle en géométrie de Hele-Shaw, le modèle de référence de Taylor & Saffman ne permet pas de reproduire la vitesse expérimentale de cette

dernière [9][24]. Il est probable que cet écart entre théorie et expériences soit dû à l'omission par Taylor & Saffman de la friction visqueuse, apparaissant dans les ménisques et le film de lubrification [2], lorsqu'une bulle/goutte non mouillante et confinée se déplace dans un canal. Pour modéliser la dynamique d'une bulle/goutte, il est donc nécessaire au préalable de comprendre la nature et la topographie de l'interface dans le film de lubrification.

Le regain d'intérêt pour cette question s'explique par le développement récent de la microfluidique digitale. Par rapport aux études passées, on dispose à présent de l'outil microfluidique qui permet de générer des trains de gouttes identiques et de taille contrôlée à des nombres capillaires très faibles ($10^{-6} \leq Ca \leq 10^{-3}$). D'autre part, l'usage de la microscopie interférentielle permet aujourd'hui de sonder en détail le film de lubrification et de reconstruire le profile 3D de l'interface d'une goutte se déplaçant dans un canal [23] (voir Fig. 1.14.c). A partir de la double mesure de la mobilité U_d/U_f et de la topographie en fonction du nombre capillaire, on dispose alors de plus d'informations pour comprendre les mécanismes régissant la dynamique de tels objets.

Le but de ce travail de thèse est de prédire la vitesse d'une goutte poussée par un fluide externe en géométrie de Hele-Shaw, en se basant sur une description expérimentale de la topographie du film de lubrification, en lien avec des développements théoriques. *On pourra alors connaître la vitesse d'une goutte en fonction de son rayon, du rapport de viscosité, de la tension de surface et de la vitesse de la phase externe.* Par souci de simplicité, nous avons mené cette étude dans deux cas limites en terme de rapport de viscosité $\lambda < 1$ et $\lambda \simeq 1000$. Comme on le verra au chapitre 2, consacré à la modélisation du film se développant sous une goutte, ceci permet en particulier de simplifier la détermination théorique du profil 3D de l'interface. Au chapitre 3, le dispositif expérimental permettant de sonder le film par microscopie interférentielle est présenté. Celui-ci est similaire au dispositif utilisé par Huerre *et al.* [23] pour obtenir la topographie expérimentale pour des gouttes visqueuses de rapport de viscosité $\lambda = 25$. Dans la présente étude cependant, nous nous intéressons aussi à des gouttes très peu visqueuses adoptant des vitesses plus importantes (le cm/s plutôt que le mm/s) que pour $\lambda = 25$. Dans ce cas, il sera montré au chapitre 3, qu'il est nécessaire d'apporter des modifications au dispositif expérimental décrit en [23], si l'on veut obtenir des images nettes avec suffisamment de signal. Au chapitre 4, les topographies de films de lubrification de goutte pancake très peu visqueuses $\lambda < 1$ et très visqeuses $\lambda \simeq 1000$ sont mesurées puis analysées dans leur ensemble en les comparant aux modèles développés au chapitre 2. La compréhension de la topographie du film dans ces deux cas extrêmes en terme de rapport de viscosité, sera mise à profit dans l'élaboration d'un modèle visant à prévoir la mobilité d'une goutte au chapitre 5. Dans ce chapitre, nous commencerons par décrire expérimentalement la mobilité d'une goutte en fonction du rapport de viscosité, de son rayon, et du nombre capillaire. Puis, dans un second temps, le modèle établi pour la mobilité sera confronté aux données expérimentales.

Synthèse - Chapitre 1

- Etude de la dynamique de goutte/bulle en environnement confiné
  1. Intérêt fondamental car ce système mélange hydrodynamique et physico-chimie des interfaces.
  2. Intérêt pratique en microfluidique digitale et dans l'industrie (*i.e.* extraction d'hydrocarbure).
- La dynamique de goutte en géométrie de Hele-Shaw reste incomprise
  1. Le modèle de référence de Taylor & Saffman surestime la vitesse de goutte et de bulle.
  2. La friction supplémentaire provient des ménisques (cf. Bretherton [2]).
  3. La friction est liée à la topographie de l'interface. Pour évaluer la dynamique de la goutte il faut dans un premier lieu connaître la topographie du film de lubrification.
- Topographie du film de lubrification d'une bulle/goutte confinée
  1. Modèle de la forme de l'interface d'une bulle en géométrie axisymétrique dû à Bretherton [2]
  2. Effet de la viscosité interne d'une goutte sur la forme de l'interface en géométrie axisymétrique dû à Hodges [1]
  3. Modèle de la forme de l'interface d'une bulle en géométrie de Hele-Shaw dû à Burgess & Foster [3]
  4. Nécéssité d'établir un modèle de la topographie du film pour des gouttes visqueuses en géométrie de Hele-Shaw
  5. Peu de données expérimentales sur la topographie : Denkov *et al.* [19] en géométrie axisymétrique et Huerre *et al.* [23] en géométrie de Hele-Shaw
  6. Nécessité de caractériser expérimentalement la topographie du film de lubrification pour différents rapports de viscosités et de la comparer quantitativement aux modèles

CHAPITRE 2

Topographie de l'interface d'une goutte visqueuse en géométrie de Hele-Shaw - aspects théoriques

Ce chapitre a pour but d'établir un modèle théorique de la topographie du film de lubrification se développant sous une goutte pancake non mouillante lorsqu'elle se déplace dans une cellule de Hele-Shaw.

Dans une première section, l'analyse de Hodges *et al.* dans le cas axisymétrique est détaillée. Dans cette approche, l'équation de l'interface est écrite de façon générale en faisant intervenir la vitesse interfaciale comme un paramètre. Cette vitesse interfaciale inconnue peut être déterminée par des arguments en loi d'échelle dans certain cas extrêmes en fonction du rapport de viscosité λ ($\lambda \ll Ca^{-1/3}$ et $\lambda \gg Ca^{-1/3}$) ou par une méthode numérique dans le cas intermédiaire $\lambda \sim Ca^{-1/3}$. Une fois la vitesse interfaciale connue, elle est remplacée par son expression dans l'équation du film qui peut alors être résolue numériquement. Dans la présente étude, l'équation du film sera résolue dans deux cas limites sur λ : $\lambda \ll Ca^{-1/3}$ et $\lambda \gg Ca^{-1/3}$. Pour fixer les idées sur ce que représentent ces deux cas limites, on peut estimer la valeur typique de $Ca^{-1/3}$ en microfluidique ; pour $Ca = 10^{-4}$, $Ca^{-1/3}$ =21.

Dans une seconde section, les approches de Burgess & Foster et Hodges *et al.* seront couplées pour établir l'équation générale du film de lubrification pour une goutte en géométrie de Hele-Shaw. Comme dans le cas axisymétrique, la vitesse interfaciale intervient comme un paramètre dans cette équation. Par une approche en lois d'échelle, similaire à celle du cas axisymétrique, l'expression de la vitesse interfaciale sera déterminée dans deux cas limites sur le rapport de viscosité. L'équation du film sera alors résolue dans ces deux cas en remplaçant la vitesse interfaciale par les deux expressions trouvées.

2.1 Goutte dans un capillaire-développement de l'approche de Hodges *et al.* [1]

2.1.1 Équation générale de l'interface

Pour déterminer l'équation générale du film on se place dans le référentiel de la goutte. La paroi a alors une vitesse $-\mathbf{U}_d$ (Fig. 2.1). Le problème est décrit dans le plan (xz). L'expression du champ des vitesses $\mathbf{u} = u_x(x,z)\,\mathbf{e}_x$ dans les régions I_0 et III_0 est obtenue en écrivant l'équation de Stokes dans l'approximation de lubrification avec les conditions aux limites : $\mathbf{u}(z=0) = -U_d\,\mathbf{e}_x$, $\mathbf{u}(z=h) = \mathbf{U}_{III} = U_{III}\,\mathbf{e}_x$ dans la région III et $\mathbf{u}(z=h_\infty) = \mathbf{U}_I = U_I\,\mathbf{e}_x$ dans la région I. $\mathbf{U}_I$ et $\mathbf{U}_{III}$ sont les vitesses interfaciales respectivement dans les régions I et III. $\mathbf{U}_{III}$ tend vers $\mathbf{U}_I$ dans le film plat. En notant $A = \frac{1}{\eta_o}\frac{\partial p_o}{\partial x}$ où η_o et p_o sont respectivement la viscosité et la pression dans la phase externe, il vient :

$$u_x(x,z) = \frac{A(x)}{2} z(z-h(x)) + \frac{z}{h(x)}\left[U_{III} + U_d\right] - U_d \tag{2.1}$$

Le flux de la vitesse à travers l'épaisseur du film $\mathbf{Q} = \int_0^h \mathbf{u}\,\mathrm{d}z$ s'écrit alors :

$$\mathbf{Q} = \left(-\frac{A}{12}h^3 + \left[U_{III} - U_d\right]\frac{h}{2}\right)\mathbf{e}_x$$

En considérant ensuite la conservation du flux $\mathrm{div}(\mathbf{Q}) = \frac{\partial Q}{\partial x} = 0$, on obtient l'équation générale du film d'une goutte visqueuse en géométrie axisymétrique :

$$-\frac{1}{6}\frac{\partial(Ah^3)}{\partial x} + \frac{\partial h}{\partial x}\left[U_{III} - U_d\right] + h\frac{\partial U_{III}}{\partial x} = 0 \tag{2.2}$$

On peut exprimer A en fonction du gradient de courbure de l'interface dans le plan (xz), $A = -\frac{\gamma}{\eta_o}\frac{\partial^3 h}{\partial x^3}$. L'intégration de l'éq. (2.2) entre un point du ménisque dynamique et un point du film plat permet de retrouver l'éq. (3.7) de l'article de Hodges *et al.* [1] :

$$\boxed{\frac{\gamma}{6\eta_o}h^3\frac{\partial^3 h}{\partial x^3} + (U_d - U_I)(h_\infty - h) + h(U_{III} - U_I) = 0} \tag{2.3}$$

On voit que les vitesses interfaciales U_I et U_{III} interviennent comme paramètres dans l'éq. (2.3). Nous allons voir dans la sous-section suivante, qu'en utilisant des raisonnements en lois d'échelle pour décrire les écoulements dans les différentes zones de la goutte I, II et III, il est possible de déterminer analytiquement les expressions de ces vitesses dans deux cas limites ($\lambda \ll Ca^{-1/3}$ et $\lambda \gg Ca^{-1/3}$) et de résoudre alors l'équation du film.

2.1.2 Analyse des écoulements au sein de la goutte

Dans leur analyse Hodges *et al.* décrivent les écoulements dans chacune des régions I, II et III, et dérivent des lois d'échelle sur les vitesses interfaciales et les contraintes visqueuses

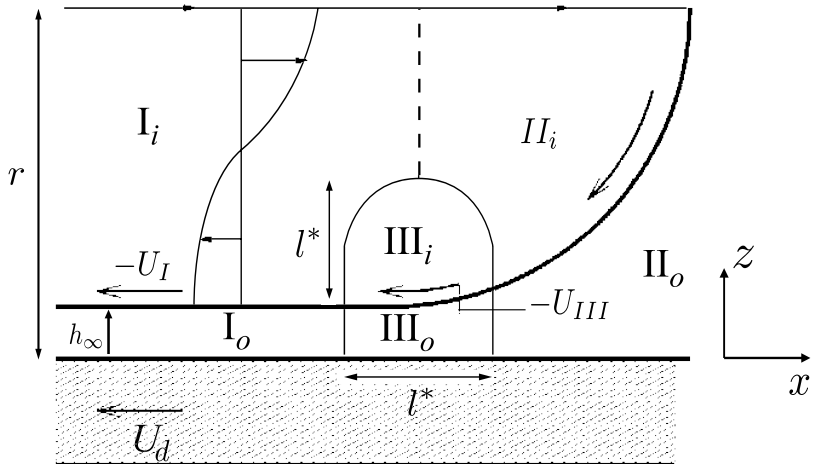

FIGURE 2.1: Schéma du ménisque avant d'une goutte se déplaçant dans un capillaire cylindrique dans le référentiel de la goutte, montrant trois régions asymptotiques distinctes. Les indices i et o se réfèrent respectivement aux régions à l'intérieur et à l'extérieur de la goutte. La vitesse caractéristique, $|U_I|$, ainsi que la longueur caractéristique sur laquelle s'établissent les gradients de vitesse, r, sont les mêmes dans les régions I_i et II_i. Dans la région III_i, la vitesse et la longueur caractéristiques sont $|U_{III}|$ et l^* [1]

à l'intérieur de la goutte. Nous détaillons cette analyse car elle permet d'une part une bonne compréhension du système et, d'autre part, elle permet de justifier les approximations opérées sur les écoulements nous permettant de donner des expressions analytiques pour U_I et U_{III}. De surcroît, cette approche sera mise à profit en section 2.2 pour établir le modèle du film de lubrification se développant sous une goutte visqueuse en géométrie de Hele-Shaw. Chaque région est étudiée séparément.

Région I

Le corps cylindrique de la goutte (région I_i) a une longueur caractéristique r, et l'échelle de vitesse est $|U_I|$. Le rayon du capillaire étant négligeable devant la demi-longueur de la goutte, l'écoulement peut y être approché par un Poiseuille dans la direction x dans le référentiel de la paroi. Le film annulaire a une épaisseur uniforme h_∞ tel que $h_\infty \ll r$, ce qui permet de faire l'approximation que l'écoulement dans cette région est un écoulement de Couette. L'échelle de vitesse dans I_i est déterminée par l'équilibre entre la contrainte visqueuse de cisaillement dans le film $\eta_o(U_d - |U_I|)/h_\infty$ et celle dans le corps de la goutte $\eta_o\lambda|U_I|/r$ ce qui donne $|U_I| \sim U_d/(1+\lambda\frac{h_\infty}{r})$. Ainsi, le paramètre $\lambda h_\infty/r$ rend compte du degré de mobilité de l'interface et dicte la façon dont le cisaillement se répartit dans chacune des phases. Si $\lambda h_\infty/r \gg 1$, alors $U_I \sim U_d/(\frac{\lambda h_\infty}{r}) \ll U_d$ (*i.e.* interface immobile) et le film est cisaillé. Si $\lambda h_\infty/r \ll 1$, alors $U_I \sim U_d$ (*i.e.* interface mobile) et l'intérieur de la goutte est cisaillé. Ce n'est que lorsque $\lambda h_\infty/r = O(1)$, que les écoulements dans les phases I_i et I_o sont couplés

au sens où il devient nécessaire de calculer les deux simultanément. On verra dans ce cas que $\lambda h_\infty/r \sim \lambda Ca^{2/3}$, ce qui permet de mieux comprendre les résultats du modèle de Teletzke *et al.* du chapitre 1. Le couplage entre un écoulement de Poiseuille à l'intérieur de la goutte et un écoulement de Couette dans le film peut se résoudre analytiquement (voir Annexe D) et donne l'expression suivante pour la vitesse interfaciale dans la région I :

$$U_I = \frac{-U_d}{1 + 4\lambda h_\infty/r} \tag{2.4}$$

Région II

L'écoulement généré dans le corps de la goutte (région I_i) s'étend dans la calotte avant de façon à ce que la vitesse caractéristique dans II_i soit aussi $|U_I|$. Les écoulements proches de la calotte dans les régions II_i et II_o ont la même longueur caractéristique r. Si $\lambda \ll 1$, alors $|U_I| \sim U_d$ et la contrainte visqueuse interne $\eta_o \lambda U_d/r$ est négligeable par rapport à la contrainte visqueuse externe $\eta_o U_d/r$. L'écoulement dans la région II_o n'est pas modifié par rapport au cas bulle ($\lambda = 0$). Lorsque $\lambda \sim 1$, les écoulements dans les régions II_i et II_o sont couplés et l'écoulement dans la région II_o est modifié par rapport au cas bulle. Lorsque $1 \ll \lambda \ll (\frac{h_\infty}{r})^{-1}$, l'écoulement interne a une vitesse caractéristique U_d et n'est pas affecté par l'écoulement dans la région II_o. Lorsque $\lambda \gg (\frac{h_\infty}{r})^{-1}$, $|U_I| \sim U_d/(\frac{\lambda h_\infty}{r})$ et l'écoulement dans la région II_o est celui autour d'une calotte présentant une interface immobile.

Au chapitre 1, nous avons fait l'hypothèse dans les modèles de Teletzke *et al.* et de Hodges *et al.* que le profil de l'interface est raccordé à une calotte hémisphérique. Cette hypothèse est valide si la contrainte visqueuse associée à l'écoulement interne dans la région II_i, $\eta_o \lambda |U_I|/r$, est négligeable devant la contrainte capillaire γ/r. En utilisant la loi d'échelle de $|U_I|$, on voit que le rapport des deux contraintes $\lambda \eta_o |U_I|/\gamma$ est inférieur à $Ca/(\frac{h_\infty}{r})$. Ainsi, si $Ca \ll (h_\infty/r)$, on pourra considérer que la calotte reste hémisphérique quel que soit λ. On verra dans la suite que $h_\infty/r \sim Ca^{2/3}$, ce qui montre que la calotte reste hémisphérique tant que $Ca \leq 10^{-3}$.

Région III

Nous avons vu au chapitre 1 dans la description du modèle de Bretherton, que le gradient de courbure de l'interface s'établit dans la région III sur une longueur l^* vérifiant $l^* = r\sqrt{\frac{h_\infty}{r}}$ dans l'approximation de lubrification. Nous supposons dans la suite que h_∞ est suffisamment petit devant r pour que l^* le soit aussi. Par conséquent, les gradients de pression ainsi que les gradients de vitesse interfaciaux dans la direction x sont localisés sur une distance l^* négligeable devant r. La divergence de la vitesse au voisinage de l'interface dans la région III_i étant nulle, cela implique que l'écoulement de Stokes bidimensionnel (dans le plan (xz) par axisymétrie) dans la région III_i s'étend sur une distance l^* à l'intérieur de la goutte. Dans la région III_o, l'écoulement est confiné sur une longueur $h_\infty \ll l^*$ ce qui rend l'écoulement quasi-unidirectionnel suivant x. Pour h_∞/r suffisamment petit, le champ des vitesses dans la

région III_i a deux échelles de longueurs sur lesquelles il varie et la vitesse interfaciale dans la region III, $U_{III}\,\mathbf{e}_x$ peut être écrite sous la forme :

$$U_{III}(x) = U_I + v_b(x)$$

où $|U_I|$ est régie par l'échelle de longueur r et est quasiment constante dans la région III, tandis que v_b est régie par l'échelle de longueur l^* et est négligeable à l'extérieur de III. L'épaississement du film f est déterminé dans la région III et pour le connaître il suffit de déterminer U_I et v_b puisque la donnée de la vitesse à l'interface et de celle à la paroi suffit pour déterminer le champ des vitesses dans la région III_o en fonction du gradient de courbure. La conservation du débit suivant x permet ensuite d'établir l'équation du profil d'épaisseur. On a vu auparavant que $\lambda(\frac{h_\infty}{r})$ est le paramètre déterminant l'ordre de grandeur de $|U_I|$ et donc la mobilité de l'interface. Cherchons à présent le paramètre pilotant la mobilité de l'interface dans la région III. En équilibrant la contrainte visqueuse de cisaillement dans la région III_i, $\lambda\eta_o v_b/l^*$, avec celle dans la région III_o, $\eta_o(U_d - v_b)/h_\infty$, on obtient $v_b \sim U_d/(1+\lambda\frac{h_\infty}{l^*}) \sim U_d/(1+\lambda\sqrt{\frac{h_\infty}{r}})$. C'est donc le paramètre $\lambda\sqrt{\frac{h_\infty}{r}}$ qui pilote la mobilité de l'interface dans la III.

On peut à présent justifier les différents cas de figures donnant l'épaississement du film en fonction du rapport de viscosité énumérés au chapitre 1 dans la présentation du modèle de Hodges *et al.*.

Pour $\lambda \ll (h_\infty/r)^{-1/2} \ll (h_\infty/r)^{-1}$, $v_b \sim U_d$ et $|U_I| \sim U_d$, ce qui implique que l'interface est mobile (*i.e.* elle n'oppose pas de résistance à l'écoulement externe) dans les régions I et III. Par conséquent, la contrainte visqueuse tangentielle à l'interface peut être considérée comme nulle dans ces régions (cas *stress-free*). L'écoulement dans la phase III_o est alors principalement piloté par le gradient de courbure et le film déposé est le même que pour $\lambda = 0$. Lorsque $\lambda \ll 1$, il existe un unique point de stagnation A à l'interface dans la région III (cf. Bretherton [2] voir chapitre 1), l'écoulement dans la region II_o entraînant une recirculation dans la région II_i (Fig. 2.2.a). Une fois que $1 \leq \lambda \ll (\frac{h_\infty}{r})^{-1/2}$, la contrainte visqueuse dans la région II_i diminue la recirculation à l'intérieur de la goutte et Hodges *et al.* prévoient l'apparition d'un second point de stagnation B se rapprochant du point A à mesure que λ augmente vers $(\frac{h_\infty}{r})^{-1/2}$ (Fig. 2.2.b).

Lorsque $\lambda \sim (\frac{h_\infty}{r})^{-1/2}$, $|U_I| \sim U_d$ et les écoulements dans les régions III_i et III_o deviennent couplés. Ceci implique que l'épaississement du film est fonction du paramètre $\lambda\sqrt{\frac{h_\infty}{r}}$ et qu'il faut résoudre simultanément l'écoulement dans les deux régions III_i et III_o pour le déterminer. Pour y parvenir les auteurs modélisent l'écoulement interne par une méthode d'intégrale de bord, ce qui leur permet de résoudre numériquement l'écoulement à l'intérieur de la goutte ainsi que la distribution des vitesses à l'interface. Les auteurs prévoient que les deux points de stagnation fusionnent (Fig. 2.2.c).

Lorsque $(\frac{h_\infty}{r})^{-1/2} \ll \lambda \ll (\frac{h_\infty}{r})^{-1}$, on a encore $|U_I| \sim U_d$, mais les variations locales du

champ des vitesses dans la région III_i disparaissent puisque $v_b \sim U_d/(\lambda\sqrt{\frac{h_\infty}{r}})$. La vitesse interfaciale dans la région III peut alors être considérée comme constante, d'ordre de grandeur $|U_{III}| \sim |U_I| \sim U_d$. On retrouve alors un cas de type *rolling* où la vitesse interfaciale dans la région III est homogène, d'ordre U_d et dirigée suivant $-\mathbf{e}_x$ (Fig. 2.2.d). Cette situation peut donner lieu à un épaississement maximal $f^{\text{roll}} = 4^{2/3}$. Par ailleurs, étant donnée que pour ces rapports de viscosité, la vitesse interfaciale tend à entraîner du liquide dans le film en tout point de l'interface, les auteurs prévoient que la conservation du débit entre les régions II_o et III_o impose l'apparition d'un point de stagnation dans la phase externe. En pratique, l'expression analytique de U_{III} dans le cas $\lambda \gg (\frac{h_\infty}{r})^{-1/2}$ est donnée par :

$$U_{III} = U_I = \frac{-U_d}{1 + 4\lambda h_\infty / r} \tag{2.5}$$

Lorsque $\lambda \sim (\frac{h_\infty}{r})^{-1}$, $|U_I| \sim U_d/(1 + \frac{h_\infty}{r})$ et les écoulements dans les régions I_i et I_o sont couplés. De plus, $|U_{III}| \sim |U_I|$, ce qui implique que le facteur d'épaississement n'est fonction que de $\lambda\frac{h_\infty}{r}$ (Fig. 2.2.e).

Pour finir, lorsque $\lambda \gg (\frac{h_\infty}{r})^{-1}$, les variations de vitesse au sein de la goutte sont de l'ordre de $|U_I| \sim U_d/(\lambda\frac{h_\infty}{r}) \ll U_d$ et le film de lubrification qui se développe est celui d'une goutte d'interface immobile : c'est le cas *sliding* (Fig. 2.2.f).

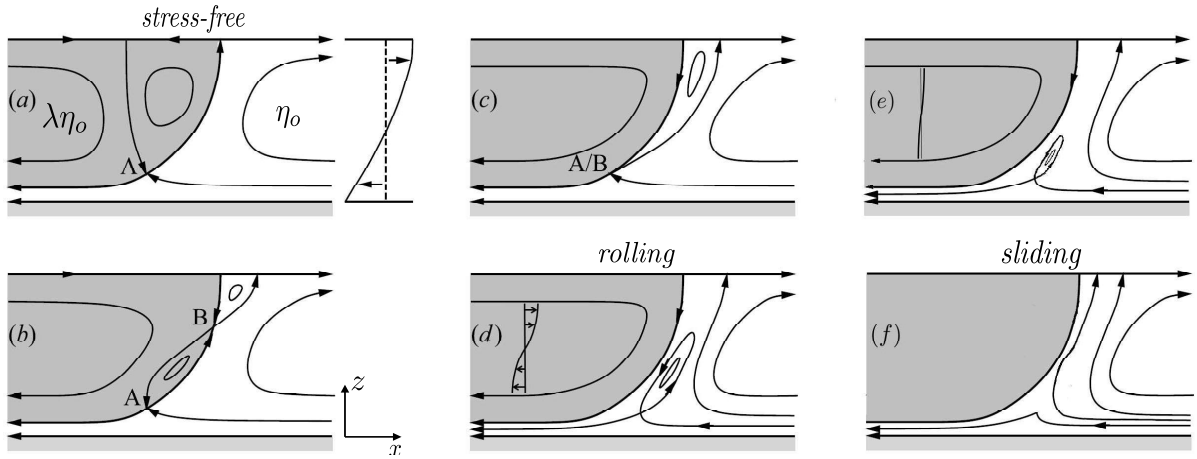

FIGURE 2.2: Profils d'écoulements en fonction du rapport des viscosités λ. **(a)** $\lambda \ll 1$, il existe un seul point de stagnation A ; **(b)** goutte visqueuse telle que $1 \leq \lambda \ll (\frac{h_\infty}{r})^{-1/2}$, il existe un second point de stagnation B qui se rapproche de A à mesure que λ augmente ; **(c)** goutte visqueuse telle que $\lambda \sim (\frac{h_\infty}{r})^{-1/2}$, les deux points de stagnation fusionnent ; **(d)** $(\frac{h_\infty}{r})^{-1/2} \ll \lambda \ll (\frac{h_\infty}{r})^{-1}$, c'est le cas *rolling* ; **(e)** $\lambda \sim (\frac{h_\infty}{r})^{-1}$; **(f)** $\lambda \gg (\frac{h_\infty}{r})^{-1}$, il n'y a plus d'écoulement dans la goutte et le film plat est cisaillé, c'est le cas *sliding*. Les cas **(a)** et **(b)** correspondent à des épaississements de type *stress-free*. Adapté de [1]

Remarque

Dans tous les modèles présentés jusqu'à maintenant, on fait toujours l'hypothèse que la différence de pression dans la région III entre l'intérieur (p_i) et l'extérieur (p_o) est principalement due à la pression de Laplace γC. Cette hypothèse est valide si les contraintes visqueuses normales à l'interface dans la phase o et dans la phase i sont négligeables devant la contrainte capillaire $\gamma C \sim \gamma/r$. Cherchons la condition sur r, Ca et h_∞ pour que cette hypothèse soit vérifiée. En notant u la composante du champ des vitesses selon x et v selon y, la contrainte visqueuse normale dans la phase o est $\eta_o \frac{\partial v}{\partial y} = -\eta_o \frac{\partial u}{\partial x} \sim \eta_o U_d/l^*$. On a donc $\eta_o U_d/l^* \ll \gamma/r$ si $r\,Ca^2 \ll h_\infty$. La contrainte dans la phase i est $\eta_i v_b/l^*$ et en utilisant l'ordre de grandeur pour v_b, on constate que cette contrainte est plus petite que $\eta_o U_d/h_\infty$. On voit que $\eta_o U_d/h_\infty \ll \gamma/r$ si $r\,Ca \ll h_\infty$. Pour $Ca \ll 1$, cette dernière condition est plus restrictive que la précédente.

D'autre part, on fait aussi l'hypothèse que le gradient de pression dans la zone III_o est principalement dû au gradient de pression de Laplace en négligeant la contribution du gradient de pression dans la zone III_i. Cherchons la condition sur r, Ca et h_∞ pour que cette hypothèse soit vérifiée. Les gradients de pression dans la région III_i, d'ordre $\eta_i v_b/{l^*}^2$ sont négligeables devant les gradients de pression de Laplace, d'ordre $\gamma/(rl^*)$, si la condition $r\,Ca \ll h_\infty$ est vérifiée.

En définitive, la condition $r\,Ca \ll h_\infty$ assure d'une part que la calotte reste hémisphérique, et d'autre part, que le gradient de pression dans la région III_o soit principalement dû au gradient de courbure de l'interface. Sous cette condition, on peut alors établir les lois d'échelle de h_∞ et l^* à l'aide de l'équation de Stokes dans la phase externe et la continuité des courbures entre le ménisque dynamique et statique.

$$h_\infty/r \sim Ca^{1/3} \qquad l^*/r \sim Ca^{1/3} \tag{2.6}$$

Nous utiliserons ces lois d'échelle dans la suite.

En utilisant la loi d'échelle pour h_∞, on voit que cette approche est valide (*i.e.* condition $r\,Ca \ll h_\infty$ vérifiée) tant que $Ca \leq 10^{-3}$.

2.1.3 Résolution de l'équation du film dans deux cas limites sur le rapport de viscosité

Dans ce qui suit, la résolution de l'équation du film en géométrie axisymétrique (éq. (2.3)) est menée dans deux cas limites sur le rapport de viscosité λ : $\lambda \ll (\frac{h_\infty}{r})^{-1/2} \sim Ca^{-1/3}$ et $\lambda \gg (\frac{h_\infty}{r})^{-1/2} \sim Ca^{-1/3}$.

2.1.3.1 Faible rapport de viscosité $\lambda \ll Ca^{-1/3}$

On a vu à la sous-section 2.1.2 que pour $\lambda \ll Ca^{-1/3}$, l'interface de la goutte peut être considérée comme *stress-free*. La nullité de la contrainte visqueuse tangentielle à l'interface permet de déterminer la vitesse interfaciale U_{III} à partir de l'éq. (2.1) puisqu'il vient :

$$\frac{\partial u_x}{\partial z}(z=h) = \frac{-\gamma}{2\eta_o} h \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} + \frac{(U_{III}+U_d)}{h} = 0 \tag{2.7}$$

En remplaçant U_I par $-U_d$ et U_{III} par son expression (cf. éq. (2.7)) dans l'éq. (2.3), l'équation du film devient :

$$U_d(h-h_\infty) = \frac{\gamma}{3\eta_o}\frac{\partial^3 h}{\partial x^3}h^3 \tag{2.8}$$

On retrouve sans surprise l'éq. (1.9) de Bretherton pour une bulle. La résolution numérique de l'éq. (2.8) est détaillée en Annexe A et donne lieu, comme on l'a déjà vu au chapitre 1 à une épaisseur du film plat $h^{\text{Breth}} = 1.337 r Ca^{2/3}$.

2.1.3.2 Grand rapport de viscosité $\lambda \gg Ca^{-1/3}$

On a vu à la sous-section 2.1.2 que pour $\lambda \gg Ca^{-1/3}$, les vitesses interfaciales dans les régions I et III sont égales avec

$$U_{III} = U_I = \frac{-U_d}{1+4\lambda h_\infty/r}$$

En remplaçant les vitesses interfaciales par leur expression dans l'éq. (2.3), l'équation du film devient :

$$U_d\left[\frac{2+4\lambda h_\infty/r}{1+4\lambda h_\infty/r}\right](h-h_\infty) = \frac{\gamma}{6\eta_o}h^3\frac{\partial^3 h}{\partial x^3} \tag{2.9}$$

Puis en utilisant le changement de variable $x_1 = 2^{1/3}\left[\frac{2+4\lambda h_\infty/r}{1+4\lambda h_\infty/r}\right]^{1/3}$, on voit que l'éq. (2.9) devient

$$U_d(h-h_\infty) = \frac{\gamma}{3\eta_o}h^3\frac{\partial^3 h}{\partial x_1^3} \tag{2.10}$$

Cette dernière équation (éq. (2.10)) est formellement identique à l'éq. (2.8) de Bretherton pour une bulle et est résolue de la même façon. Dans ce cas, l'épaississement du film $f = h_\infty/h^{\text{Breth}}$ est donné par

$$\boxed{f^{\text{Hodg}} = 2^{2/3}\left[\frac{2+5.348\lambda f^{\text{Hodg}}Ca^{2/3}}{1+5.348\lambda f^{\text{Hodg}}Ca^{2/3}}\right]^{2/3}} \tag{2.11}$$

Maintenant que nous nous sommes familiarisés avec la méthode d'analyse par lois d'échelle des écoulements dans la goutte dans le cas axisymétrique, nous allons l'utiliser au sein de la section suivante dans le cas d'une goutte en géométrie de Hele-Shaw afin de résoudre l'équation du film dans deux cas limites sur λ.

2.2 Vers un modèle de la topographie de l'interface d'une goutte dans une cellule de Hele-Shaw

La topographie théorique du film de lubrification sous une bulle pancake a été déterminée par Burgess & Foster [3]. Il a été montré théoriquement dans la section 2.1 que la viscosité de la phase interne est susceptible de modifier l'épaisseur du film en géométrie axisymétrique. Il en est de même en géométrie de Hele-Shaw. Dans ce cas, la géométrie du film est plus complexe [3] et il est intéressant de se demander de quelle manière la viscosité de la phase interne influence cette dernière.

La méthode employée pour déterminer l'équation du film est similaire à celle de Burgess & Foster, excepté le fait que la condition limite à l'interface est différente. La condition de nullité de la contrainte tangentielle est remplacée par une condition de continuité du champ des vitesses dans le film avec une vitesse interfaciale inconnue dans un premier temps et intervenant comme un paramètre dans l'équation du film. Ensuite, par une approche en loi d'échelle comme celle de Hodges *et al.*, cette vitesse interfaciale peut être déterminée aisément dans certains cas limites sur λ et l'équation du film peut être résolue par des méthodes numériques simples.

On suppose que la goutte est circulaire, et que le nombre capillaire $Ca = \eta_o U_d/\gamma$ est petit. L'écoulement dans le film est décrit dans le référentiel de la goutte en coordonnées cylindriques (ρ, θ, z) (Fig. 2.3). D'autre part, l'interface est divisée en trois régions, le film plat I, le ménisque dynamique III et le ménisque statique II (Fig. 2.3.b). L'épaisseur du film est notée h dans la région III, h_∞ dans la région I et h_f à la frontière entre les régions III et I. D'autre part, on note $\mathbf{U}_I = U_I\,\mathbf{e}_x$ et $\mathbf{U}_{III} = U_{III_\rho}\,\mathbf{e}_\rho + U_{III_\theta}\,\mathbf{e}_\theta$, les vitesses interfaciales dans les régions I et III. Le rayon de la goutte R étant très grand devant la demi-épaisseur de la cellule H_o, l'écoulement à l'intérieur de la goutte dans la région centrale (I_i) peut être approché par un écoulement dans le plan (xy) présentant une variation parabolique (Poiseuille) rapide suivant z et beaucoup plus lente suivant x et y (équation de Hele-Shaw). Il a par ailleurs été montré expérimentalement [25] et par simulations [13], que pour des gouttes pancake, le champ des vitesses dans la zone I_i est approximativement unidirectionnel suivant $\mathbf{e}_x$ et sa moyenne suivant z est uniforme et égale à U_d. Nous ferons cette hypothèse dans la suite.

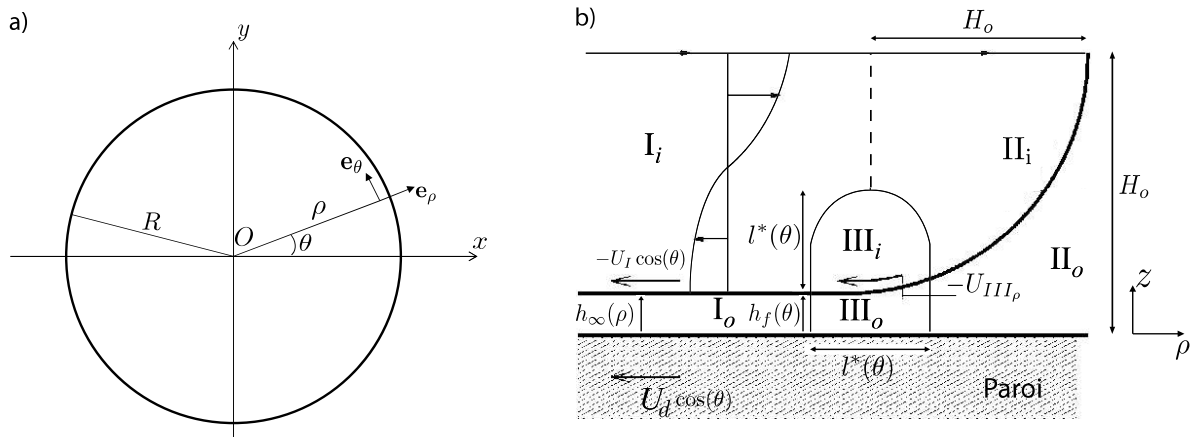

FIGURE 2.3: **(a)** Coupe de la goutte dans le plan (xy) ; **(b)** Coupe dans le plan (ρz) à proximité du ménisque avant

2.2.1 Équation générale de l'interface

Pour déterminer le champ des vitesses $\mathbf{u} = u_\rho\,\mathbf{e}_\rho + u_\theta\,\mathbf{e}_\theta$ dans le film (régions I_o et III_o), on écrit les équations de Stokes dans l'approximation de lubrification avec les conditions aux limites suivantes : $\mathbf{u}(z=0) = -U_d\,\mathbf{e}_x$, $\mathbf{u}(z=h) = \mathbf{U}_{III}$ dans la région III et $\mathbf{u}(z=h_\infty) = \mathbf{U}_I$ dans la région I. En notant $A = \frac{1}{\eta_o}\frac{\partial p}{\partial \rho}$ et $A' = \frac{1}{\eta_o}\frac{\partial p}{\rho \partial \theta}$, il vient :

$$\begin{aligned} u_\rho(z) &= \frac{A}{2}z(z-h) + \frac{z}{h}\left[U_{III_\rho} + U_d\cos(\theta)\right] - U_d\cos(\theta) \\ u_\theta(z) &= \frac{A'}{2}z(z-h) + \frac{z}{h}\left[U_{III_\theta} - U_d\sin(\theta)\right] + U_d\sin(\theta) \end{aligned} \tag{2.12}$$

Le flux de la vitesse par unité de longueur à travers l'épaisseur du film $\mathbf{Q} = \int_0^h \mathbf{u}\,\mathrm{d}z$ s'écrit alors :

$$\mathbf{Q} = \left(-\frac{A}{12}h^3 + \left[U_{III_\rho} - U_d\cos(\theta)\right]\frac{h}{2}\right)\mathbf{e}_\rho + \left(-\frac{A'}{12}h^3 + \left[U_{III_\theta} + U_d\sin(\theta)\right]\frac{h}{2}\right)\mathbf{e}_\theta$$

Puis, en écrivant la conservation du flux $\mathrm{div}(\mathbf{Q}) = \frac{1}{\rho}\frac{\partial(\rho Q_\rho)}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho}\frac{\partial Q_\theta}{\partial \theta} = 0$, on obtient *l'équation générale du film d'une goutte visqueuse en géométrie de Hele-Shaw*, qui s'écrit à l'ordre dominant en $\epsilon = H_o/R$:

$$\boxed{-\frac{1}{6}\frac{\partial(Ah^3)}{\partial \rho} + \frac{\partial h}{\partial \rho}\left[U_{III_\rho} - U_d\cos(\theta)\right] + \frac{1}{\rho}\frac{\partial h}{\partial \theta}\left[U_{III_\theta} + U_d\sin(\theta)\right] + h\,\mathrm{div}(\mathbf{U}_{III}) = 0} \tag{2.13}$$

où $A = -\frac{\gamma}{\eta_o}\frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3}$.

Nous allons à présent déterminer l'expression de $\mathbf{U}_{III}$ dans deux cas limites sur le rapport de viscosité λ par des arguments en loi d'échelle.

2.2.2 Analyse des écoulements par lois d'échelle

2.2.2.1 Nature de l'écoulement dans la région I

On commence par établir analytiquement l'expression de la vitesse interfaciale dans la région centrale I en considérant un écoulement de Poisseuille unidirectionel dans la goutte et un écoulement de Couette dans le film (voir Annexe F). Il vient :

$$U_{I_\rho} = \frac{-U_d \cos(\theta)}{1 + 3\lambda \left[h_\infty(\rho,\theta)/H_o\right]} \qquad U_{I_\theta} = \frac{U_d \sin(\theta)}{1 + 3\lambda \left[h_\infty(\rho,\theta)/H_o\right]} \tag{2.14}$$

2.2.2.2 Nature de l'écoulement dans la région III

Écoulement dans la direction orthoradiale

Montrons que dans la direction orthoradiale, l'écoulement dans la région III_o peut être approché par un écoulement de Couette. Pour y parvenir nous allons démontrer que la vitesse caractéristique générée par le gradient de pression orthoradial est négligeable devant la vitesse caractéristique de la plaque dans cette direction $U_d \sin(\theta) \leq U_d$.

Selon la direction orthoradiale, la distance caractéristique sur laquelle s'établit le gradient de pression orthoradial est R. L'ordre de grandeur du gradient de pression est donné par

$$\frac{1}{\rho}\frac{\partial p}{\partial \theta} = -\frac{\gamma}{\rho}\frac{\partial^3 h}{\partial\theta\partial\rho^2} \sim \frac{\gamma}{R}\frac{h_f}{l^{*2}} \tag{2.15}$$

Si on estime à présent l'ordre de grandeur de la vitesse orthoradiale U_θ dans la phase externe, générée par le gradient de pression orthoradial, on obtient :

$$U_\theta \sim \frac{h_f^2}{\eta_o}\frac{1}{\rho}\frac{\partial p}{\partial \theta} \sim \left(\frac{H_o}{R}\right)\left(\frac{h_f}{H_o}\right)^2 \frac{U_d}{Ca}$$

où $Ca = \eta_o U_d/\gamma$

Cette dernière équivalence montre que U_θ est négligeable devant la vitesse caractéristique de la plaque $U_d \sin(\theta) \leq U_d$ puisque expérimentalement on remarque que $\left(\frac{H_o}{R}\right)\left(\frac{h_f}{H_o}\right)^2 \ll Ca$. En effet, pour des valeurs typiques des paramètres Ca =10^{-4}, $H_o = 10$ μm, R =100 μm, et $h_f \simeq 100$ nm, on obtient $\left(\frac{H_o}{R}\right)\left(\frac{h_f}{H_o}\right)^2 \sim 10^{-5}$. Par conséquent, l'écoulement orthoradial dans la région III_o peut être considéré comme un écoulement de Couette tel que :

$$U_{III_\theta} = U_{I_\theta}(\rho = R - H_o, \theta) = \frac{U_d \sin(\theta)}{1 + 3\lambda h_f(\theta)/H_o} \tag{2.16}$$

Écoulement dans la direction radiale

Cherchons à présent une loi d'échelle pour la vitesse interfaciale radiale dans la région III, U_{III_ρ}, et montrons qu'elle prend une forme simple dans deux cas limites sur le rapport de viscosités λ.

Selon la direction radiale, le gradient de pression dû au gradient de courbure s'établit sur une distance $l^*(\theta)$, liée à l'épaisseur du film à la frontière entre les régions III et I, $h_f(\theta)$, par $h_f(\theta)/{l^*}^2(\theta) \sim 1/H_o$. Cette dernière relation vient de la continuité de la courbure de l'interface entre les régions III et II. D'après l'approximation de lubrification, on doit avoir $h_f(\theta) \ll l^*(\theta) \sim \sqrt{H_o h_f(\theta)}$ ce qui implique $l^*(\theta) \ll H_o$. L'ordre de grandeur du gradient de pression est donné par

$$\frac{\partial p}{\partial \rho} = -\gamma \frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3} \sim \gamma \frac{h_f}{{l^*}^3}$$

ce qui est R/l^* plus important que le gradient orthoradial (voir éq. (2.15)).

Les gradients de vitesse à l'interface se concentrent sur une longueur $l^*(\theta) \ll H_o \ll R$ dans la direction radiale. En écrivant la divergence de la vitesse $\mathbf{u}_i$ dans la région III_i, $\mathrm{div}(\mathbf{u}_i) = \frac{\partial u_{i_\rho}}{\partial \rho} + \frac{u_{i_\rho}}{\rho} + \frac{1}{\rho}\frac{\partial u_{i_\theta}}{\partial \theta} + \frac{\partial u_{i_z}}{\partial z} = 0$, on voit que cette différence d'échelle permet de supposer les second et troisième termes négligeables devant le premier puisque

$$\frac{\partial u_{i_\rho}}{\partial \rho} \sim \frac{\partial U_{III_\rho}}{\partial \rho} \sim \frac{U_{III_\rho}}{l^*}$$
$$\frac{u_{i_\rho}}{\rho} \sim \frac{U_{III_\rho}}{\rho} \leq \frac{U_d}{R}$$
$$\frac{1}{\rho}\frac{u_{i_\theta}}{\partial \theta} \sim \frac{1}{\rho}\frac{\partial U_{III_\theta}}{\partial \theta} \sim \frac{1}{\rho}\frac{\partial U_{I_\theta}}{\partial \theta} \leq \frac{U_d}{R}$$

La divergence de la vitesse dans la région III_i peut donc être approchée par $\mathrm{div}(\mathbf{u}_i) \simeq \frac{\partial u_{i_\rho}}{\partial \rho} + \frac{\partial u_{i_z}}{\partial z} = 0$, ce qui montre que l'écoulement dans la région III_i s'étend sur une échelle de longueur $l^*(\theta)$ dans la direction z. Dans le plan (ρz), l'écoulement présente les mêmes caractéristiques que celles énoncées par Hodges *et al.* dans le cas axisymétrique (voir sous-section 2.1.2) : le champ des vitesses dans le plan (ρz) de la région III_i a deux échelles de longueur sur lesquelles il varie, l^* et H_o et la composante radiale de la vitesse interfaciale dans la région III peut être écrite sous la forme :

$$U_{III_\rho} = U_{I_\rho} + v_{b_\rho}(\rho) \tag{2.17}$$

où U_{I_ρ} est régie par l'échelle de longueur H_o. Cette vitesse est quasiment constante dans la région III et peut être approchée par $U_{I_\rho} = -\frac{U_d \cos(\theta)}{1+3\lambda[h_f(\theta)/H_o]}$ (voir éq. (2.14)). v_{b_ρ} est régie par l'échelle de longueur $l^*(\theta)$ et est négligeable à l'extérieur de III_i.

L'ordre de grandeur de v_{b_ρ} est donné par l'équilibre des contraintes visqueuses tangentielles dans les régions III_o et III_i, respectivement, $\eta_o(U_d\cos(\theta) - v_{b_\rho})/h_f(\theta)$ et $\lambda\eta_o v_{b_\rho}/l^*(\theta)$ par

$$v_{b_\rho} \sim U_d\cos(\theta)/\left(1 + \frac{\lambda h_f(\theta)}{l^*(\theta)}\right) \sim U_d\cos(\theta)/\left(1 + \lambda\sqrt{\frac{h_f(\theta)}{H_o}}\right) \tag{2.18}$$

On dispose à présent des expressions et lois d'échelle pour U_I et U_{III} grâce aux équations (2.14) (2.17) (2.18). Cherchons à savoir ce que deviennent ces vitesses dans deux cas limites sur λ

Valeurs des vitesses interfaciales en fonction du rapport des viscosités

On remarque expérimentalement (cf. chapitre 4) que $h_f(\theta)$ décroît avec θ avec un maximum situé en $\theta = 0$ et un minimum pour $\theta \simeq \frac{\pi}{2}$.

Ainsi pour $\lambda \ll \left(\frac{h_f(0)}{H_o}\right)^{-1/2} \leq \left(\frac{h_f(\theta)}{H_o}\right)^{-1/2}$, $v_{b_\rho} \sim U_d \cos(\theta)$ et $U_I \sim U_d$, ce qui implique que l'interface est mobile (*i.e.* elle n'oppose pas de résistance à l'écoulement externe) dans les régions III et I. Par conséquent, la contrainte visqueuse tangentielle peut être considérée comme nulle dans ces régions et on retrouve le cas *stress-free* décrit par Burgess & Foster.

En revanche, pour $\lambda \gg \left(\frac{h_f(\frac{\pi}{2})}{H_o}\right)^{-1/2} \geq \left(\frac{h_f(\theta)}{H_o}\right)^{-1/2}$, les variations locales de la vitesse interfaciale disparaissent dans la région III puisque $v_{b_\rho} \sim U_d \cos(\theta)/(\lambda\sqrt{\frac{h_f(\theta)}{H_o}})$. La composante radiale de la vitesse interfaciale dans la région III peut alors être considérée comme constante telle que

$$U_{III_\rho} = U_{I_\rho}(\rho = R - H_o, \theta) = \frac{-U_d \cos(\theta)}{1 + 3\lambda\,[h_f(\theta)/H_o]}$$

En résumé, il a été montré que l'écoulement orthoradial dans la région III_o peut être approché par un écoulement de Couette donnant lieu à une vitesse interfaciale U_{III_θ} dont l'expression est donnée par l'éq. (2.16). Dans la direction radiale, l'écoulement dans la région III_o est un écoulement de Poiseuille. Une expression analytique simple de la vitesse interfaciale radiale U_{III_ρ} dans la région III_o peut être déterminée dans deux cas limites sur le rapport de viscosité : $\lambda \ll \left(\frac{h_f(0)}{H_o}\right)^{-1/2} \leq (\frac{h_f(\theta)}{H_o})^{-1/2}$ et $\lambda \gg \left(\frac{h_f(\frac{\pi}{2})}{H_o}\right)^{-1/2} \geq \left(\frac{h_f(\theta)}{H_o}\right)^{-1/2}$.

Montrons à présent ce que devient l'équation du film (2.13) dans chacun de ces deux cas limites et résolvons-la.

2.2.3 Équation du film pour $\lambda \ll \left(\frac{h_f(0)}{H_o}\right)^{-1/2}$

Dans ce cas la condition de nullité des contraintes visqueuses tangentielles à l'interface (*i.e.* $\frac{\partial u_\rho}{\partial z} = \frac{\partial u_\theta}{\partial z} = 0$ en $z = h$) donne pour expression de la vitesse interfaciale dans la région III :

$$\mathbf{U}_{III} = \left(-\frac{Ah^2}{2} - U_d \cos(\theta)\right)\mathbf{e}_\rho + \left(-\frac{A'h^2}{2} + U_d \sin(\theta)\right)\mathbf{e}_\theta \tag{2.19}$$

En incorporant cette expression dans l'équation générale du film (2.13), on retrouve, à l'ordre dominant en $\epsilon = H_o/R$, l'équation (1.19) du film pour une bulle obtenue par Burgess & Foster [3] :

$$\boxed{0 = \frac{1}{3}\frac{\partial(Ah^3)}{\partial\rho} + U_d\left[\cos(\theta)\frac{\partial h}{\partial\rho} - \frac{\sin(\theta)}{\rho}\frac{\partial h}{\partial\theta}\right]} \tag{2.20}$$

Ainsi pour $\lambda \ll \left(\frac{h_f(0)}{H_o}\right)^{-1/2}$ (expérimentalement $\left(\frac{h_f(0)}{H_o}\right)^{-1/2} \simeq 10$ où $h_f(0) \simeq 100$ nm, $H_o \simeq 10$ μm), *la topographie du film de lubrification sous une goutte est la même que sous*

une bulle. Comme l'éq. (2.20) nous donne $h_f(0) = 1.337 H_o Ca^{2/3}$ (cf. sous-section 1.4.2), la condition devant être vérifiée par le rapport de viscosité pour obtenir une topographie de type *stress-free* peut s'écrire $\boxed{\lambda \ll Ca^{-1/3}}$. Ce résultat est en accord avec la prédiction de Park & Homsy [26] sur l'épaisseur du film déposé dans un écoulement biphasique visqueux en cellule de Hele-Shaw.

Comme on la vu au chapitre 1, l'approche adoptée par Burgess & Foster pour résoudre l'équation du film (2.20) consiste à diviser le ménisque dynamique en trois zones, les ménisques dynamiques avant/arrière et latéral, et à résoudre la forme asymptotique que prend l'éq. (2.20) dans chacune des régions. L'intégralité du profil interfacial est ensuite obtenu en joignant les solutions correspondant aux différentes zones.

Ménisques dynamiques avant/arrière

Dans les ménisques avant/arrière, on peut négliger le terme incluant $\sin(\theta)$ dans l'éq. (2.20) puisque l'épaisseur varie beaucoup plus lentement dans la direction orthoradiale que radiale. En négligeant ce terme, on retrouve une équation de Bretherton où la vitesse de la paroi U_d est remplacée par sa projection sur la normale $\mathbf{e}_\rho$ au contour de la bulle, $U_d \cos(\theta)$ (voir Fig. 1.13.b) :

$$U_d \cos(\theta)[h - h_f(\theta)] = \frac{\gamma}{3\eta_o} \frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3} h^3 \tag{2.21}$$

L'équation (2.21) reste vraie dans un secteur angulaire $[-\theta_{\max}, \theta_{\max}]$ (Fig. 1.13.b) où le terme incluant le $\sin(\theta)$ reste négligeable. La résolution de l'éq. (2.21) (*i.e.* équation de type Bretherton) est détaillée en Annexe C.

L'analyse de la sous-section 1.4.2 montre que l'épaisseur du film dans la région centrale I est indépendante de x et la résolution de l'éq. (2.21) donne $h^{\mathrm{BF,c}} = 1.337 H_o [Ca \cos(\theta^{\mathrm{fr}})]^{2/3}$. $h^{\mathrm{BF,c}}$ est une épaisseur de Bretherton pondérée, basée sur la vitesse de la paroi normale au contour de la goutte $-U_d \cos(\theta)$. Le facteur d'épaississement dans la région centrale s'écrit donc

$$\boxed{f^{\mathrm{BF,c}} = h^{\mathrm{BF,c}} / h^{\mathrm{Breth}} = \cos^{2/3}(\theta^{\mathrm{fr}})} \tag{2.22}$$

où $h^{\mathrm{Breth}} = 1.337 H_o Ca^{2/3}$

Ménisque dynamique latéral

Dans le ménisque dynamique latéral, la composante orthoradiale de l'entraînement visqueux généré par le mouvement de la paroi doit être considérée et les trois termes de éq. (2.20) sont alors pris en compte. L'adimensionnement suivant, établi par Burgess & Foster [3], permet de construire une équation maîtresse à partir de (2.20) en s'assurant que les deux

termes du membre de gauche de (2.20) sont du même ordre de grandeur. Dans ce but, ils définissent

$$\rho = R - H_o + H_o\delta_r r' \qquad z = H_o\delta_z z' \qquad h = H_o\delta_z h' \qquad \theta - \frac{\pi}{2} = \delta_\theta\theta' \tag{2.23}$$

où $\delta_r = (\epsilon^{1/2}Ca)^{2/5}$, $\delta_z = (\epsilon^{1/2}Ca)^{4/5}$ et $\delta_\theta = \epsilon^{1/2}(\epsilon^{1/2}Ca)^{1/5}$. Ces quantités font intervenir $\epsilon = H_o/R$ et Ca, supposés vérifier $1 \gg \epsilon \gg Ca$. Pour des valeurs typiques du nombre capillaire, Ca =7.2×10^{-4} et du facteur de confinement, ϵ =8×10^{-2} (H_o =7 μm, R =84 μm) tirés d'expériences présentées dans la suite, on obtient δ_r =0.03, δ_z =0.001 et δ_θ =0.05 rad=3 deg. En utlisant ces variables adimensionnées ainsi qu'un développement au premier ordre du sin et cos au voisinnage de $\pi/2$, l'éq. (2.20) devient :

$$\left(\frac{1}{3}h'_{r'r'r'}h'^3 + \theta' h'\right)_{r'} = -h'_{\theta'} \tag{2.24}$$

Cette équation est résolue numériquement pour $-\theta'_{max} \leq \theta' \leq \theta'_{\max}$. La valeur de θ'_{max}, définissant la borne d'intégration, peut être déterminée expérimentalement (voir chapitre 4) à partir de l'angle $\theta_{\max}$ à partir duquel l'épaisseur du film dans la région centrale cesse d'être indépendante de x. Pour résoudre l'équation (2.24), on se sert du profil issu de la résolution de l'équation (2.21) pour $\theta = \theta_{max}$, $h'(r', -\theta'_{\max})$, comme condition initiale et les profils pour des angles supérieurs, $h'(r', \theta')$ sont obtenus par une méthode numérique de Crank-Nicholson. Les conditions aux limites consistent en un raccordement à un profil de courbure constante dans le ménisque statique, $d^2h/dr^2(\rho_{\max}) = 1/H_o$ et un raccord à un film plat d'épaisseur constante, $h(\rho_{min}, \theta) = h(\rho_{min}, \theta_{max})$.

2.2.4 Équation du film pour $\lambda \gg \left(\frac{h_f(\frac{\pi}{2})}{H_o}\right)^{-1/2}$: modèle visqueux

Dans ce cas les composantes de la vitesse interfaciale dans la région III vérifient :

$$U_{III_\rho} = U_{I_\rho} = \frac{-U_d\cos(\theta)}{1+3\lambda\epsilon_f(\theta)} \qquad U_{III_\theta} = U_{I_\theta} = \frac{U_d\sin(\theta)}{1+3\lambda\epsilon_f(\theta)}$$

où $\epsilon_f(\theta) = h_f(\theta)/H_o$

En incorporant ces expressions dans l'équation générale du film (2.13), on obtient *l'équation du film se développant sous une goutte très visqueuse* :

$$\boxed{0 = \frac{1}{6}\frac{\partial(Ah^3)}{\partial\rho} + U_d\left[\frac{2+3\lambda\epsilon_f(\theta)}{1+3\lambda\epsilon_f(\theta)}\right]\left[\cos(\theta)\frac{\partial h}{\partial\rho} - \frac{\sin(\theta)}{\rho}\frac{\partial h}{\partial\theta}\right]} \tag{2.25}$$

Puis, en utilisant le changement de variable $\rho_1 = 2^{1/3}\left[\frac{2+3\lambda\epsilon_f(\theta)}{1+3\lambda\epsilon_f(\theta)}\right]^{1/3}\rho = g(\theta)\rho$ on voit que (2.25) devient :

$$0 = \frac{1}{3}\frac{\partial(A_1h^3)}{\partial\rho_1} + U_d\left[\cos(\theta)\frac{\partial h}{\partial\rho_1} - \frac{\sin(\theta)}{\rho}\frac{\partial h}{\partial\theta}\right] \tag{2.26}$$

où $A_1 = -\frac{\gamma}{\eta_o}\frac{\partial^3 h}{\partial \rho_1^3}$. Cette dernière équation est formellement identique à l'équation du film sous une bulle eq. (2.20) et est résolue de la même façon que l'éq. (2.20) en divisant le ménisque dynamique en trois zones, les ménisques dynamiques avant/arrière et latéral, et en résolvant la forme asymptotique que prend l'éq. (2.26) dans chacune des régions.

Remarque :

Pour $\lambda \gg \epsilon_f(\theta)^{-1} = \left(\frac{h_f(\theta)}{H_o}\right)^{-1} > \left(\frac{h_f(\frac{\pi}{2})}{H_o}\right)^{-1}$, l'éq. (2.25) devient une équation de type *sliding* valable pour une goutte ou une bulle dont l'interface serait rigide avec une condition de vitesse uniformément nulle à l'interface dans le référentiel de la goutte/bulle :

$$0 = \frac{1}{6}\frac{\partial(Ah^3)}{\partial \rho} + U_d\left[\cos(\theta)\frac{\partial h}{\partial \rho} - \frac{\sin(\theta)}{\rho}\frac{\partial h}{\partial \theta}\right] \tag{2.27}$$

Ménisques dynamiques avant/arrière

Comme expliqué précédemment, le dernier terme de l'équation (2.25) peut être négligé dans les régions avant/arrière du ménisque dynamique et la résolution de l'équation simplifiée

$$0 = \frac{1}{6}\frac{\partial(Ah^3)}{\partial \rho} + U_d\left[\frac{2+3\lambda\epsilon_f(\theta)}{1+3\lambda\epsilon_f(\theta)}\right]\cos(\theta)\frac{\partial h}{\partial \rho} \tag{2.28}$$

donne l'épaississement $f^{\text{visq, c}} = h^f(\theta^{fr})/h^{\text{Breth}}$ dans la région centrale :

$$\boxed{f^{\text{visq, c}} = 2^{2/3}\left[\frac{2+4\lambda f^{\text{visq}} Ca^{2/3}}{1+4\lambda f^{\text{visq}} Ca^{2/3}}\right]^{2/3}\cos^{2/3}(\theta^{\text{fr}})} \tag{2.29}$$

Remarques :

– Si $\lambda \gg Ca^{-2/3}$, on retrouve le cas limite du *sliding* , $f^{\text{visq, c}} = f^{\text{slid, c}} = 2^{2/3}\cos^{2/3}(\theta^{\text{fr}})$ et l'épaisseur dans la région centrale est donnée par

$$h^{\text{slid,c}} = 2^{2/3}\cos^{2/3}(\theta^{\text{fr}})h^{\text{Breth}} = 2^{2/3}h^{\text{BF,c}} \tag{2.30}$$

– En $\theta^{\text{fr}} = 0$ (axe x), on trouve un épaississement visqueux différent de celui Hodges *et al.* déterminé dans le cas axisymétrique (éq. (2.11)) (le facteur 5.348 est remplacé par un facteur 4 dans l'épaississement). Cette différence tient au fait que la vitesse interfaciale dans la région I n'a pas la même expression suivant que l'on considère un écoulement de Poiseuille axisymétrique dans le corps de la goutte I_i (goutte axisymétrique) ou un écoulement de Poiseuille entre deux plaques infinies (*i.e.* goutte pancake).

Ménisque dynamique latéral

Dans le ménisque dynamique latéral, les trois termes de l'équation (2.25) doivent être considérés. Un adimensionnement identique à celui de Burgess & Foster [3] (voir éq. (2.23)) permet de construire une équation maîtresse à partir de l'équation (2.25) :

$$\left(\frac{1}{3g^3(\theta)}h'_{r'r'r'}h'^3+\theta'h'\right)_{r'}=-h'_{\theta'} \tag{2.31}$$

où $g(\theta)=2^{1/3}\left[\frac{2+3\lambda\epsilon_f(\theta)}{1+3\lambda\epsilon_f(\theta)}\right]^{1/3}$

L'intégration numérique de l'éq. (2.31) est éffectuée de la même façon que l'éq. (2.24) (*i.e.* même condition initiale, mêmes conditions aux limites). D'autre part, on considère que $g(\theta)=g(\theta_{\max})$ (*i.e.* raccord à un film plat d'épaisseur constante) dans l'intégration.

2.3 Conclusion

En définitive, l'approche de Hodges *et al.* [1] dans le cas axisymétrique, rappelée en début de ce chapitre, a permis de simplifier l'équation générale du film se développant sous une goutte visqueuse en géométrie de Hele-Shaw (éq. (2.13)) dans deux cas limites sur le rapport de viscosité. On retrouve l'éq. (2.20) pour une bulle pancake établie par Burgess & Foster dans le cas $\lambda \ll \left(\frac{h_f(0)}{H_o}\right)^{-1/2}$ et une nouvelle équation visqueuse (éq. (2.25)) dans le cas $\lambda \gg \left(\frac{h_f(\frac{\pi}{2})}{H_o}\right)^{-1/2}$. La résolution de ces deux équations est réalisée par la même procédure que celle décrite par Burgess & Foster dans [3], consistant à diviser le ménisque dynamique en plusieurs zones asymptotiques.

Expérimentalement, on verra au chapitre 4 que $\left(\frac{h_f(0)}{H_o}\right)^{-1/2}\simeq 10$ et $\left(\frac{h_f(\frac{\pi}{2})}{H_o}\right)^{-1/2}\simeq 30$ où $h_f(0)\simeq 100$ nm, $h_f(\frac{\pi}{2})\simeq 10$ nm et $H_o\simeq 10$ μm. Pour les rapports de viscosités considérés expérimentalement au chapitre 4, $\lambda<1$ et $\lambda=1000$, on pourra donc comparer les modèles développés pour la topographie du film aux topographies mesurées.

Synthèse - Chapitre 2

- Influence de la viscosité interne de la goutte sur l'épaisseur du film : modèle de Hodges *et al.* dans le cas axisymétrique
  1. Raisonnement en lois d'échelle sur les contraintes et vitessses interfaciales pour déterminer les différents régimes d'épaississement du film en fonction de λ.
  2. Mise en évidence de deux cas limites, $\lambda \ll Ca^{-1/3}$ et $\lambda \gg Ca^{-1/3}$ pour lesquelles l'équation du film se résout simplement.
  3. Pour $\lambda \ll Ca^{-1/3}$, l'équation du profil de l'interface sous une bulle est retrouvée (cf. Bretherton) : épaississement $f^{\mathrm{Breth}} = \frac{h_\infty}{h^{\mathrm{Breth}}} = 1$
  4. Pour $\lambda \gg Ca^{-1/3}$, l'épaississement visqueux du film s'écrit

$$f^{\mathrm{Hodg}} = 2^{2/3} \left[\frac{2 + 5.348 \lambda f^{\mathrm{Hodg}} Ca^{2/3}}{1 + 5.348 \lambda f^{\mathrm{Hodg}} Ca^{2/3}} \right]^{2/3}$$

     Lorsque $\lambda \gg Ca^{-2/3}$, l'épaississement *sliding* est retrouvé $f^{\mathrm{sli}} = 2^{2/3}$

- Influence de la viscosité interne de la goutte sur l'épaisseur du film : nouveau modèle pour des gouttes pancake visqueuses en cellule de Hele-Shaw
  1. Utilisation de raisonnements en lois d'échelle sur les contraintes et les vitesses interfaciales, couplés à l'approche de Burgess & Foster pour une bulle pancake afin de déterminer les différents régimes d'épaississement du film en fonction de λ.
  2. Mise en évidence de deux cas limites, $\lambda \ll Ca^{-1/3}$ et $\lambda \gg \left(\frac{h_f(\pi/2)}{H_o}\right)^{-1/2}$ pour lesquelles l'équation du film se résout simplement.
  3. Pour $\lambda \ll Ca^{-1/3}$, l'équation de la topographie du film sous une bulle de Burgess & Foster est retrouvée : l'épaississement dans la région centrale est un épaississement de Bretherton pondéré par $\cos^{2/3}(\theta^{\mathrm{fr}})$:

$$f^{\mathrm{BF,c}} = \frac{h^{\mathrm{BF,c}}}{h^{\mathrm{Breth}}} = \cos^{2/3}(\theta^{\mathrm{fr}})$$

  4. Pour $\lambda \gg \left(\frac{h_f(\pi/2)}{H_o}\right)^{-1/2}$, l'équation de la topographie du film sous une goutte pancake visqueuse peut être résolue simplement. L'épaississement dans la région centrale s'écrit :

$$f^{\mathrm{visq,\ c}} = 2^{2/3} \left[\frac{2 + 4 \lambda f^{\mathrm{visq,\ c}} Ca^{2/3}}{1 + 4 \lambda f^{\mathrm{visq,\ c}} Ca^{2/3}} \right]^{2/3} \cos^{2/3}(\theta^{\mathrm{fr}})$$

     Pour $\lambda \gg Ca^{-2/3}$, l'épaississement dans la région centrale est un épaississement de type *sliding*, pondéré par un $\cos^{2/3}(\theta^{\mathrm{fr}})$:

$$f^{\mathrm{slid,\ c}} = 2^{2/3} \cos^{2/3}(\theta^{\mathrm{fr}})$$

CHAPITRE 3

Dispositif expérimental

Les expériences réalisées dans cette étude ont été possibles grâce au développement des méthodes microfluidiques, donnant la possibilité d'atteindre des nombres capillaires très faibles, ainsi que des méthodes interférométriques, permettant d'observer des régions nanométriques d'objets micrométriques. Dans ce chapitre, nous commençons par décrire le dispositif microfluidique utilisé ainsi que sa méthode de fabrication. Puis nous expliquons brièvement la façon dont la vitesse des gouttes est mesurée. Enfin, le dispositif interférentiel servant à la mesure de l'épaisseur du film est présenté.

3.1 Dispositif microfluidique

3.1.1 Objectifs

La mesure de l'épaisseur du film de lubrification entre une goutte et la paroi du canal suppose la formation de ces gouttes au préalable. La génération de ces dernières est réalisée à l'aide d'une jonction-T (Fig. 3.1) permettant un contrôle précis de la taille des gouttes, uniquement fonction de la géométrie de la jonction dans un certain régime. Le système utilisé est représenté sur la Fig. 3.1. La cavité a une largeur $l = 2500$ μm et une longueur $L = 9000$ μm. La puce microfluidique a une épaisseur uniforme de $2H_o = 14$ μm. Dans ce travail, trois types de puce, présentant chacune une largeur de canal différente w (150, 250 et 350 μm) au niveau de la jonction-T, ont été utilisées. Ceci nous a permis de générer des gouttes de trois diamètres D différents, avec $D \simeq w$. Le système est moulé dans du PDMS [27] Sylgard 184 (Dow Corning)

Les gouttes sont générées avec un contrôleur en pression (MFCS, Fluigent) et le débit dans la cavité est ajusté avec un pousse-seringue. La géométrie de type "peigne" permet d'accélérer

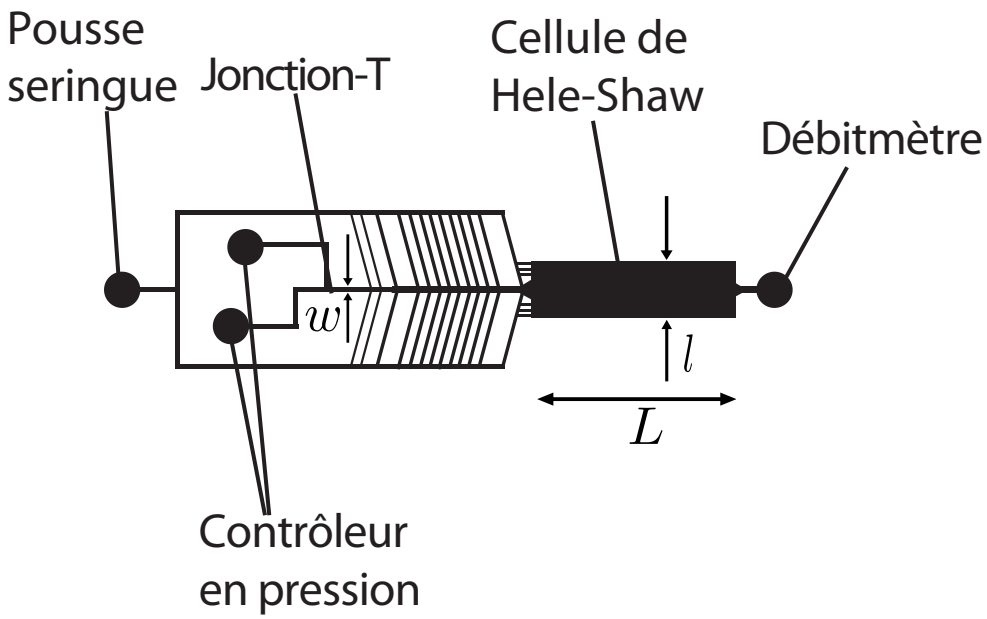

FIGURE 3.1: Système microfluidique utilisé. La cavité de Hele-Shaw a une largeur l =2500 μm et une longueur L =9 mm. L'épaisseur des canaux du circuit est $2H_o$ =14 μm. Trois largeurs de canaux au niveaux de la jonction-T ont été utilisées, w =150, 250, 350 μm.

et de séparer les gouttes pour éviter qu'elle n'interagissent entre elles dans la cavité. Il a été mis en évidence expérimentalement que si la distance séparant les centres de deux gouttes de même rayon R est supérieure à $8R$ [28] l'interaction disparaît.

Cette géométrie a été retenue car elle permet d'ajouter de la phase externe en répartissant le débit imposé par le pousse-seringue dans plusieurs canaux. Ceci permet de diminuer la vitesse du fluide externe à chaque croisement et d'empêcher la brisure de goutte au passage de l'accélérateur. En sortie, on ajoute un débimètre pour pouvoir mesurer la vitesse de la phase externe dans la cavité U_f. Ce système permet d'obtenir des trains de gouttes monodisperses et uniformément espacées dans la cavité de Hele-Shaw. D'autre part, les gouttes y sont confinées ($R/H_o > 10$) et loin des bords ($l/(2R) > 7$). Afin de réaliser ce système, les méthodes classiques de microfabrication sont utilisées. Dans notre cas cependant, une étape supplémentaire vient s'ajouter pour empêcher la cavité de se déformer lorsqu'on y applique une surpression par rapport à l'extérieur.

3.1.2 Fabrication

Plusieurs étapes de fabrication sont nécessaires afin de réaliser le système décrit précédemment. La technique utilisée est la plus classique dans le domaine de la microfluidique : photolithographie pour fabriquer un moule en résine sur support de silicium et moulage du PDMS pour la confection du système expérimental. Les étapes du processus de photolitho-

graphie sont illustrées dans la Fig. 3.2 gauche. Elles sont énumérées ci-dessous :

1. Une résine photosensible SU-8 est déposée uniformément sur un substrat en silicium par une tournette dont la vitesse et la durée de rotation sont contrôlées afin d'obtenir l'épaisseur escomptée. Dans ce travail, des moules d'épaisseur 14 μm ont été réalisés.
2. L'ensemble est placé sur une plaque chauffante avec deux paliers de chauffe. Un premier palier à 65°C permet de relâcher les contraintes d'étalement à l'intérieur de la résine. Ensuite une période d'évaporation sur une plaque chauffante à 95°C élimine les solvants contenus dans la résine.
3. Le photomasque est aligné au dessus du substrat en silicium recouvert de la couche de résine. Une insolation, par rayonnements ultraviolets (13 mW/cm^2, 365 nm) à travers les zones transparentes du photomasque, est réalisée pour réticuler la résine.
4. La réticulation de la résine insolée est accélérée par une deuxième cuisson à 65°C puis à 95°C sur une plaque chauffante.
5. Un bain d'une dizaine de minutes dans du développeur (1-Methoxy-2-Propanol acétate) sous agitation permet de dissoudre la partie de la résine non réticulée. Un rinçage par jet d'isopropanol permet d'enlever les résidus. On obtient un moule utilisable dans la suite du procédé de fabrication.

Le protocole suivant, qui consiste à assembler la puce microfluidique se distingue de la technique classique en ce sens qu'il permet de limiter la déformation de la cavité en intercalant une lamelle de verre entre le plafond de la cavité et le haut du bloc de PDMS (Fig. 3.2 droite). Cette technique est similaire à celle détaillée par Taccoen dans [29]. Les étapes du protocole sont les suivantes :

1. Le PDMS mélangé à un agent réticulant (1 :10 en masse) est étalé à la tournette sur le wafer et durci par chauffage (2 heures à 90°C) pour obtenir une couche de 240 μm.
2. Une lamelle de verre est collée sur cette fine couche de PDMS par un traitement plasma des deux surfaces. Cette opération consiste à ioniser une atmosphère basse pression d'oxygène pour créer des radicaux $O^{\cdot}$. Ces derniers vont substituer des groupements silanols aux groupements méthyles. Les silanols des deux surfaces se condensent ensuite pour aboutir à une liaison covalente Si-O-Si et donc à un collage irréversible.
3. On coule à nouveau le mélange (PDMS+ agent réticulant) par dessus et on le laisse durcir en chauffant pendant 2 heures à 90°C.
4. Le bloc de PDMS est démoulé du wafer et les systèmes sont lavés en respectant le cycle suivant : Isopropanol - Ethanol - Eau MilliQ - Decon 5% - Ethanol - Eau MilliQ - séchage au diazote. Avant d'être collées au plasma, les lamelles de verre sont traitées au Pyranha (Acide sulfurique à 95% / Eau oxygénée à 50% - 2/3, 1/3 en masse) pendant 5 minutes avant d'être rincées dans deux bains d'eau différents (5 minutes chacun). Les lames sont ensuite séchées au diazote. Lorsque cette étape est terminée, on scelle les

canaux en mettant le PDMS en contact avec la lamelle de verre, la cohésion étant assurée par un traitement plasma des deux surfaces. La propreté des surfaces est un élément déterminant pour la bonne exploitation des images en microscopie interférentielle.

Le procédé de fabrication des canaux est schématisé sur la Fig. 3.2 droite. Les systèmes ainsi obtenus sont hydrophiles, mais le PDMS étant naturellement hydrophobe, celui-ci tend à le redevenir. En conséquence, le canal sera systématiquement rempli d'eau après collage et utilisé dans la journée pour assurer une bonne hydrophilie dans le cas où la phase externe est aqueuse.

Lorsque l'on souhaite qu'au contraire les canaux de la puce soient hydrophobes, pour pouvoir faire circuler des bulles d'air non mouillantes dans de l'huile fluorée par exemple, on a recours à un procédé de silanisation immédiatement après le scellage de la puce par traitement plasma. Ce procédé consiste à greffer sur les surfaces de verre et de PDMS activées par plasma, une molécule (organofunctional alkoxysilane) présentant des propriétés organiques et inorganiques. Au cours du greffage, les groupes hydroxyles présents en surface déplacent le groupe alkoxy présent sur le silane de facon à former une liaison covalente -Si-O-Si- entre la surface et le silane, avec l'extrémité organique (une chaîne fluorée par exemple) exposée en surface. Dans ce travail le perfluorooctyltriethoxysilane a été utilisé pour favoriser le mouillage des surfaces de verre et de PDMS par de l'huile fluorée.

3.2 Solutions utilisées

Dans cette étude la topographie du film ainsi que la mobilité de gouttes seront étudiées dans deux cas limites en terme $\lambda < 1$ et $\lambda = 1000$. Nous faisons la liste dans le tableaux 3.1 suivant des couples de fluides et des tensioactifs utilisés en indiquant le rapport de viscosité et la tension interfaciale correspondants.

Phase dispersée	Phase continue	[Tensioactif](mM)	[NaCl](mM)	λ	γ (mN/m)
air	huile fluorocarbonée FC-40	0	0	4.5×10^{-3}	15
C6F14 (FC-72)	eau MilliQ +C10TAB+NaCl	990	1000	0.26	15
C6F14 (FC-72)	eau MilliQ +SDS+NaCl	0.82	200	0.64	14
huile silicone (V1000)	eau MilliQ +SDS+NaCl	16.2	100	972	7

TABLE 3.1: Couples de fluides utilisés dans ce travail. La concentration en tensioactif et en NaCl ainsi que le rapport de viscosité λ et la tension superficielle sont indiqués. A titre indicatif on rappel la concentration micellaire critique du SDS CMC_{SDS} =8.2 mM [30] et du C10TAB CMC_{C10TAB} =66 mM [31]

3.3 Méthode de mesure de la vitesse de la goutte

La vitesse des gouttes a été mesurée avec un programme mis au point par Axel Huerre permettant de détecter la forme d'une goutte et d'en déduire sa vitesse par corrélation d'images

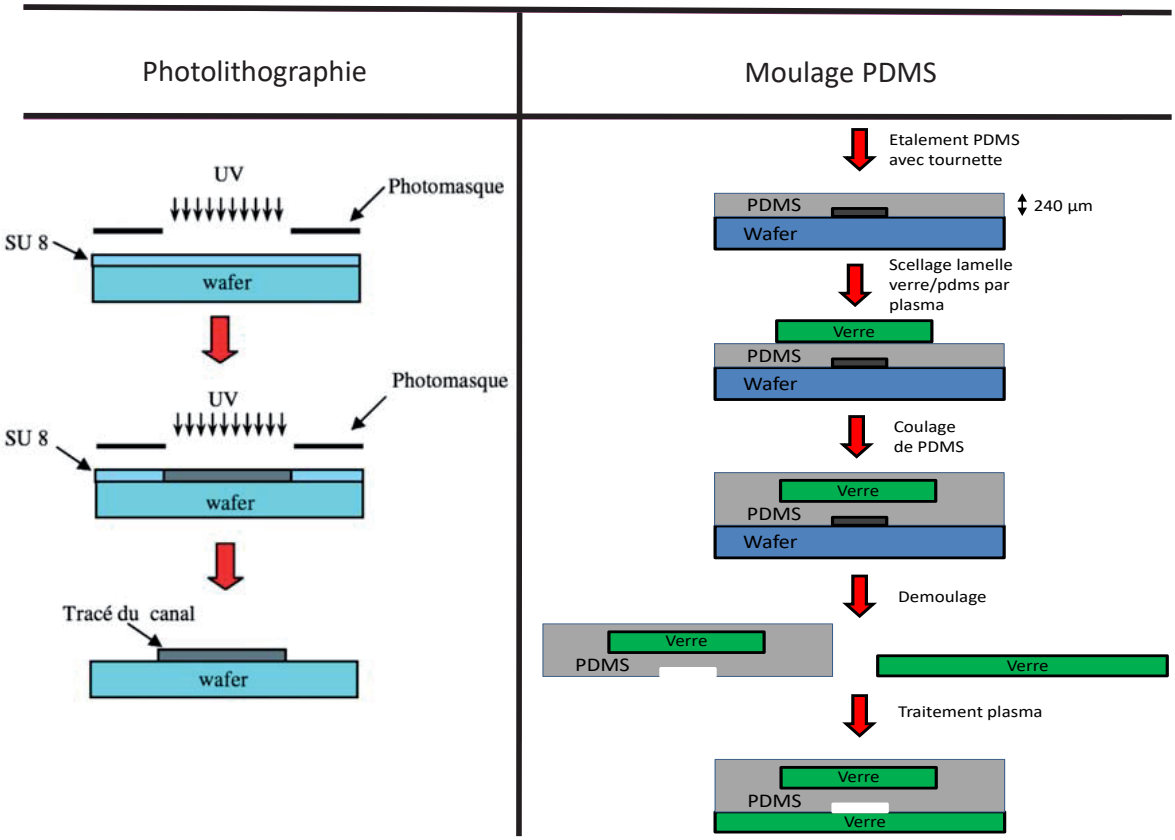

FIGURE 3.2: Gauche : Fabrication du moule par photolithographie. Première étape : exposition UV permettant la réticulation des zones éclairées à travers le photomasque. Deuxième étape : les zones non réticulées se dissolvent dans un bain de développeur, le tracé du canal est obtenu en relief ; Droite : protocole de fabrication de la puce microfluidique. Etalement et solidification d'une couche de 240 μm de PDMS sur le wafer. Deuxième étape : scellage d'une lamelle de verre sur cette couche de PDMS pour limiter la déformation de la cavité. Troisième étape : coulage et solidification d'une deuxième couche de PDMS. Quatrième étape : le contre-moule en PDMS est séparé du wafer , les canaux apparaissent en creux. Cinquième étape : après traitement au plasma, le PDMS est collé à une lamelle de verre, le canal est refermé.

successives. Cette méthode permet d'augmenter le nombre de gouttes sondées et d'avoir une bonne statistique à partir d'un seul film lorsque les trains de gouttes sont bien monodisperses et réguliers.

Par ailleurs toutes les mesures de vitesse données par le programme ont été vérifiées "à la main" de la façon suivante. Au sein d'une séquence d'images, on fait une coupe, symbolisée par le trait jaune, le long de la trajectoire de la goutte (Fig. 3.3.a). Pour chaque image de la séquence (*i.e* pour chaque pas de temps), les pixels de la coupe sont tournés verticalement pour former la Fig. 3.3.b. Cette dernière est donc un diagramme spatio-temporel de la trajectoire de la goutte où le nombre de pixels horizontaux est égal au nombre d'images dans la séquence

et le nombre de pixels verticaux au nombre de pixels le long de la coupe. La vitesse de la goutte est donnée par $U_d = \frac{\nu}{a \tan(\alpha)}$ où ν est la fréquence d'acquisition, a le nombre de pixels par unité de longueur dans la Fig. 3.3.a et α l'angle défini dans la Fig. 3.3.b.

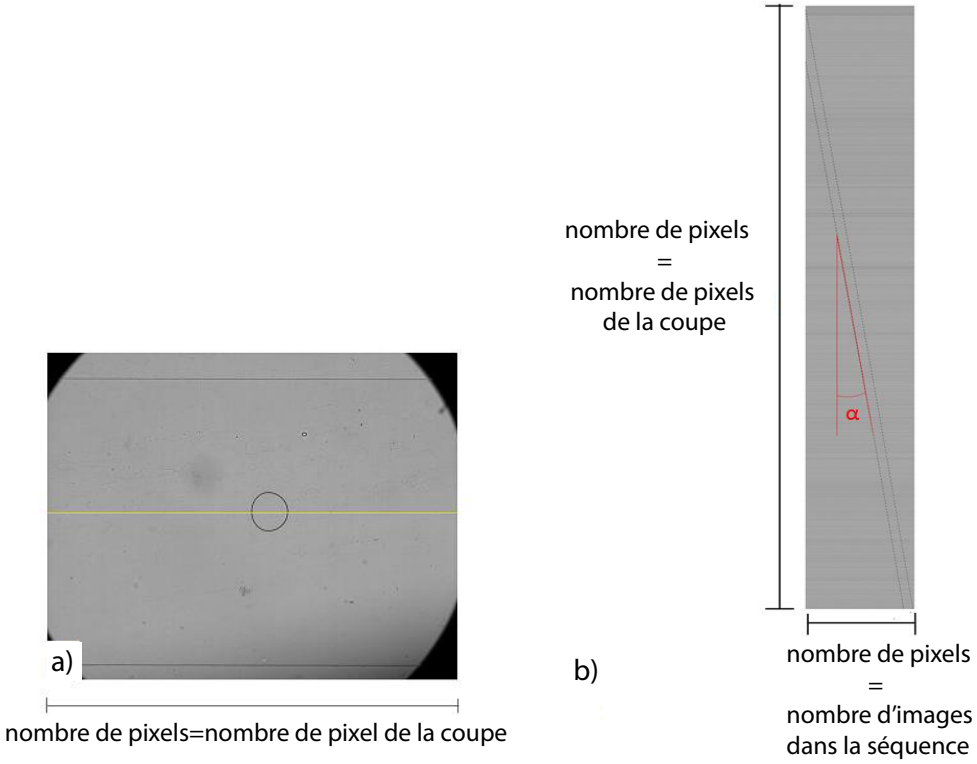

FIGURE 3.3: **(a)** Image d'une bulle de diamètre 160 μm se déplaçant dans une cellule de Hele-Shaw. Le trait jaune est tracé le long de la trajectoire de la bulle ; **(b)** Diagramme spatio-temporel de la trajectoire de la bulle. La mesure de l'angle α permet de déterminer sa vitesse.

3.4 Dispositif optique

Dans cette section, nous introduisons dans un premier temps la méthode optique utilisée pour mesurer l'épaisseur des films de lubrification. Puis, les améliorations développées dans [23] pour accroître la précision de cette technique sont présentées. Pour finir, nous précisons les modifications apportées à la méthode de mesure pour imager des films dans le cas d'objets, tels que des gouttes de faible viscosité, se déplaçant à des vitesses plus importantes que des gouttes très visqueuses.

3.4.1 Principe de la formation d'une image par RICM (Reflection Interference Contrast Microscopy)

La méthode de microscopie interférentielle en réflexion (IRM) fut introduite pour la première fois par Curtis [32] pour sonder les interactions entre cellules et substrat. Par la suite, le contraste de cette méthode fut améliorée par Ploem [33] (voir sous-section 3.4.2)

Le principe de base de la formation d'interférences en réflexion est décrit sur la Fig. 3.4. Un échantillon est observé avec une onde monochromatique en épi-illumination. Le rayon incident, d'intensité I_0 est partiellement réfléchi à l'interface verre/eau et on nomme I_1 l'intensité du rayon réfléchi de référence. La partie transmise est réfléchie sur la goutte avec une intensité I_2. Les deux rayons interfèrent lorsqu'ils sont collectés par l'objectif du microscope. L'intensité totale observée résulte de l'interférence des deux rayons :

$$I_{\theta_0} = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2}\cos(2kh(x)\cos(\theta_1) + \delta)$$

L'argument du cosinus contient le déphasage entre les deux rayons où $h(x)$ est l'épaisseur du film, ce qui implique qu'en mesurant l'intensité réfléchie, on peut remonter à l'épaisseur du film à l'aide du modèle optique donnant I_{θ_0}. D'autre part, $k = 2\pi n_1/\lambda_o$ est le nombre d'onde avec λ_o, la longueur d'onde du rayonnement dans le vide, et n_1, l'indice de réfraction du milieu. Le déphasage supplémentaire δ tient compte du fait que le rayon I_2 peut être sujet à un retard de phase supplémentaire de $\delta = \pi$ si l'indice de réfraction de l'huile dans la goutte est supérieur à celui de l'eau. Les intensités I_1 et I_2 sont reliées aux coefficients de réflexions des interfaces par

$$I_1 = R_{01} I_0 \qquad I_2 = (1 - R_{01})^2 R_{12} I_0$$

De manière générale, l'onde incidente peut être décomposée selon deux directions de polarisation s et p. La polarisation s est perpendiculaire au plan d'incidence, et la polarisation p est contenue dans ce plan. Les coefficients de réflexion en intensité R_{ij} sont reliés aux coefficients de Fresnel (coefficients en amplitude)

$$r_{ij}^p = \frac{n_j\cos(\theta_i) - n_i\cos(\theta_j)}{n_j\cos(\theta_i) + n_i\cos(\theta_j)} \qquad r_{ij}^s = \frac{n_i\cos(\theta_i) - n_j\cos(\theta_j)}{n_i\cos(\theta_i) + n_j\cos(\theta_j)}$$

par la relation

$$R_{ij} = |r_{ij}^s - r_{ij}^p|^2$$

D'autre part, les angles incident et transmis, θ_i et θ_j sont reliés entre eux par la loi de Snell-Descarte :

$$n_i\sin(\theta_i) = n_j\sin(\theta_j)$$

Tous calculs faits, l'intensité réfléchie peut être mise sous la forme :

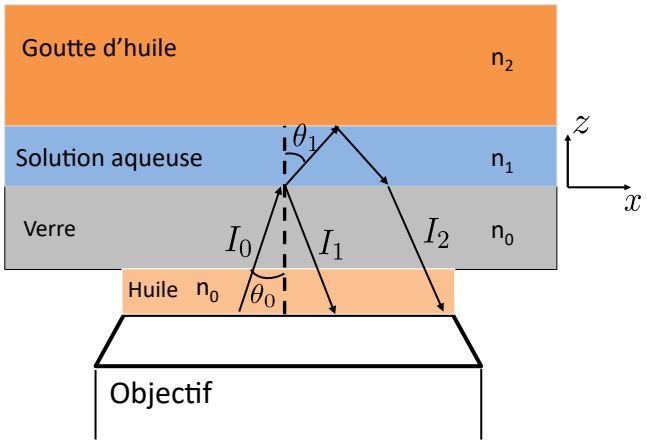

FIGURE 3.4: Principe de base de la RICM : l'objet est observé en épi-illumination par lumière monochromatique. Les franges résultent de la différence de chemin optique entre la lumière réfléchie par l'objet I_2 et celle réfléchie par l'interface verre/solution aqueuse I_1.

$$I_{\theta_0} = |r^s_{012} - r^p_{012}|^2 I_0 = R_{012} I_0$$

$r^{s,p}_{012}$ sont les coefficients de Fresnel pour l'empilement des trois milieux 0, 1 et 2, donnés par :

$$r^{s,p}_{012} = \frac{r^{s,p}_{01} + r^{s,p}_{12}.e^{-2iy}}{1 + r^{s,p}_{01}.r^{s,p}_{12}.e^{-2iy}}$$

où $y = 2\pi n_1 h(x)\cos(\theta_1)/\lambda$

En définitive, pour obtenir l'intensité totale réfléchie I_{tot} on somme de façon incohérente les intensités I_{θ_0} pour tous les angles du cône d'illumination de demi-angle au sommet θ_{M} dans le milieu d'indice n_0 :

$$I_{\text{tot}} = \int_0^{2\pi} \int_0^{\theta_{\text{M}}} I_{\theta_0} \sin(\theta_0)\, \mathrm{d}\theta_0\, \mathrm{d}\phi$$

où ϕ est l'angle azimutal en coordonées sphériques d'axe z. Pour déterminer θ_{M}, on mesure le demi-angle au sommet du cône dans l'air α_{M} relié au précédent par la relation de Snell-Descartes $\theta_{\text{M}} = \sin^{-1}[\sin(\alpha_{\text{M}})/n_0]$. La méthode de mesure est relativement simple : on place une feuille de papier à différentes distances l de l'objectif du microscope (typiquement entre 5 et 50 mm) et on relève le diamètre du cône de lumière Φ à chaque distance l. La courbe est linéaire et le demi-angle au sommet du cône d'illumination est donné par $\alpha_{\text{M}} = \tan^{-1}(d\Phi/dl)$

3.4.2 Amélioration du contraste

La lumière monochromatique est peu intense et le contraste des franges d'interférence est faible du fait de la lumière parasite. Pour pallier ce problème, on utilise la technique antiflex

réduisant la lumière parasite [33]. Son principe est illustré en Fig. 3.5. Un polariseur P_1 polarise rectilignement la lumière incidente. Ensuite la lumière devient polarisée circulairement après être passée à travers une lame quart-d'onde incluse dans l'objectif du microscope. La lumière réfléchie de l'échantillon repasse par la lame quart d'onde une seconde fois et redevient polarisée rectilignement, avec une direction de polarisation tournée de 90° par rapport au rayon incident. Finalement la lumière réfléchie de l'objet peut traverser l'analyseur croisé P_A alors que la lumière parasite réfléchie en amont de la lame quart d'onde non.

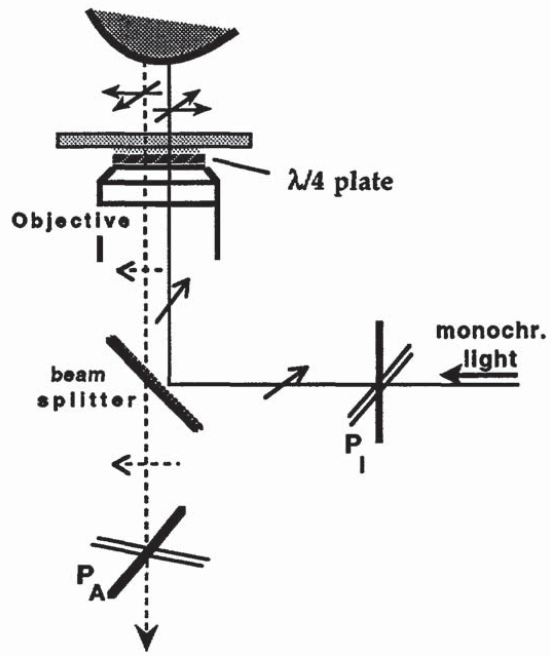

FIGURE 3.5: Principe de la technique antiflex permettant d'améliorer le contraste des franges en microscopie interférentielle par réflexion. Adapté de [34].

3.4.3 Prise en compte de la réflexion au plafond du canal

Une amélioration du modèle donnant l'intensité réfléchie totale consiste à considérer une contribution additionnelle correspondant à la réflexion au plafond de la cellule microfluidique (Fig. 3.6.a) [23]. Dans la prise en compte de la réflexion au plafond d'un canal microfluidique d'épaisseur H, l'objet confiné (i.e. la goutte) est considéré comme une couche de milieu 2, d'épaisseur macroscopique H. Au sein de cette épaisse couche de fluide, la lumière perd sa cohérence et aucune interférence n'a lieu entre les rayons réfléchis des interfaces inférieure et supérieure du milieu 2. Le signal total réfléchi provenant du canal est donc la somme incohérente des intensités provenant de l'empilement 0-1-2 d'une part et de l'empilement 2-1-3 d'autre part. Etant donné que le signal provenant de l'empilement supérieur est atténué deux

fois par le facteur de transmission $T_{012} = (1 - R_{012})$ dû à la double traversée de l'empilement inférieur, l'intensité totale réfléchie par le canal peut s'écrire :

$$I_{\text{th}} = R_{012} + (1 - R_{012})^2 . R_{123}$$

Par ailleurs, les auteurs ont aussi montré, dans le cas d'un canal rempli d'un seul fluide (Fig. 3.6.b), que l'influence de la réflexion au plafond dépend de l'épaisseur du canal (i.e. épaisseur de la couche de fluide). L'influence de la réflexion au plafond est quantifiée par l'importance du paramètre p (Fig. 3.6.c) : pour $H < 30$ μm, $p \simeq 1$ et l'influence du plafond est importante, pour $H >$150-200 μm, $p \simeq 0$ et la réflexion est négligeable.

Lorsqu'il y a une goutte dans le canal, la prise en compte de la réflexion au plafond dans l'expression de I_{th} donne :

$$I_{\text{th}} = R_{012} + p(1 - R_{012})^2 . R_{123}$$

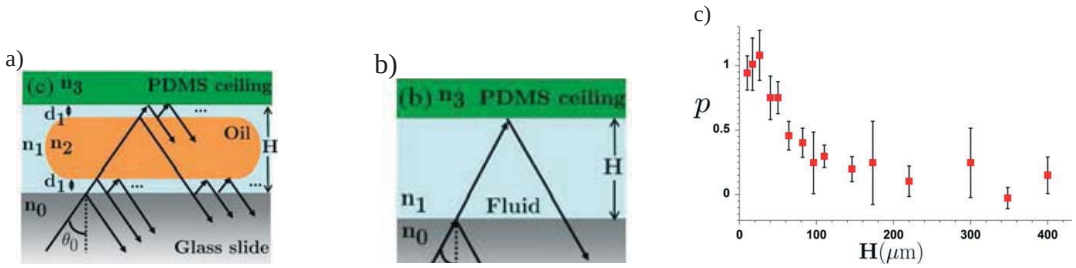

FIGURE 3.6: **(a)** Goutte confinée se déplaçant dans un canal microfluidique rempli d'un fluide immiscible. L'intensité réfléchie par le canal provient à la fois des zones de contact inférieure et supérieure entre la goutte et les parois inférieure et supérieure du canal ; **(b)** Schéma optique montrant l'intensité additionnelle provenant de la réflexion au plafond du canal ; **(c)** Contribution de la réflexion au plafond du canal en fonction de l'épaisseur de celui-ci. La réflexion est importante pour $H <$30 μm et négligeable pour $H >$150-200 μm . Adapté de [23]

.

Remarques :

- dans ce travail l'épaisseur des puces microfluidiques étant de 14 μm nous prendrons $p = 1$ dans le modèle optique déterminant l'intensité théorique réfléchie par le canal.
- Lors de la fabrication de la puce microfluidique, la couche de PDMS séparant le plafond de la cavité de Hele-Shaw de la lamelle de verre supérieure doit avoir une épaisseur supérieure à 200 μm afin d'éviter la prise en compte d'une deuxième réflexion à l'interface PDMS/verre.

3.4.4 Modification du modèle optique pour des gouttes rapides

La méthode expérimentale de détermination de l'épaisseur du film de lubrification consiste à mesurer l'intensité réfléchie, puis à déduire l'épaisseur à partir d'un modèle optique ayant

comme paramètres d'entrée : la longueur d'onde de la lumière monochromatique incidente, donnée par la valeur de la longueur d'onde au centre de la bande passante du filtre, les indices de réfraction des différents milieux à cette longueur d'onde et le demi-angle au sommet du cône d'illumination [23]. Dans les faits, le modèle optique établit la courbe du contraste théorique $c_{\text{th}} = \frac{I_{\text{th}} - I_{\text{ref1}}}{I_{\text{ref2}} - I_{\text{ref1}}}$ en fonction de l'épaisseur du film, où les I_{ref} sont des intensités réfléchies par des interfaces de référence (par exemple verre/eau et verre/PDMS). Ensuite, on détermine un contraste expérimental par la mesure des intensités réfléchies par le canal et les références, que l'on compare à la courbe en Fig. 3.7.a pour en déduire l'épaisseur.

Dans le cadre de cette étude, on veut mesurer l'épaisseur du film de lubrification de gouttes peu visqueuses $\lambda = 0.26$ qui se déplacent plus rapidement (U_d =2300-14700 μm) que dans le cas $\lambda = 25$ (U_d =50-5000 μm) décrit dans [35, 23]. Pour des vitesses importantes, l'obtention d'images nettes suppose de diminuer le temps d'exposition et donc le signal reçu par la caméra. La caméra utilisée étant rapide mais peu sensible (Photron FastcamSA4), nous avons dû changer le filtre monochromatique par un filtre RGB de bande passante plus large pour collecter plus de signal. La lumière incidente est alors une superposition de rayonnements de différentes longueurs d'onde dont l'intensité relative est donnée par la convolution du spectre d'émission de la lampe (X-cite 120 Q, Exfo) et du spectre de transmission du filtre RGB (Fig 3.7.b). Dans le modèle optique, on fait alors la somme incohérente sur chaque longueur d'onde de la lumière incidente, en tenant compte des intensités relatives et des indices de réfraction de chaque milieu aux longueurs d'onde correspondantes. Les valeurs des indices de réfraction ont par ailleurs été mesurées par ellipsométrie par Dr. Michel Stchakovsky de la société HORIBA Scientific que je tiens à remerçier.

Il convient de remarquer que le fait d'utiliser un filtre RGB plutôt que le filtre monochromatique (λ=546$\pm$ 12 nm) correspondant à la lame quart-d'onde (λ =546) est susceptible de fausser la mesure de l'épaisseur du film, étant donné que le modèle optique ne tient pas compte de la modification de l'intensité relative ayant lieu entre l'entrée et la sortie de l'analyseur pour chaque raie différente de λ =546 nm. Pour nous assurer que ce n'est pas le cas, nous avons imagé le ménisque d'une même goutte (Fig. 3.7.c) avec les deux filtres. On remarque qu'au niveau du ménisque les franges d'interférence sont nombreuses du fait de la forte pente de l'interface. On relève le profil d'intensité le long d'un segment (flèche rouge de la Fig. 3.7.c) où le niveau de gris varie de façon monotone ce qui implique qu'on reste sur une même branche d'interférence de la Fig. 3.7.a, en l'occurence la première. La comparaison des profils d'épaisseur de film déterminés avec chacun des deux modèles optiques montre qu'on obtient la même épaisseur de film dans les deux cas (Fig. 3.7.d), ce qui valide le modèle optique correspondant au filtre RGB.

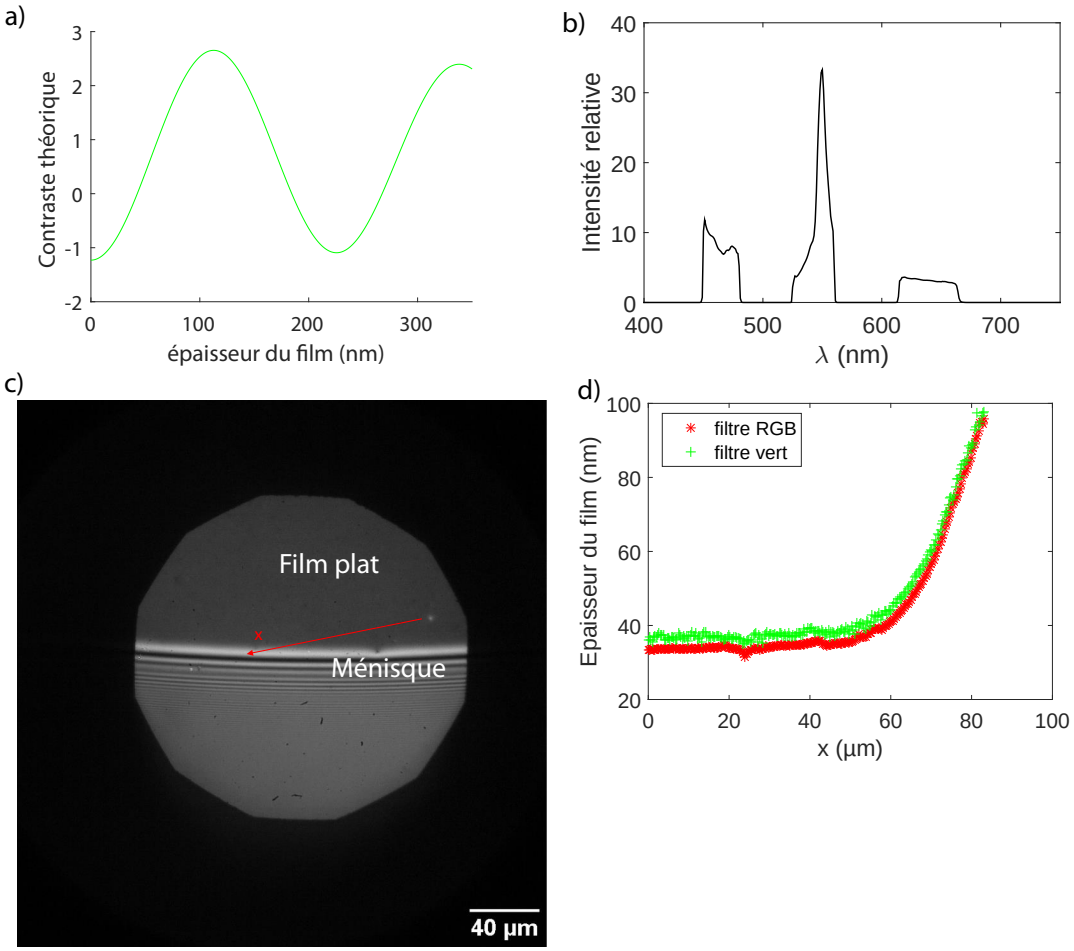

FIGURE 3.7: **(a)** Courbe typique du contraste théorique c_{th} en fonction de l'épaisseur du film donnée par le modèle optique ;**(b)** Spectre de la lumière incidente correspondant à la convolution du spectre d'émission de la lampe avec le spectre de transmission du filtre RGB ; **(c)** Image d'une goutte d'hexadécane dans une solution aqueuse de SDS. La région où les franges d'interférence sont nombreuses correspond au ménisque. Les profils d'épaisseur sont tracés le long du trait rouge ; **(d)** Profils d'épaisseur le long du trait rouge de la Fig. 3.7.c, pour les filtres vert et RGB

Synthèse - Chapitre 3

- Utilisation de la microfluidique digitale
  1. Trains de gouttes monodisperses réguliers
  2. Obtention de faibles nombres capillaires $Ca \leq 10^{-3}$
- Technique de microscopie interférentielle (RICM) pour la mesure d'épaisseur de film de lubrification
  1. Permet de mesurer l'épaisseur du film localement (à 5 nm près) et de reconstruire l'intégralité de la topographie de l'interface
  2. Un modèle optique établit la courbe théorique de l'intensité réfléchie en fonction de l'épaisseur du film. Les paramètres d'entrée du modèle sont la longueur d'onde du rayonnement incident et les indices de réfraction des différents milieux. La comparaison de l'intensité mesurée expérimentalement à cette courbe permet de déduire l'épaisseur du film.
  3. Ce modèle tient compte de la réflexion au plafond du canal microfluidique.
  4. Ce modèle est modifié lorsqu'un filtre RGB plutôt qu'un filtre monochromatique (*i.e.* augmentation du signal collecté) est utilisé pour imager des gouttes rapides.

Chapitre 4

Topographie du film de lubrification d'une goutte en géométrie de Hele-Shaw : expérience et théorie

Ce chapitre a pour but de décrire expérimentalement la topographie du film de lubrification se développant lorsqu'une goutte pancake non mouillante de rayon R se déplace dans une cellule de Hele-Shaw d'épaisseur $2H_o$. Les mesures par RICM ont été effectuées dans deux cas limites correspondant à un rapport de viscosité très petit ($\lambda < 1$) et très grand $\lambda = 1000$. Ces résultats expérimentaux seront comparés au modèle de Burgess & Foster pour $\lambda < 1$ et au modèle établi en sous-section 2.2.4 du chapitre 2 dans le cas de gouttes très visqueuses, pour $\lambda = 1000$.

Par ailleurs, il sera montré expérimentalement dans la dernière section que les tensioactifs peuvent fortement modifier l'épaisseur du film de lubrification, jusqu'à générer une épaisseur de type *sliding* alors que le rapport de viscosité vérifie $\lambda < 1$

4.1 Mesure de la topographie du film pour une goutte très peu visqueuse $\lambda < 1$

La puce microfluidique ainsi que la technique de microscopie (*i.e.* RICM) employées pour mesurer la topographie du film pour une goutte se déplaçant dans une cellule de Hele-Shaw sont décrites au chapitre 3. Pour obtenir un faible rapport de viscosité, la phase interne de la goutte est constituée d'huile fluorée C_6F_{14} (3M Fluorinert FC-72) de viscosité $\eta_i = 0.64$ mPa.s. La phase externe est une solution aqueuse de C_{10}TAB (Sigma-Aldrich) à une concentration

de c =990 mM, et de NaCl à une concentration c_{sel} =1 M. L'ajout d'une quantité importante de sel permet d'écranter les interactions électrostatiques pouvant avoir lieu entre l'interface et la paroi. La viscosité de la phase externe a été mesurée au rhéomètre (Anton Paar MCR 302) et vaut η_o =2.5 mPa.s. La tension superficielle entre les deux phases a été mesurée au tensiomètre (KRUSS DSA30) et vaut γ =15 mN/m.

La gamme de vitesses de goutte U_d explorée est 2300-14700 μm/s, ce qui correspond à une gamme en nombre capillaire $Ca = \eta_o U_d/\gamma$ de 3.9×10^{-4} à 2.4×10^{-4}. Les films sont pris avec une caméra rapide (Photron) et un objectif Zeiss Neofluar 63/1.25 antiflex à une fréquence d'acquisition de 250 Hz. La résolution d'un pixel est δ_{pix} =0.67 μm. Une image obtenue par RICM d'une goutte se déplacant de la gauche vers la droite est présentée en Fig. 4.1.a. On observe des niveaux de gris contrastés au sein du film de lubrification, tandis qu'au sein du ménisque statique ceux-ci sont uniformes : cette transition nette fournit une définition expérimentale de la frontière entre le film de lubrification de rayon $(R - H_o)$ et le ménisque statique, d'extension radiale H_o, non-résolu par RICM. Toutes les mesures présentent un film de lubrification de rayon $(R - H_o)$=91 $\pm$ 6 μm. L'épaisseur du film est déterminée avec une importante précision, jusqu'à 4 nm près, à partir de l'image RICM, en utilisant la relation liant l'intensité lumineuse et l'épaisseur du film donnée par la Fig. 4.1.c. On voit sur la Fig. 4.1.c qu'une différence d'épaisseur du film de 100 nm correspond à une demi-oscillation de l'intensité. Par conséquent, si la hauteur de l'interface varie de plus de 100 nm sur un pixel, le signal est moyenné, donc perdu. C'est cet effet qui se produit à l'extérieur du disque central de la Fig. 4.1.a où un niveau de gris moyen est mesuré. La zone grisée sur la Fig. 4.1.b indique la partie de l'interface dont on peut mesurer l'épaisseur.

4.1.1 Analyse préliminaire de la forme de l'interface

4.1.1.1 Division du film de lubrification en régions

A première vue, le contour du film de lubrification est presque circulaire, avec une variation relative de son rayon de l'ordre $\delta(R - H_o)/(R - H_o) \simeq \delta R/R \sim 3\%$, et avec une courbure légèrement plus faible à l'arrière qu'à l'avant. L'ordre de grandeur de la variation de pression de Laplace correspondante est $\gamma\delta R/R^2 \sim 5$ Pa. Cette valeur est cohérente avec la différence de pression responsable de la déformation de la goutte, $(\eta_o - \eta_i)U_d R/H_o^2 \sim 18$ Pa. Dans la suite, nous négligerons cette déformation : nous supposerons que l'interface latérale de la goutte préserve sa forme d'équilibre, avec une courbure proche de $1/H_o$, et que le film de lubrification est un disque de rayon $(R - H_o)$.

La topographie du film, déduite de l'image RICM de la Fig. 4.1.a est tracée sur la Fig. 4.1.d. Elle présente une forme complexe, avec une bosse à l'arrière et deux creux sur les côtés de la goutte, donnant à la topographie une forme de catamaran [23]. Afin de comprendre la complexité de cette forme, le film est décomposé en quatre régions (voir Fig. 4.2) analysées indépendamment : i) la région centrale, ii) le ménisque dynamique avant, iii) le ménisque

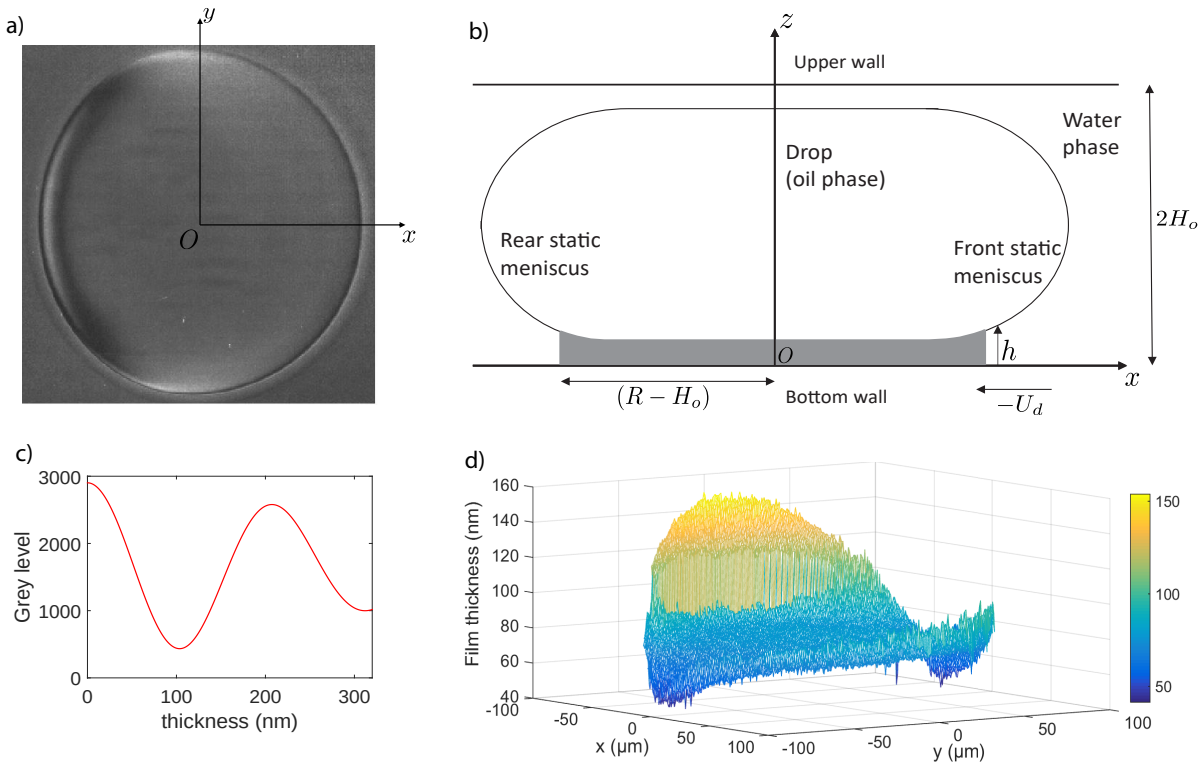

FIGURE 4.1: **(a)** Image RICM d'une goutte de C_6F_{14} se déplaçant dans une cellule de Hele-Shaw remplie d'une solution aqueuse de C_{10}TAB et NaCl, dans la direction x. Le diamètre de la goutte sur l'image est $2(R - H_o)$=170 μm et $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$; **(b)** Vue en coupe de la goutte dans le plan (Oxz). La zone grisée indique le domaine de l'interface dont on peut mesurer l'épaisseur avec le dispositif expérimental ; **(c)** Dépendance théorique de l'intensité réfléchie en fonction de l'épaisseur du film déterminée par le modèle optique détaillé dans [23] ; **(d)** Topographie expérimentale du film de lubrification correspondant à l'image **(a)**

dynamique arrière et iv) le ménisque dynamique latéral.

Pour rappel, la forme du film est décrite dans le référentiel de la goutte $(O, \mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z)$. L'origine O est située dans le plan de la paroi inférieure du canal, au centre du film, le plan (x, y) est le plan de la paroi inférieure, avec $-x$ le sens dans lequel la paroi se déplace et z la direction normale à la paroi orientée de la paroi inférieure vers le fluide. On utilise les coordonées polaires (ρ, θ, z), avec l'axe polaire dans la direction x. L'épaisseur du film, localisé entre la paroi inférieure et l'interface liquide/liquide est appelé $h(x, y)$.

4.1.2 Ménisque avant et région centrale

4.1.2.1 Profils longitudinaux

Des profils du film sont dans un premier lieu tracés en fonction de x pour différentes valeurs de y en Fig. 4.3. Loin des ménisques avant et arrière, l'épaisseur du film est indépendante de

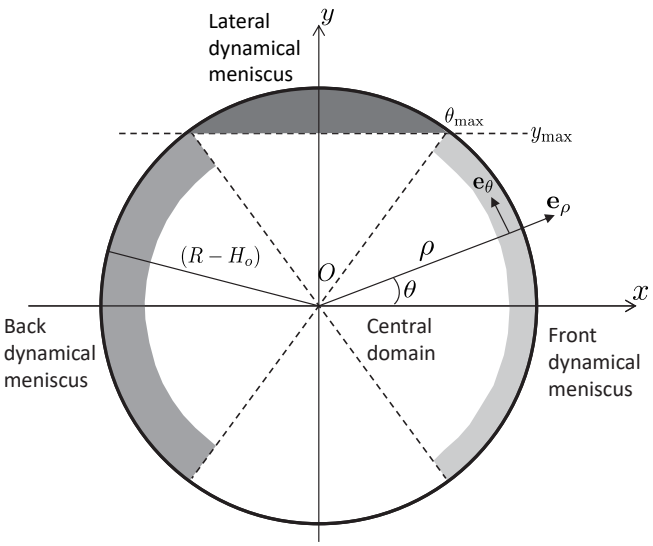

FIGURE 4.2: Définition des différents domaines du film de lubrification indiqués par des teintes de gris différentes. Le disque de rayon $(R - H_o)$ est le domaine où $h(x, y)$ peut être mesurée. Il est divisé en quatre régions : les ménisques dynamique avant/arrière, les ménisques latéraux et la région centrale

x, et on appelle $h_\infty(y)$ cette valeur constante. Cette dernière peut être définie sans ambiguité pour $|y| < y_{\max} = (R - H_o)\sin(\theta_{\max})$ (voir Fig. 4.2). Pour tous les Ca, cet angle vaut $\theta_{\max} = 6\pi/16$, et cette valeur sert à définir la frontière entre le ménisque avant et le ménisque latéral (Fig. 4.2). Cette convention nous donne $y_{\max} = 0.92(R - H_o)$. La région du film où $h(x, y) = h_\infty(y)$ est nommée la région centrale. On constate que l'indépendance de l'épaisseur du film par rapport à x dans la région centrale, prédite par Burgess & Foster (cf. sous-section 1.4.2 du chapitre 1) est en accord avec nos observations expérimentales.

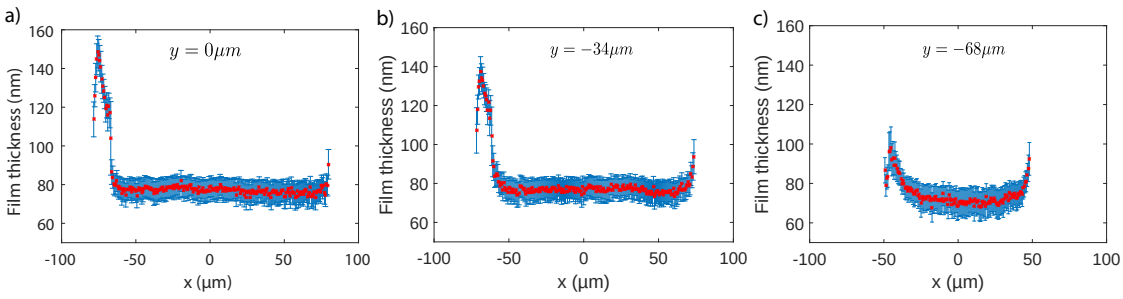

FIGURE 4.3: Epaisseur du film $h(x, y)$ en fonction de x pour **(a)** y =0 μm , **(b)** y =-34 μm (*i.e.* $|y| = 0.4\,[R - H_o]$) et **(c)** y =-68 μm (*i.e.* $|y| = 0.8\,[R - H_o]$) . Le nombre capillaire est $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$

4.1.2.2 Profils longitudinaux dans le plan $(y = 0)$

Un zoom sur le profil de l'interface à proximité du ménisque avant est présenté en Fig. 4.4 dans le plan $y = 0$, pour deux nombres capillaires et indique un accroissement de l'épaisseur du film avec Ca. En comparant ces profils expérimentaux avec la solution numérique de l'équation de Bretherton (1.20), raccordée à un ménisque de courbure $1/H_o$, on constate un accord quantitatif. De même, on voit sur la Fig. 4.4.c que $h_\infty(y = 0)$ est égale à l'épaisseur h^{Breth} donnée par l'équation (1.21), pour toute la gamme de nombres capillaires explorée.

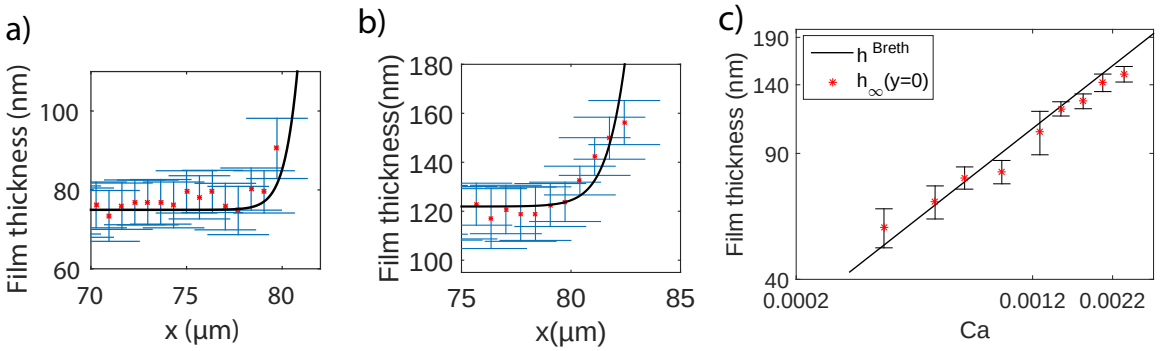

FIGURE 4.4: Epaisseur du film $h(x, y)$ en fonction de x dans le plan $y = 0$ pour **(a)** $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$ **(b)** $Ca = 1.5 \times 10^{-3}$ à proximité du ménisque avant. La ligne en trait plein est le profil théorique de Bretherton donné par l'équation (1.20) ; **(c)** Variation de $h_\infty(y = 0)$ avec Ca. La ligne en trait plein est $h^{\text{Breth}} = 1.337 H_o Ca^{2/3}$

Cet accord montre que les corrections provenant de contributions d'effets additionnels, non considérés dans l'analyse théorique de Bretherton, ne modifient pas le profil de façon significative. Les contributions additionnelles susceptibles d'engendrer un écart par rapport à la théorie de Bretherton sont discutées dans la suite de cette sous-section.

Parmi les divers paramètres pouvant influencer le profil du film, on peut d'abord citer l'effet de la viscosité de la phase interne, dont on a vu en sous-section 2.2.3 du chapitre 2 qu'il était théoriquement négligeable pour des rapports de viscosité λ vérifiant $\lambda \ll \left(\frac{h_f(0)}{H_o}\right)^{-1/2} \sim Ca^{-1/3}$. Dans notre situation expérimentale, $\lambda = 0.256$ et $Ca^{-1/3} = 7$ pour la goutte la plus rapide, par conséquent, l'équation de Bretherton (1.20) est théoriquement valide.

Les interactions de courte portée entre interfaces modifient aussi l'épaisseur du film déposé [35], et le bon accord entre nos données expérimentales et le modèle de Bretherton implique que la pression de disjonction dans le film est négligeable. Ceci est cohérent avec le fait que la longueur de Debye[1] λ_d =0.2 nm est bien inférieure aux épaisseurs de film mesurées. Ce

1. Dans le cas d'une surface chargée au contact d'un électrolyte, la longueur de Debye est l'échelle de longueur sur laquelle les charges en solution écrantent le champ électrostatique généré par la surface chargée. Son expression est [36] $\lambda_d = \left(\frac{\epsilon_r \epsilon_o k_B T}{\sum_{j=1}^{N} n_j q_j^2}\right)^{1/2}$ où ϵ_o est la permittivité diélectrique du vide, ϵ_r la permittivité

bon accord implique aussi que la tension superficielle n'est pas modifiée de façon significative par l'écoulement à l'avant de la goutte. En effet, la viscosité et l'élasticité d'interface peuvent induire un épaississement du film (cf. chapitre 1) susceptible de modifier la prédiction de Bretherton d'un facteur allant jusqu'à $4^{2/3}$ [37, 16, 38, 31, 39]. L'absence d'influence des tensioactifs sur l'épaisseur du film avait déja été mise en évidence avec la même solution (sans NaCl), dans la même gamme de nombres capillaires, mais à plus grande échelle ($H_o \sim 2$ mm) dans [31]. Pour résumer, étant donné que l'épaisseur expérimentale le long de l'axe x est constante dans le film plat, et donnée par le profil de Bretherton dans le film plat et le ménisque dynamique avant, la tension superficielle peut être considérée comme constante dans cette région de l'interface.

4.1.2.3 Profils transversaux

La Fig. 4.5 présente les variations de l'épaisseur du film $h(0, y)$ en fonction de y pour quatre nombres capillaires. Par définition, pour $|y| < y_{\max}$, $h(0, y) = h_\infty(y)$. Dans cette région, $h_\infty(y)$ est maximale en $y = 0$ et décroît doucement lorsque $|y|$ croît. Puis, pour $|y| > y_{\max}$, l'épaisseur décroît avec une pente plus raide que pour $|y| < y_{\max}$, et ensuite croît à proximité du ménisque latéral. Ceci correspond à ce que l'on appelle les creux latéraux, discutés dans la sous-section 4.1.4.

Les variations de h_∞ avec la position transverse y sont comparées à la prédiction de Burgess & Foster, $h^{\mathrm{BF,c}} = 1.337 H_o Ca^{2/3} \left[1 - \frac{y^2}{(R-H_o)^2}\right]^{1/3}$ (cf. éq (1.23)) en Fig. 4.5, pour $|y| < y_{\max}$. Le profil tranversal expérimental présente une forme de voûte, avec une décroissance de l'épaisseur du film sur les côtés de la goutte comme prédit par la théorie, cependant la décroissance est surestimée par $h^{\mathrm{BF,c}}$. Il est peu probable que la pression de disjonction soit à l'origine de l'épaississement du film sur les côtés de la goutte puisque celle-ci induirait une saturation de l'épaisseur du film à une valeur donnée (voir Fig. 1.12 du chapitre 1) à mesure que $|\theta|$ augmente, quel que soit Ca. Or ce n'est pas ce qu'on observe expérimentalement (voir Fig. 4.5).

4.1.3 Ménisque dynamique arrière

4.1.3.1 Caractérisation expérimentale de l'oscillation arrière du film

On se concentre à présent sur la partie arrière du film de lubrification. Comme montrée sur la Fig. 4.6, la transition entre la région centrale du film et le ménisque statique arrière est caractérisée par une variation complexe non-monotone de l'épaisseur du film, contrastant avec le comportement régulier à l'avant de la goutte. La détermination de l'épaisseur du film dans cette région est délicate et est discutée en Annexe G.

reltive du milieu, k_B la constante de Boltzmann, T la température, n_j la densité ionique de l'ion j et q^j la charge de l'ion j.

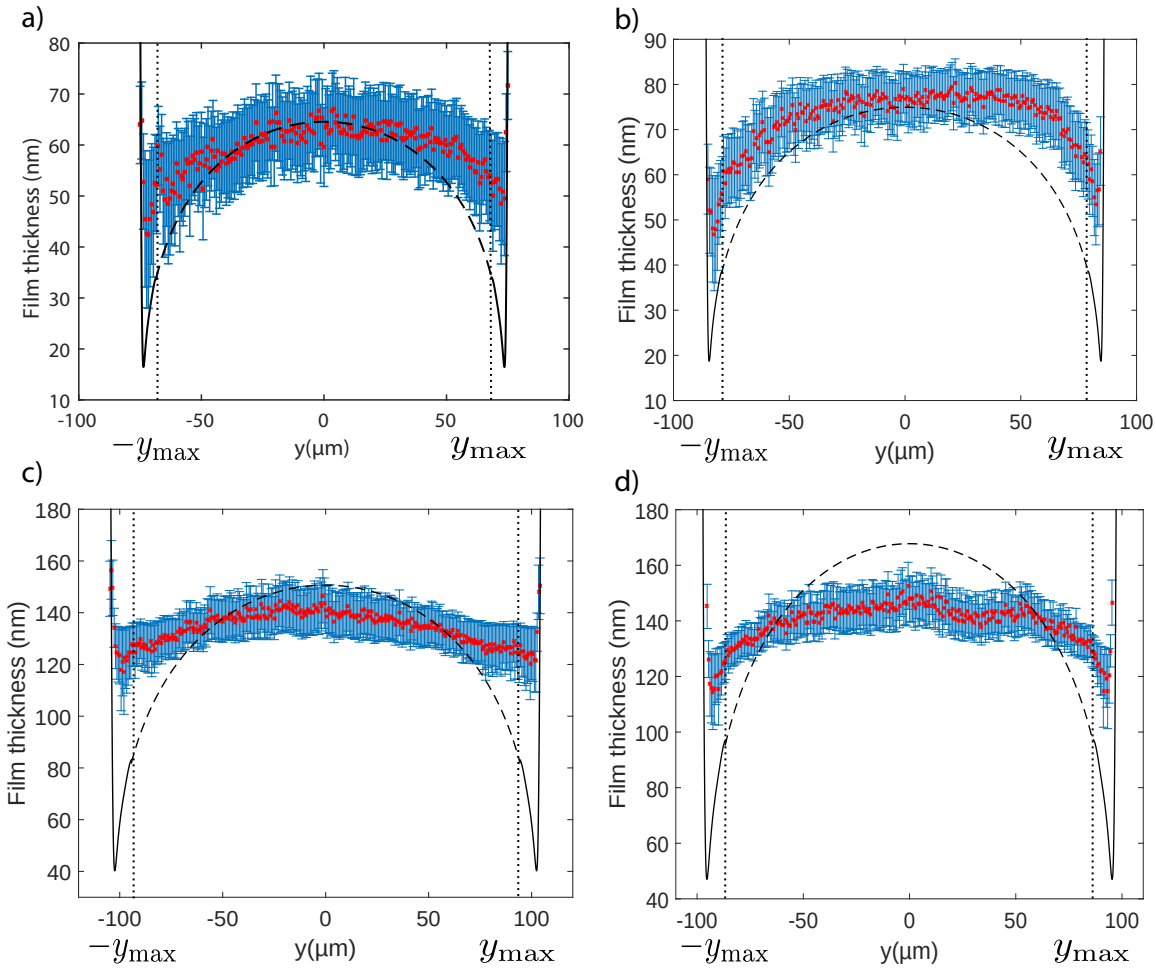

FIGURE 4.5: Profils du film selon l'axe y dans le plan $(x = 0)$ pour **(a)** $Ca = 5.7 \times 10^{-4}$, **(b)** $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$, **(c)** $Ca = 2 \times 10^{-3}$ et **(d)** $Ca = 2.4 \times 10^{-3}$. La ligne en tiret est $h^{\mathrm{BF,c}} = 1.337 H_o Ca^{2/3} \left[1 - \frac{y^2}{(R-H_o)^2}\right]^{1/3}$ donnée par (1.23). La ligne continue est la solution de l'éq. (2.24). La ligne pointillée indique $y_{\max}$.

En s'approchant du ménisque arrière à partir de la région centrale le long de l'axe x, l'épaisseur du film croît dans un premier temps, atteint une valeur maximale (appelée $h_{\max}$ dans la suite), décroît et ensuite diverge à l'approche du ménisque arrière. L'épaisseur minimale située entre la bosse d'épaisseur $h_{\max}$ et le ménisque arrière n'est pas résolue sur toutes les images, et par conséquent sa valeur en fonction du nombre capillaire n'est pas présentée dans cette étude. En effet, au voisinage de ce minimum local, la variation de l'épaisseur du film est tellement rapide qu'un niveau de gris moyenné est obtenu sur l'image. Par conséquent, la position de ce minimum local est résolue dans le plan (xy), mais l'épaisseur du film à son voisinage n'est pas résolue au sein d'un pixel. Sur les graphes en Fig. 4.6, le ménisque non

résolu est symbolisé par une zone grise.

Etant donné que le profil de Bretherton (solution de l'équation (1.20)) reproduit nos données expérimentales dans le ménisque avant (voir Fig. 4.4.a et .b), nous comparons dans un premier temps les profils expérimentaux à la solution de Bretherton dans le ménisque dynamique arrière (*i.e.* la solution de l'équation (1.20) correspondant à une condition de contrainte visqueuse nulle à l'interface, obtenue en imposant au sein de l'axe des x négatifs une courbure $1/H_o$ aux petits x et un film plat d'épaisseur h^{Breth} aux grands x). Etonnamment, on voit que l'écart entre le profil théorique de Bretherton et le profil expérimental dans le ménisque arrière est très important (voir Fig. 4.6.a.b.c). On observe un épaississement notable du film de lubrification lorsqu'on s'approche du ménisque arrière : en particulier, la variation relative d'épaisseur entre la bosse et le film plat $\frac{h_{\max}-h_\infty(y=0)}{h_\infty(y=0)}$ est d'un ordre de grandeur plus grande dans notre expérience que dans la prédiction de Bretherton. En effet, le rapport $h_{\max}/h_\infty(y=0)$ est tracé en Fig. 4.7.b : nous mesurons $h_{\max}/h_\infty(y=0) \simeq 1.7$ pour toute la gamme de nombres capillaires, alors que la prédiction de Bretherton pour une interface *stress-free* est $h^{\mathrm{Breth}}_{\max}/h^{\mathrm{Breth}} = 1.064$. Ainsi, en faisant toujours les mêmes hypothèses, on obtient un accord quantitatif avec la théorie de Bretherton au niveau du ménisque avant et un clair désaccord au niveau du ménisque arrière.

Comme dans la région du ménisque avant, le système est quasiment invariant dans la direction y à proximité de l'axe x, et la dynamique dans le ménisque arrière le long de cet axe peut être décrite par un modèle 2D. Dans ce cadre, un écart par rapport à la solution de Bretherton est la signature de variations de tension interfaciale. Ces variations peuvent en principe être déterminées à partir du profil expérimental à l'aide de deux équations :

– l'équation générale du film (2.13) prise en $\theta = \pi$. En l'intégrant entre un point du ménisque dynamique et un point du film plat d'épaisseur $h_\infty(y=0)$, on obtient

$$-\gamma\frac{\partial^3 h}{\partial x^3} = \frac{6\eta_o}{h^3}\Big(h\left[u_s - U_d\right] - h_\infty(y=0)\left[u_s^0 - U_d\right]\Big) \tag{4.1}$$

où $u_s(x)\,\mathbf{e}_x = U_{III_\rho}(\theta=\pi)\,\mathbf{e}_\rho(\theta=\pi)$ est la vitesse interfaciale le long de l'axe x négatif et prend la valeur $u_s(0)\mathbf{e}_x = u_s^0\,\mathbf{e}_x = U_{I_\rho}(\theta=\pi)\,\mathbf{e}_\rho(\theta=\pi)$ dans le film plat.
Cette équation permet de déduire la vitesse interfaciale dans la région III, $u_s(x)$ si l'on connait la vitesse interfaciale dans la région I, u_s^0, et le profil expérimental.

– l'équation de Marangoni provenant de la condition de continuité des contraintes tangentielles à l'interface :

$$\frac{\partial\delta\gamma}{\partial x} = \eta_o\frac{\partial u_o}{\partial z}(z=h) \tag{4.2}$$

où $\delta\gamma$ est la variation de tension interfaciale par rapport à sa valeur de référence γ. Connaissant la vitesse interfaciale $u_s(x)$ et le profil, on voit que les équations (2.12) et (4.2) permettent alors de remonter au profil de tension interfaciale

Remarque

Les équations (4.1) et (4.2) sont valides tant que $\delta\gamma \ll \gamma$ et que $\eta_i \frac{\partial u_i}{\partial z}$ est négligeable (u_i est la composante suivant x du champ des vitesses interne)

Dans notre cas, la détermination de la dérivée troisième de l'épaisseur du film par rapport à x (intervenant dans l'éq. (4.1)) à partir du profil expérimental n'est pas envisageable et une approximation supplémentaire a été faite pour interpréter les profils expérimentaux à l'arrière de la goutte. Le ménisque arrière est donc artificiellement décomposé en deux parties : une région d'épaississement, située entre le film plat et le maximum de la bosse et une région d'oscillation, entre le maximum de la bosse et le ménisque statique arrière (Fig. 4.6.e). Les deux régions sont analysées dans la sous-section suivante.

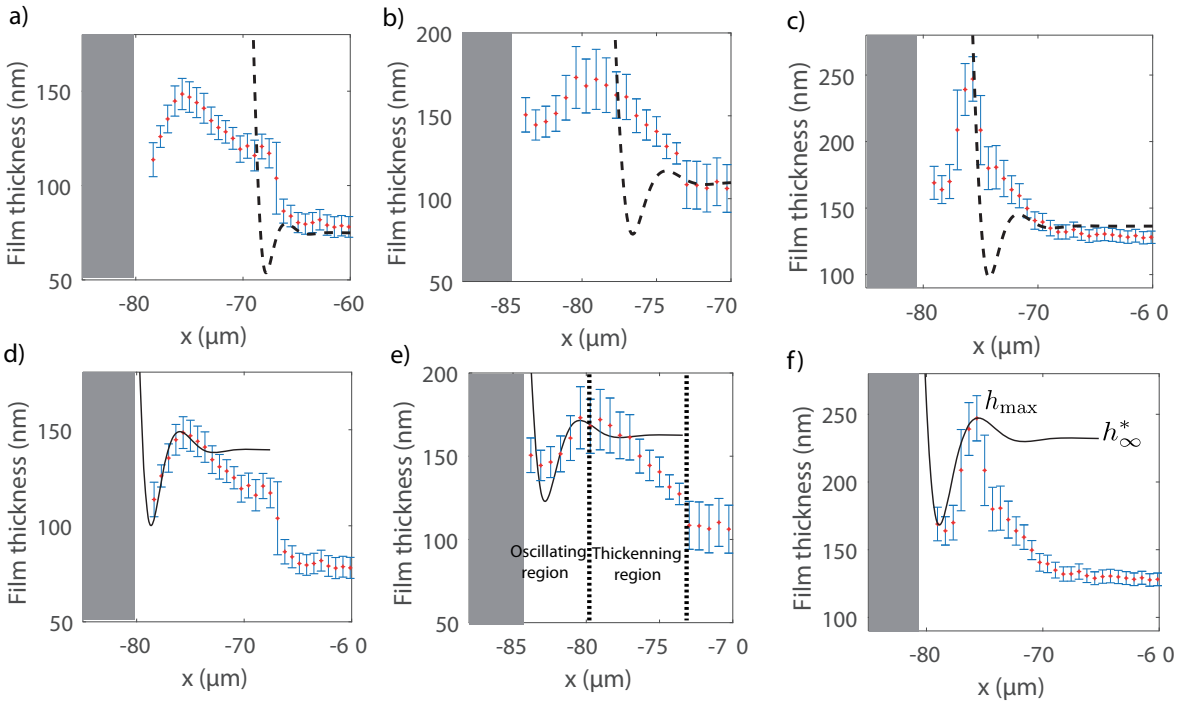

FIGURE 4.6: Oscillation dans le ménisque arrière. Profils longitudinaux d'épaisseur du film dans le plan (y=0) à proximité du ménisque arrière pour trois nombres capillaires croissants :**(a,d)** $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$, **(b,e)** $Ca = 1.3 \times 10^{-3}$, **(c,f)** $Ca = 1.8 \times 10^{-3}$. L'épaisseur du film aux grands x est $h_\infty(0)$ et on appelle $h_{\max}$ le maximum local. La ligne en tirets **(a,b,c)** est la prédiction de Bretherton (cf. éq. (1.20)). La ligne continue **(d,e,f)** est la prédiction théorique donnée par l'équation (4.1), avec $u_s^{\max} = U_d\left(1 - \frac{2h_\infty(0)}{h_{\max}}\right)$. En **(e)**, les lignes en pointillés délimitent les régions d'épaississement et d'oscillation.

4.1.3.2 Région d'épaississement du ménisque arrière

On se concentre premièrement sur la région d'épaississement. Deux causes peuvent générer un tel épaississement du film : la pression de Laplace, conduisant à une bosse d'épaisseur

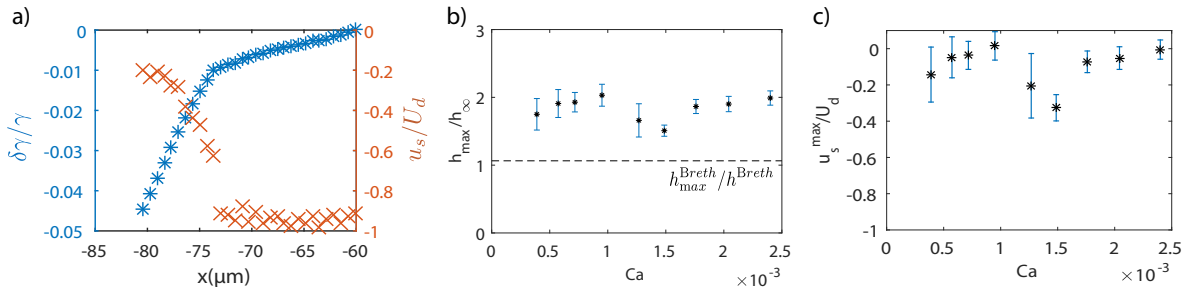

FIGURE 4.7: **(a)** Tension et vitesse interfaciales entre le film plat et le sommet de la bosse (*i.e.* région d'épaississement), déduites du profil d'épaisseur expérimental de la Fig. 4.6.b ($Ca = 1.3 \times 10^{-3}$), et des équations (4.3) et (4.4) ; **(b)** $h_{\max}/h_\infty$ en fonction de Ca. La ligne en tirets est $h_{\max}^{\text{Breth}}/h^{\text{Breth}}$ =1.064 ; **(c)** $u_s^{\max}/U_d$ en fonction de Ca

$h_{\max}^{\text{Breth}}$, ou une modification de la vitesse interfaciale induite par une inhomogénéité de la tension interfaciale, comme observée dans [40]. Etant donnée que la différence d'épaisseur entre la bosse et le film plat, relativement à l'épaisseur du film plat, $(h_{\max} - h_\infty(0))/h_\infty(0) \simeq 0.7$ (voire Fig. 4.7.b où $h_{\max}/h_\infty(0) \simeq 1.7$) est d'un ordre de grandeur plus importante que la prédiction de Bretherton $(h_{\max}^{\text{Breth}} - h^{\text{Breth}})/h^{\text{Breth}} = 0.064$ (voir Fig. 4.7.b où $h_{\max}^{\text{Breth}}/h^{\text{Breth}} = 1.064$), nous supposons que les variations de pression de Laplace sont négligeables dans cette région du film. L'équation (4.1) se simplifie alors en :

$$u_s(x) = U_d \left[1 - \frac{2h_\infty(y=0)}{h(x,0)}\right] \tag{4.3}$$

où on a remplacé la vitesse interfaciale dans le film plat u_s^0 par $-U_d$. Cette subsitution est justifiée par le fait qu'on retrouve un profil de Bretherton (cas *stress-free*) dans le film plat.

Le profil de vitesse interfaciale u_s, déduit de l'équation (4.3) et du profil d'épaisseur expérimentale dans la région d'épaississement est présenté en Fig. 4.7.a. Il varie de $-U_d$ dans le film plat, comme supposé dans le modèle, à une valeur maximale $u_s^{\max}$ dans la gamme $[-0.3, -0.1]U_d$ (Fig. 4.7.c). Ceci implique que l'interface oppose une résistance à l'entraînement visqueux de la paroi inférieure et adopte une vitesse proche de celle de la goutte (égale à 0 dans le référentiel de la goutte). Par conséquent, la phase liquide dans la région d'épaississement du film est fortement cisaillée. C'est ce cisaillement qui conduit à l'épaississement du film dans cette région.

Comme les variations de pression de Laplace sont négligeables dans cette région (*i.e.* écoulement de Couette), le champ des vitesses varie linéairement de $-U_d$ au niveau de la paroi inférieure à $u_s(x)$ à l'interface. L'intégration de l'équation de Marangoni (4.2) entre le film plat ($x_{\min}$ =-60 μm) et x donne

$$\delta\gamma(x) = \eta_o \int_{x_{\min}}^{x} \frac{u_s(a) + U_d}{h(a,0)} da \tag{4.4}$$

La variation relative de tension interfaciale $\delta\gamma(x)/\gamma$ est tracée en Fig. 4.7.a. La tension décroît entre γ =15 mN/m dans le film plat (la valeur d'équilibre de référence) et une valeur légèrement plus faible $\gamma_{\min}$ au sommet de la bosse. L'écart $\Delta\gamma = \gamma_{\min} - \gamma$ en fonction du nombre capillaire est présenté en Fig. 4.8.

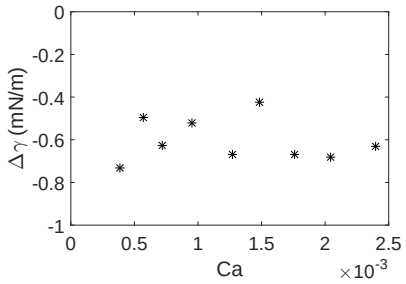

FIGURE 4.8: $\Delta\gamma = \gamma_{\min} - \gamma$ en fonction du nombre capillaire

Cette décroissance de la tension interfaciale lorsqu'on se dirige vers l'arrière de la goutte est cohérente avec la présence théorique [2, 3, 13] d'un point de stagnation convergent le long de l'axe x, au niveau du ménisque dynamique arrière (voir sous-section1.4.1.1 du chapitre 1), où les molécules tensioactives sont susceptibles de s'accumuler (voir Fig. 4.9). L'ordre de grandeur de la variation de tension superficielle est $\Delta\gamma \sim 5 \times 10^{-4}$ N/m. Malgré la petitesse de cette valeur, cette variation a des conséquences mesurables sur l'écoulement.

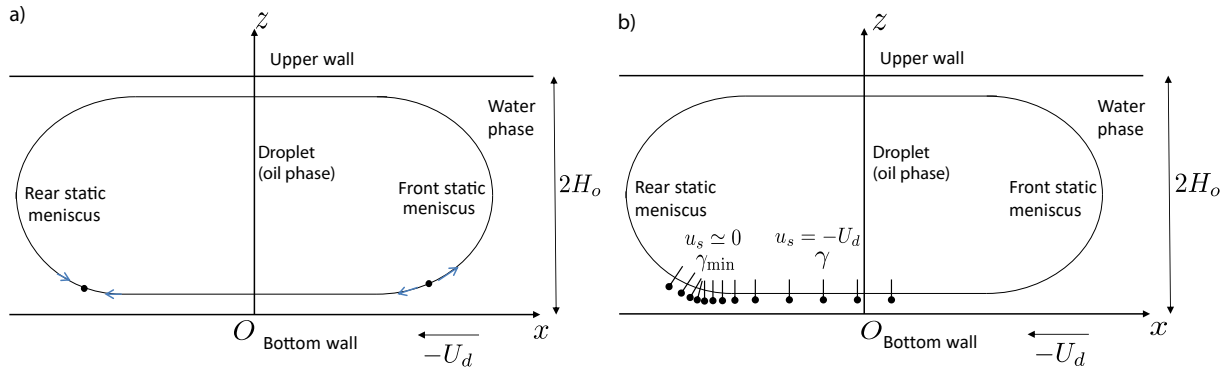

FIGURE 4.9: **(a)** Vue de la goutte dans le plan (xOz). La solution de Bretherton prédit deux points de stagnation ; un divergent dans le ménisque dynamique avant et un convergent dans le ménisque dynamique arrière ; **(b)** Description du champ interfacial de concentration en tensioactifs compatible avec la vitesse interfaciale mesurée.

4.1.3.3 Région d'oscillation du ménisque arrière

Dans la région d'oscillation, on considère que les effets dus à la pression de Laplace ainsi qu'à la présence de tensioactifs à l'interface sont d'égale importance. Dans le modèle semi-

empirique que l'on propose pour prédire le profil du film dans cette région, nous supposons que la vitesse interfaciale est uniforme et égale à $u_s^{\max}$ mesurée dans la sous-section précédente. Ceci revient à considérer que les tensioactifs empêchent toute compression ou extension de l'interface dans la région d'oscillation. L'équation (4.1) devient :

$$-\gamma \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} = \frac{6\eta_o U_d}{h^2} \left[u_s^{\max} - U_d\right] \left[h - h_\infty^*\right] \tag{4.5}$$

où $u_s^{\max} = U_d \left(1 - \frac{2h_\infty(0)}{h_{\max}}\right)$. La courbure aux petits x est $1/H_o$ et l'épaisseur du film au grand x, h_∞^*, est ajustée de façon à ce que l'épaisseur au niveau de la bosse $h_{\max}$ soit reproduite par le profil théorique, ce qui conduit à $h_\infty^* = h_{\max}/1.064$ et permet uniquement de superposer les bosses expérimentale et numérique (voir Fig. 4.6.f). Le profil théorique est donc un profil similaire au *sliding* où la vitesse interfaciale est uniforme ($u_s^{\max}$ au lieu de 0 pour le *sliding*), dans lequel l'épaisseur de la bosse vaut 1.064 fois l'épaisseur du film plat h_∞^*. En ajustant l'épaisseur théorique de la bosse $1.064h_\infty^*$ à l'épaisseur de la bosse expérimentale $h_{\max}$, on voit que le profil théorique reproduit bien l'oscillation arrière expérimentale (Fig. 4.6.d.e.f).

4.1.3.4 Processus global au sein du ménisque arrière

Cette analyse conduit aux conclusions suivantes, illustrées par la Fig. 4.9. Entraînés par la paroi, les tensioactifs s'accumulent à l'arrière de la goutte et induisent de ce fait une légère diminution de la tension interfaciale à cet endroit. Cette différence de tension interfaciale génère alors une contrainte de Marangoni qui réduit l'intensité de la compression de l'interface dans le ménisque dynamique arrière. Une conséquence de ceci est l'apparition d'une zone d'épaississement, au sein de laquelle l'interface est comprimée, à partir du film plat jusqu'à une épaisseur maximale pour laquelle la vitesse interfaciale devient quasiment nulle dans le référentiel de la goutte. Au delà de cette épaisseur maximale, on peut considérer que l'interface est incompressible de vitesse interfaciale quasi nulle. Cet effet d'épaississement du film de lubrification à l'arrière d'une bulle/goutte confinée se déplaçant dans une solution de tensioactifs a été prévu théoriquement par Park [41].

L'accumulation de tensioactifs à l'interface implique que le temps caractéristique de désorption du tensioactif de l'interface est plus important que son temps de convection dans cette zone. Contrairement à l'arrière, de l'interface est créée au point de stagnation divergent du ménisque dynamique avant. Etant donné que le temps caractéristique de convection du tensioactif a le même ordre de grandeur à l'avant et à l'arrière de la goutte, l'absence d'écart par rapport au modèle *stress-free* de Bretherton au niveau du ménisque avant conduit à la conclusion que la cinétique d'adsorption du tensioactif est plus rapide que sa cinétique de désorption.

En résumé, nous avons divisé le film en trois régions en terme de condition limite : 1) le ménisque dynamique avant et le film plat sont associés à une condition aux limites de type *stress-free* à l'interface, 2) le ménisque dynamique arrière est associé à une interface

incompressible de vitesse $u_s^{\max}$ et 3) une zone de transition, nommée région d'épaississement, de la zone *stress-free* vers la zone d'interface incompressible.

4.1.4 Ménisque latéral

4.1.4.1 Résultats expérimentaux

Afin de décrire le film dans la région latérale, plusieurs profils radiaux $h(\rho,\theta)$ sont représentés en Fig. 4.10 pour différents angles polaires. Le profil $h(\rho,\pi/2)$ est tracé en Fig. 4.5 pour différents nombres capillaires. A l'avant, pour $|\theta| < \theta_{\max} = 6\pi/16$ (voir Fig. 4.2), l'épaisseur du film $h(\rho,\theta)$ est décrite par une équation de type Bretherton (cf. (1.22)), comme cela a été discuté à la sous-section 4.1.2. Le domaine avant s'achève en $\theta_{\max}$, sans transition nette. A proximité des côtés de la goutte, pour $|\theta| > \theta_{\max}$ l'épaisseur décroît plus abruptement près du ménisque : un pincement se développe (voir Fig. 4.10). On définit l'épaisseur au pincement $h_p(\theta)$ comme la valeur minimale de $h(\rho,\theta)$ pour un θ donné dans la région latérale. Cette fonction, tracée en Fig. 4.11 pour $|\theta| \in [\theta_{\max}; \pi - \theta_{\max}]$, commence par décroître avec $|\theta|$, atteint une valeur minimale $h_{\min}$ pour un angle θ_{m} légèrement plus grand que $\pi/2$ et puis croît sous l'influence du ménisque arrière. Pour $|\theta|$ supérieur à un angle critique $\theta_{\mathrm{b}} \in [\theta_{\mathrm{m}}; \pi - \theta_{\max}]$, une bosse précède le pincement (voir Fig. 4.10.e et 4.10.f) : θ_{b} et $\pi - \theta_{\max}$ sont du même ordre et le petit intervalle $[\theta_{\mathrm{b}}; \pi - \theta_{\max}]$ représente la transition entre la région latérale et la région arrière.

Si l'on souhaite décrire formellement le ménisque latéral, il est clair qu'un modèle de Bretherton basé sur la vitesse de la paroi normale au contour de la goutte (cf. éq. (1.23)) n'est pas physique, puisqu'il conduirait à un film d'épaisseur nulle en $\theta = \pi/2$. Comme discuté dans la sous-section 1.4.2 du chapitre 1, le terme d'entraînement visqueux orthoradial, proportionnel à $U_d \sin(\theta)$, doit être considéré dans cette région.

4.1.4.2 Comparaison entre expérience et modèle

Afin de comparer l'approche théorique de Burgess & Foster avec nos résultats expérimentaux dans la région latérale, l'équation de l'interface dans cette région (éq. (2.24)) est résolue numériquement pour $-\theta'_{\max} \leq \theta' \leq \theta'_{\max}$ où $\theta'_{\max}$ =7.5 et $-18 \leq r' \leq 26$. En unités physiques, ceci correspond à la gamme de paramètre $[\theta_{\max} = \frac{6\pi}{16}, \pi - \theta_{\max} = \frac{10\pi}{16}]$ et [$\rho_{\min}$ =79 μm ; $\rho_{\max}$ =90 μm]. Un profil $h'(r', -\theta'_{\max})$ est choisi comme condition initiale et les profils $h'(r', \theta')$ pour les angles plus grands sont obtenus par une méthode numérique de Crank-Nicolson. Les conditions aux limites consistent en un raccordement à un profil de courbure constante dans le ménisque statique, $d^2h/dr^2(\rho_{\max}) = 1/H_o$ et un raccord à un film plat d'épaisseur constante, $h(\rho_{min}, \theta) = h(\rho_{min}, \theta_{max})$. Des simulations ont été effectuées en utilisant soit (i) le profil numérique donné par l'équation (2.21) en $\theta' = -\theta'_{\max}$ comme condition initiale, nommé $h^{\mathrm{num}}(\rho, \theta_{\max})$; (ii) le profil expérimental, nommé $h^{\mathrm{exp}}(\rho, \theta_{\max})$. Les deux résultats sont présentés en Fig. 4.10 et Fig. 4.11 : la ligne continue et la ligne en tirets sont

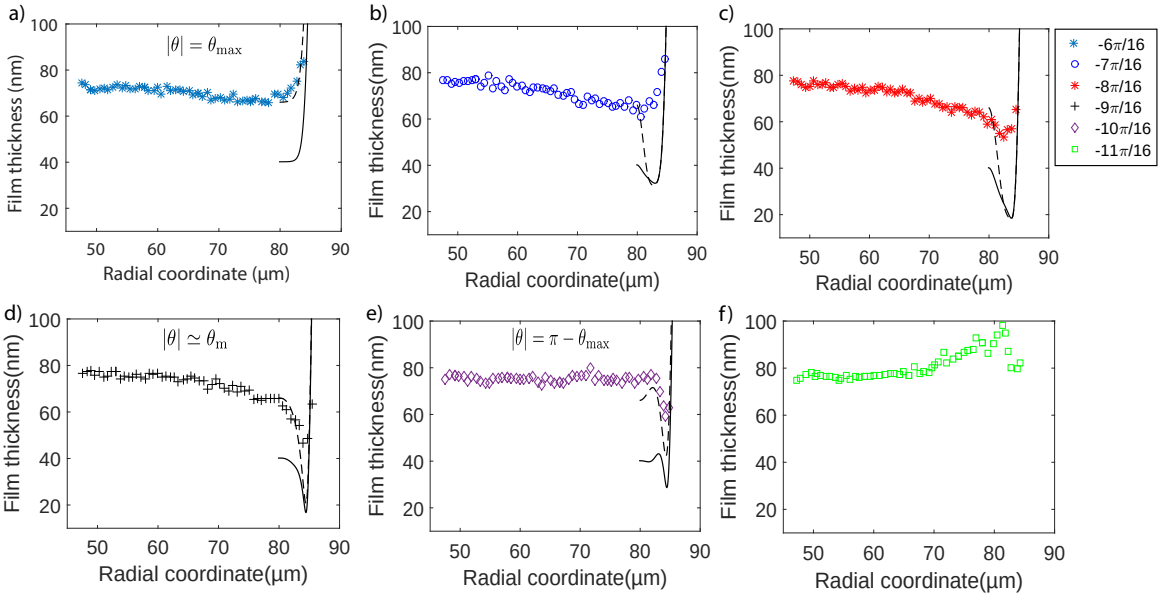

FIGURE 4.10: Profils radiaux pour **(a)** $\theta = -\frac{6\pi}{16}$, (b) $\theta = -\frac{7\pi}{16}$, (c) $\theta = -\frac{8\pi}{16}$ **(d)** $\theta = -\frac{9\pi}{16}$, **(e)** $\theta = -\frac{10\pi}{16}$ and **(f)** $\theta = -\frac{11\pi}{16}$ pour $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$. Ligne continue : solution de (2.24) en utilisant la solution de (1.22) en $\theta = \theta_{\max} = \frac{\pi}{2} - \delta'_\theta \theta'_{\max}$, $h^{\mathrm{num}}(\rho, \theta_{\max})$, comme condition initiale pour le calcul numérique. Ligne en tirets : solution de (2.24) en utilisant le profil expérimental en $\theta = \theta_{\max}$, $h^{\mathrm{exp}}(\rho, \theta_{\max})$, comme condition initiale

respectivement les solutions de l'équation (2.24) en prenant $h^{\mathrm{num}}(\rho, \theta_{\max})$ et $h^{\mathrm{exp}}(\rho, \theta_{\max})$ comme conditions initiales pour l'intégration numérique. Plusieurs caractéristiques sont qualitativement reproduites par le modèle. Un pincement se développe à partir de la condition initiale, son épaisseur décroît lentement et croît soudainement à l'approche du ménisque arrière (voir Fig. 4.11). Sa largeur caractéristique dans la direction $\mathbf{e}_\rho$ est en bon accord avec l'observation expérimentale (voir Fig. 4.10). L'angle θ_{m}, correspondant à l'épaisseur minimale du pincement (Fig. 4.10.d), ainsi que l'angle θ_{b} pour lequel la bosse apparaît (Fig. 4.10.e), sont prédits quantitativement. En revanche, on constate que quelle que soit la condition initiale $h^{\mathrm{num}}(\rho, \theta_{\max})$ ou $h^{\mathrm{exp}}(\rho, \theta_{\max})$ retenue pour l'intégration de (2.24), l'épaisseur du pincement est sous-estimée par le modèle.

Contrairement au cas $|\theta| < \theta_{\max}$, où l'équation exacte de l'interface (éq. (2.20)) est approchée par l'éq. (2.21) en négligeant le terme d'entraînement visqueux orthoradial, dans le cas $|\theta| > \theta_{\max}$, on considère tous les termes de l'éq. (2.20) et cette dernière est alors bien approchée par l'éq. (2.24) à proximité de $\theta = \pi/2$. Si dans le cas $|\theta| < \theta_{\max}$ (*i.e.* $|y| < y_{\max}$), la sous-estimation du profil expérimental par le profil théorique $h^{\mathrm{B}F,c}$ (cf. éq (1.23)) (voir Fig. 4.5) sur les cotés de la goutte pouvait être attribuée à l'approximation opérée sur l'éq. (2.20), dans le cas $|\theta| > \theta_{\max}$, le fait d'avoir un tel écart entre le pofil expérimental et la solution de l'éq. (2.24) avec $h^{\mathrm{exp}}(\rho, \theta_{\max})$ comme condition initiale, montre qu'un ingrédient physique

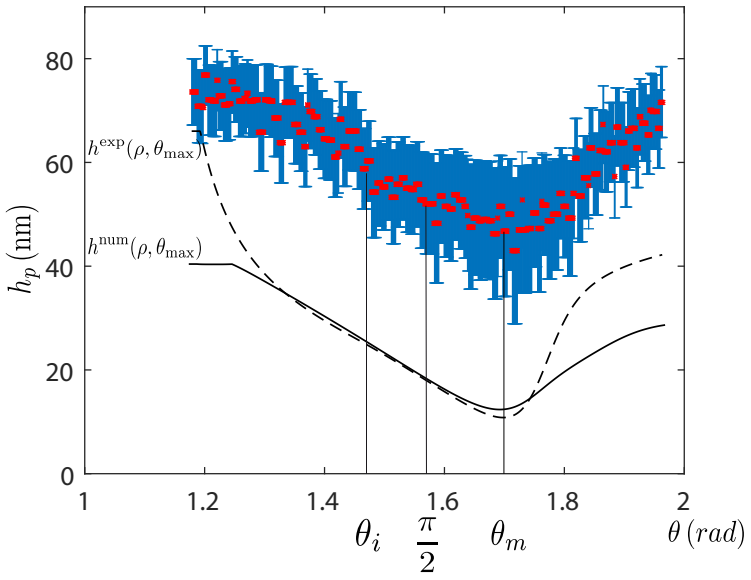

FIGURE 4.11: Epaisseur minimale au pincement $h_p(\theta)$ en fonction de θ pour $|\theta| \in [\theta_{\max}; \pi - \theta_{\max}]$ (*i.e* région latérale). Le point d'inflexion se trouve en θ_i =1.47 rad et l'épaisseur minimale, $h_{\min}$, est atteinte en θ_m =1.72 rad. Ligne continue : solution de (2.24) en utilisant la solution de (1.22) en $\theta = \theta_{\max} = \frac{\pi}{2} - \delta'_\theta \theta'_{\max}$, $h^{\text{num}}(\rho, \theta_{\max})$, comme condition initiale pour le calcul numérique. Ligne en tirets : solution de (2.24) en utilisant le profil expérimental en $\theta = \theta_{\max}$, $h^{\exp}(\rho, \theta_{\max})$, comme condition initiale

manque dans le modèle purement hydrodynamique de Burgess & Foster. Qualitativement, le pincement du film par succion capillaire, induite par le ménisque latéral, est susceptible d'être limité par une rigidification de l'interface semblable à ce qu'on observe à l'arrière de la goutte. Ainsi, les effets Marangoni sont probablement à l'origine de l'épaisseur expérimentale importante du film au niveau du pincement.

Pour finir, l'extension angulaire du ménisque dynamique latéral a été quantifiée au sein de la courbe $h_{\text{p}}(\theta)$ en Fig. 4.11, par $\Delta\theta = \theta_{\text{m}} - \theta_{\text{i}}$, où θ_{i} est l'angle pour lequel a lieu l'inversion de courbure de l'interface (voir Fig. 4.11 et 4.12.a). Les valeurs expérimentales et numériques de $\Delta\theta$ sont tracées en Fig. 4.12.b en fonction du nombre capillaire. Le même ordre de grandeur est retrouvé, mais aucune conclusion ne peut être apportée quant à l'évolution avec Ca. L'épaisseur minimale du film dans la région latérale, $h_{\min}$, ne semble pas varier selon la loi en $Ca^{4/5}$ du modèle (voir Fig. 4.12.c) et le modèle sous-estime les données expérimentales sur toute la gamme de nombres capillaires soulignant probablement la présence d'un mécanisme physique additionnel non pris en compte dans le modèle.

En résumé, le modèle purement hydrodynamique de Burgess & Foster parvient à reproduire qualitativement les principales caractéristiques de la topographie expérimentale : épaississement du film de lubrification et développement de creux sur les côtés de la goutte,

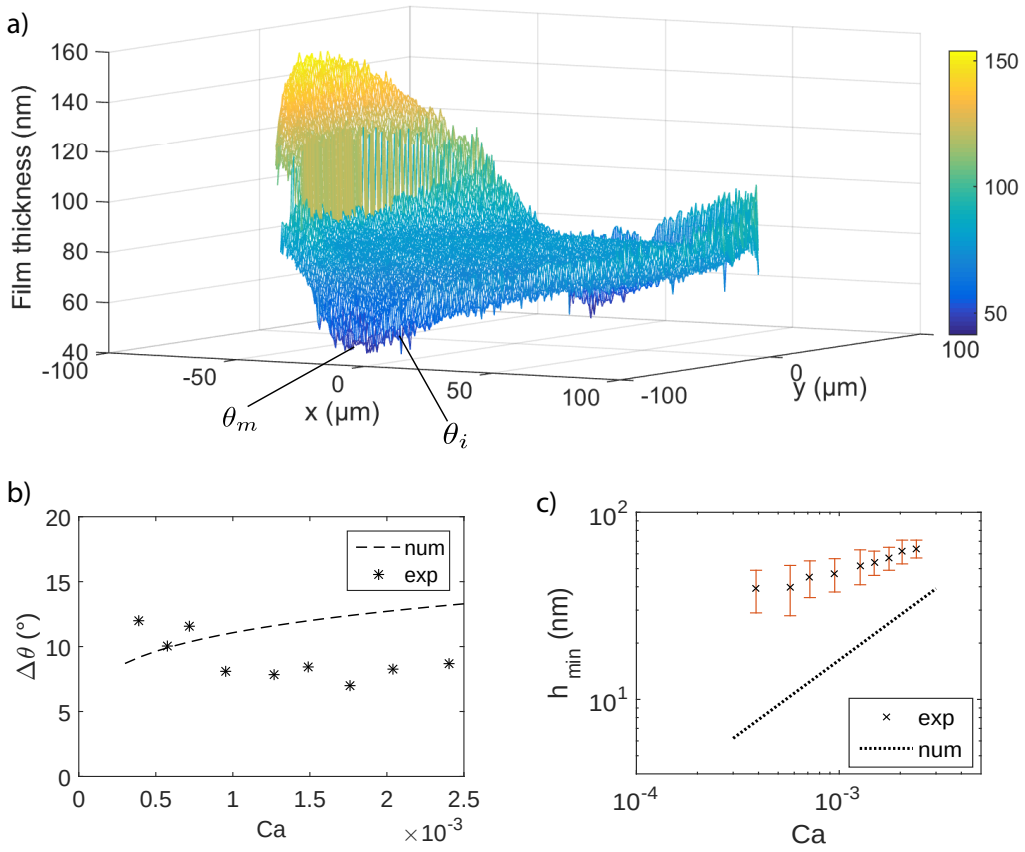

FIGURE 4.12: **(a)** Topographie expérimentale pour $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$; **(b)** Extension angulaire du ménisque latéral en fonction de Ca. La ligne en tirets est $\Delta\theta$ donné par le calcul numérique ; **(c)** Epaisseur minimale du film dans la région latérale $h_{\min}$ en fonction de Ca. La ligne en pointillés est $h_{\min}$ donné par le calcul numérique

à mesure que la vitesse augmente, et la présence de l'oscillation de l'interface à l'arrière de la goutte. Le modèle 2D de Bretherton reproduit le profil expérimental de l'interface le long de l'axe central de déplacement (axe x) de la goutte dans le ménisque avant et la région centrale. Ceci est cohérent avec une condition aux limites de type *stress-free* dans ces régions. En revanche, cette condition aux limites ne permet pas de retrouver l'importante bosse expérimentale à l'arrière de la goutte. En introduisant une vitesse interfaciale en tant que paramètre dans l'équation de l'interface, on peut déterminer sa variation dans la zone d'épaississement à l'aide du profil expérimental de l'interface. Cet accroissement de la vitesse interfaciale à mesure que l'on se dirige vers l'arrière de la goutte est en lien avec l'accumulation des tensioactifs qui diminue le tension de surface dans cette zone. L'utilisation de la valeur expérimentale de la vitesse interfaciale maximale au sommet de la bosse nous permet ensuite de reproduire l'oscillation arrière à l'aide d'un modèle d'interface incompressible. Concernant la région latérale de la goutte, la résolution de l'équation de l'interface dans l'approximation

de lubrification (éq. (2.20)), montre que le profil théorique sous-estime le profil expérimental dans cette région. Ceci montre qu'un ingrédient physique manque dans la modélisation purement hydrodynamique du film de lubrification de Burgess & Foster. De façon similaire au comportement observé à l'arrière de la goutte, l'épaississement latéral est susceptible d'être dû à une rigidification de l'interface par effet Marangoni.

4.2 Mesure de la topographie du film pour une goutte très visqueuse $\lambda \simeq 1000$

On s'intéresse à présent à la topographie du film se développant sous une goutte bien plus visqueuse que la phase externe ($\lambda = 972$). Pour obtenir un tel rapport de viscosité, la phase interne de la goutte est constituée d'huile silicone (V1000 Sigma-Aldrich) de viscosité η_i =972 mPa.s. La phase externe est une solution aqueuse de Sodium dodecyl sulfate (SDS) (Sigma-Aldrich) à une concentration de c =16.2 mM, et de NaCl à une concentration c_{sel} =0.1 M. A cette concentration en sel, la concentration micellaire critique du SDS est de 1.5 mM [42] et des micelles sont donc présentes en phase externe. La viscosité de la phase externe vaut η_o =1 mPa.s et la valeur de la tension superficielle entre les deux phases est γ =7 mN/m.

La gamme de vitesse de goutte U_d explorée est 85-2500 μm/s, ce qui correspond à une gamme en nombre capillaire $[1.2 \times 10^{-5}\,;\, 3.5 \times 10^{-4}]$. La résolution d'un pixel est δ_{pix} =0.67 μm. La Fig. 4.13.a présente l'image RICM d'une goutte très visqueuse se déplaçant de la gauche vers la droite : on constate que contrairement au cas de gouttes peu visqueuses (voir Fig. 4.1.a), l'image ne présente pas de croissant contrasté à l'arrière de la goutte, caractéristique de l'importante bosse décrite en section 4.1. Comme en section 4.1, on définit expérimentalement le film de lubrification comme la zone de l'image, de rayon $(R - H_o)$, présentant des niveaux de gris bien contrastés. Toutes les mesures présentent un film de lubrification de rayon $(R - H_o)$ =63$\pm$7 μm.

La courbe théorique de l'intensité réfléchie en fonction de l'épaisseur du film n'a pas la même allure que pour des gouttes d'huile fluorée (Fig. 4.1.c), puisque dans le cas présent les interférences sont destructives et non plus constructives à très faible épaisseur de film. Ceci s'explique par le fait que l'indice de réfraction de l'huile silicone est supérieur à celui de la phase aqueuse externe, ce qui introduit un déphasage supplémentaire de π lors de la réflexion à l'interface de la goutte.

4.2.1 Analyse qualitative de la forme de l'interface

Le contour du film de lubrification est quasiment circulaire avec une variation relative de son rayon de l'ordre $\delta(R - H_o)/(R - H_o) \simeq \delta R/R \sim 1\%$. Dans la suite, nous négligerons cette déformation et nous considèrerons le film de lubrification comme un disque de rayon $(R - H_o)$.

La topographie du film, déduite de l'image RICM en Fig. 4.13.a est tracée en Fig. 4.13.c. Elle présente une forme de catamaran avec deux creux sur les côtés de la goutte, mais l'importante bosse à l'arrière de la goutte, mise en évidence dans le système précédent, est absente.

Comme dans la section 4.1, le film de lubrification est divisé en différentes régions qui sont analysées indépendamment.

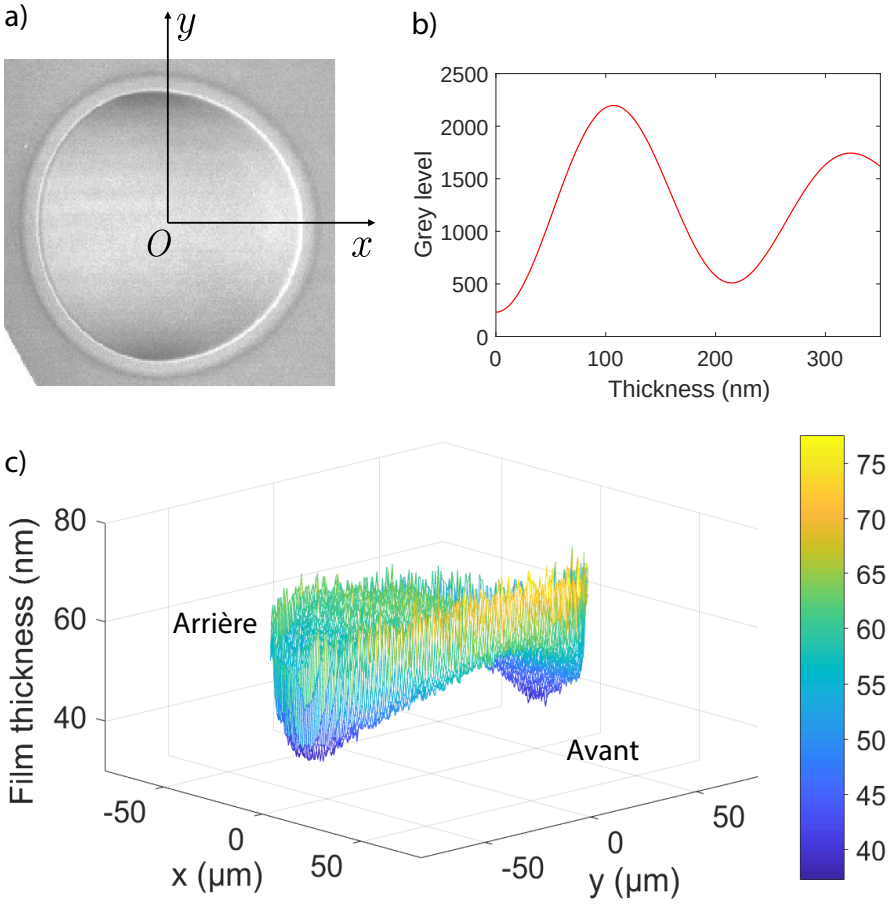

FIGURE 4.13: **(a)** Image RICM d'une goutte d'huile silicone se déplaçant dans une cellule de Hele-Shaw remplie d'une solution aqueuse de SDS et de NaCl, dans la direction x. Le diamètre de la goutte sur l'image est $2(R - H_o)$ =110 μm. $Ca = 3.5 \times 10^{-4}$ et λ =972 ; **(b)** Dépendance théorique de l'intensité réfléchie en fonction de l'épaisseur du film déterminée par le modèle optique [23] ; **(c)** Topographie expérimentale du film de lubrification correspondant à l'image **(a)**

4.2.2 Ménisque avant et région centrale

4.2.2.1 Profils longitudinaux

Des profils sont tracés en fonction de x pour différentes valeurs de y en Fig. 4.14. Loin des ménisques avant/arrière, l'épaisseur du film est indépendante de x, et on note $h_\infty(y)$ cette valeur constante. Cette dernière peut être définie sans ambiguité pour $|y| < y_{\max} = (R - H_o)\sin(\theta_{\max})$ (voir Fig. 4.2). Par exemple, pour $Ca = 3.5 \times 10^{-4}$, on a $y_{\max}$ =51 μm (voir Fig. 4.14.c). Cet angle vaut $\theta_{\max}$ =1.2 rad=69°. Nous retiendrons cette valeur comme borne entre les ménisques avant et latéral dans la modélisation de la topographie du film. Cette convention nous donne $y_{\max} = 0.93(R - H_o)$.

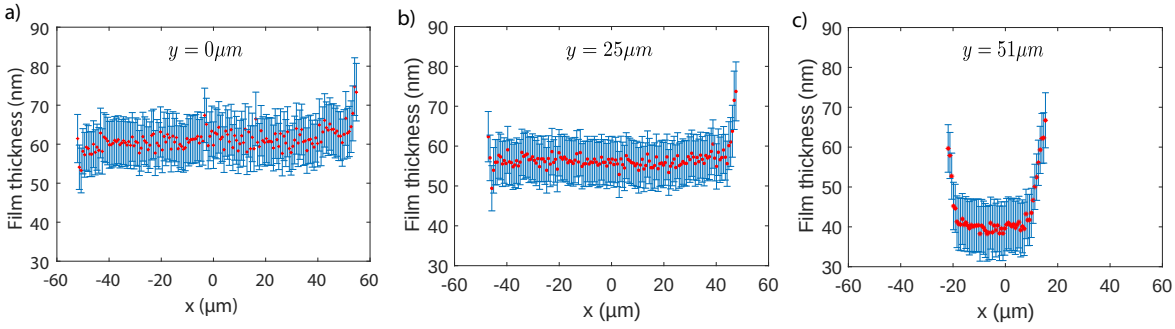

FIGURE 4.14: Epaisseur du film $h(x, y)$ en fonction de x pour **(a)** $y = 0$ μm, **(b)** $y = 25$ μm (*i.e.* y =0.46 $[R - H_o]$) et **(c)** $y = 51$ μm (*i.e.* y =0.93 $[R - H_o]$). $Ca = 3.5 \times 10^{-4}$

4.2.2.2 Profils longitudinaux dans le plan (y=0)

La variation de l'épaisseur au centre du film $h_\infty(0)$ en fonction du nombre capillaire Ca est présentée en Fig. 4.15. On constate l'existence de deux régimes de variation de l'épaisseur du film déjà mis en évidence dans [35] (voir Fig. 1.12) : un régime à haut capillaire pour lequel l'épaisseur du film croît avec Ca, nommé régime capillaire, et un régime à bas nombre capillaire, nommé régime de pression de disjonction, au sein duquel l'épaisseur du film sature à une valeur h_Π du fait des interactions électrostatiques répulsives (pression de disjonction) entre l'interface de la goutte et la paroi du canal.

On constate qu'à la transition entre les deux régimes, pour un nombre capillaire de transition noté $Ca^* = 3.5 \times 10^{-4}$, un motif tacheté apparaît dans la région centrale (Fig. 4.16.a) donnant lieu à deux épaisseurs différentes, notées h_1 (carré vert) et h_2 (losange bleu) pour un même Ca (voir Fig. 4.15). Cette observation, caractéristique des systèmes micellaires est due à la nature oscillante de la pression de disjonction. L'isotherme de pression de disjonction associée est schématisée en Fig. 4.16.b [43, 44, 45]. Les oscillations de Π_{disj} avec l'épaisseur du film proviennent d'interactions stériques entre micelles concentrées dans le film et, par

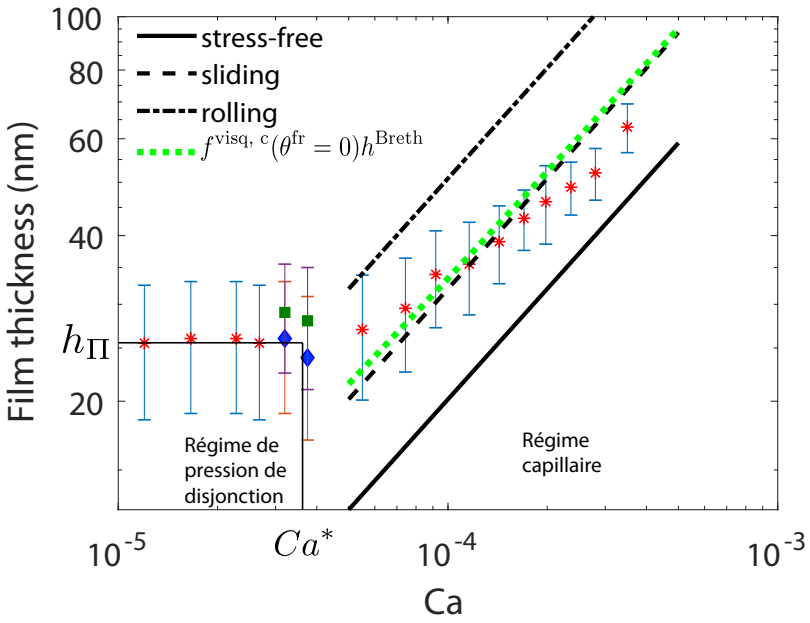

FIGURE 4.15: Variation de $h_\infty(y=0)$ avec Ca. Les lignes en trait plein, en tiret, en pointillé et en tiret-pointillé correspondent respectivement à $h^{\text{Breth}} = 1.337 H_o Ca^{2/3}$ (*stress-free*), $2^{2/3}h^{\text{Breth}}$ (*sliding*), $f^{\text{visq, c}}(\theta^{\text{fr}}=0)h^{\text{Breth}}$ (visqueux cf. éq. (2.29) pour θ^{fr} =0) et $4^{2/3}h^{\text{Breth}}$ (*rolling*) ; On note h_Π =26 nm l'épaisseur de saturation et $Ca^* = 3.5\times10^{-4}$ le capillaire de transition entre les deux régimes.

conséquent, l'isotherme a une période d'oscillation égale à la taille effective d'une micelle : son diamètre augmenté de l'épaisseur de la double couche électrique. Dans cette expérience, $h_1 - h_2 \sim 4$ nm, ce qui correspond bien à la taille de nos micelles (r_{mic} =2 nm, λ_d =1 nm) [46]. Ceci suggère que le passage d'une épaisseur à l'autre au sein du motif s'effectue entre deux branches successives de l'isotherme. Cependant, comme l'épaisseur de saturation du film h_Π, vérifie $h_\Pi > h_1 - h_2$, il reste probablement des micelles confinées dans le film (contrairement au schéma simplifié en Fig. 4.16.b).

L'épaisseur du film de lubrification au centre de la goutte est comparée aux différents modèles $h^{\text{Breth}} = 1.337 H_o Ca^{2/3}$ (*stress-free*), $2^{2/3}h^{\text{Breth}}$ (*sliding*), $4^{2/3}h^{\text{Breth}}$ (*rolling*) et $f^{\text{visq, c}}(\theta^{\text{fr}}=0)\,h^{\text{Breth}}$ (visqueux cf. éq. (2.29) pour $\theta^{\text{fr}}=0$) en Fig. 4.15. On voit que dans la gamme de nombres capillaires explorée, le modèle visqueux est très proche du *sliding*. Pour observer un écart entre ces deux modèles, il faut que $\lambda < Ca^{-2/3}$ (cf. éq. (2.29)). Pour $\lambda \simeq 1000$, cette condition s'écrit $Ca < \lambda^{-3/2} \simeq 3\times10^{-5}$. Or on voit expérimentalement que pour cette gamme de nombres capillaires, l'épaisseur du film de lubrification sature, ce qui empêche d'observer l'épaississement supérieur à $f^{\text{slid}} = 2^{2/3}$ prévu par le modèle visqueux. Dans le régime capillaire, l'épaisseur du film est bien reproduite par le modèle *sliding*, très proche du visqueux. L'épaississement expérimental du film par rapport à $2^{2/3}h^{\text{Breth}}$ lorsqu'on se rapproche du plateau de disjonction est attribué à l'effet de la pression de disjonction plutôt qu'à

un effet visqueux puisqu'on constate qu'au nombre capillaire correspondant, l'épaississement théorique du modèle visqueux par rapport au modèle *sliding* est encore trop faible et ne peut expliquer l'épaississement expérimental.

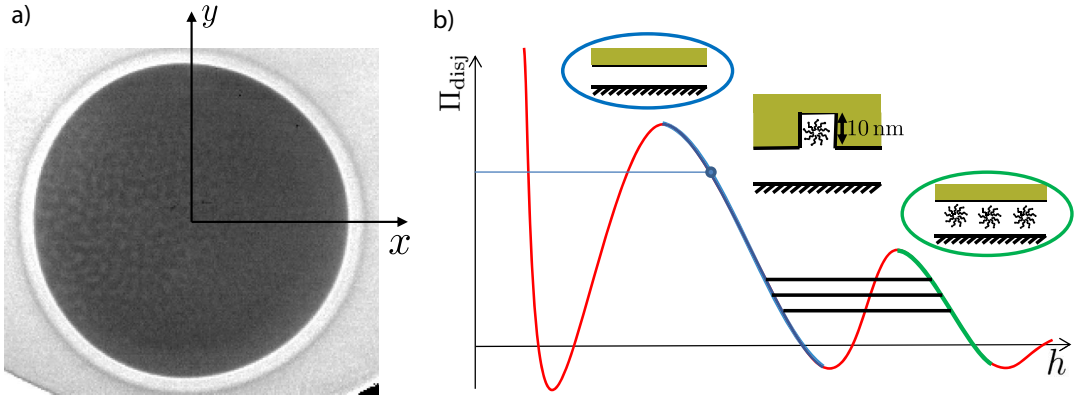

FIGURE 4.16: **(a)** Image RICM d'une goutte à la transition entre les régimes capillaire et de pression de disjonction. Un motif tacheté dans la région centrale est présent. $Ca = 3.7 \times 10^{-5}$; **(b)** Schéma d'une isotherme de pression de disjonction oscillante. Les branches bleue et verte correspondent aux points bleus et verts de la Fig. 4.15. Au dessus de chaque zone, un schéma illustre la structure du film en présence ou non de micelles.

Un zoom sur le profil de l'interface à proximité du ménisque avant est présenté en Fig. 4.17, dans le plan $y = 0$, pour trois nombres capillaires appartenant au régime capillaire. En comparant ces profils expérimentaux avec les solutions numériques de l'éq. (2.28) (équation de l'interface dans le ménisque avant pour une goutte très visqueuse) en $\theta = 0$ pour $\lambda = 972$ (visqueux) et $\lambda = \infty$ (*sliding*), on constate un relativement bon accord quantitatif. A mesure que le nombre capillaire diminue, bien que les modèles soient intégrés dans la barre d'erreur, ils tendent à sous-estimer l'épaisseur expérimentale puisqu'ils ne tiennent pas compte de la saturation due à la pression de disjonction. D'autre part, les modèles surestiment légèrement l'épaisseur du profil à haut nombre capillaire (voir Fig. 4.17.c)

4.2.2.3 Profils transversaux

La Fig. 4.18 présente les variations de l'épaisseur du film $h(0, y)$ en fonction de y pour trois nombres capillaires au sein du régime capillaire. A haut nombre capillaire (Fig. 4.18.c), on retrouve un profil similaire à celui décrit en sous-section 4.1.2.3 : $h_\infty(y)$ est maximale en $y = 0$ et décroît doucement lorsque |y| croît. Puis, pour $|y| > y_{\max}$, l'épaisseur décroît avec une pente plus raide que pour $|y| < y_{\max}$, et ensuite croît à proximité du ménisque latéral. A mesure que le nombre capillaire diminue, le profil s'applatit, en commençant par les côtés, du fait de la répulsion entre l'interface et la paroi du canal qui fait saturer l'épaisseur du film à h_Π =26 nm. Les variations de l'épaisseur du film avec y sont comparées à $f^{\text{visq, c}}(\theta^{\text{fr}})h^{\text{Breth}}$

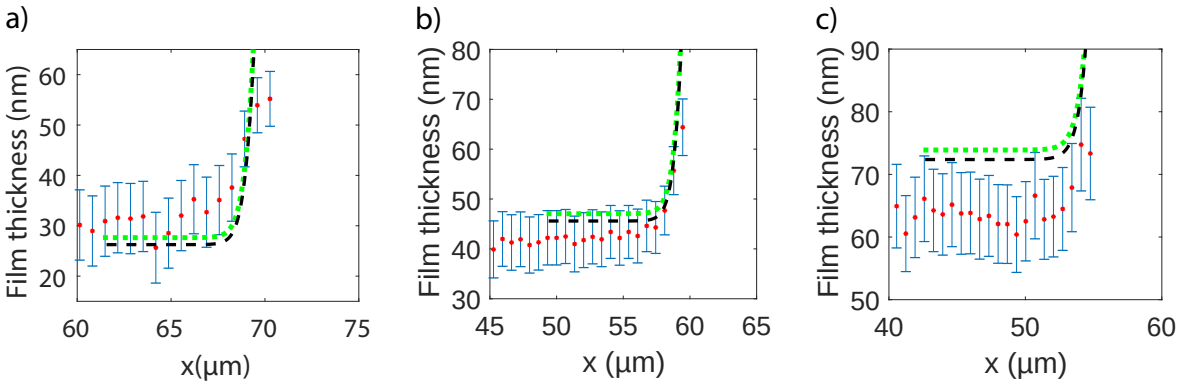

FIGURE 4.17: Epaisseur du film $h(x, y)$ en fonction de x dans le plan $y = 0$ pour **(a)** $Ca = 7.4 \times 10^{-5}$, **(b)** $Ca = 1.7 \times 10^{-4}$ et **(c)** $Ca = 3.5 \times 10^{-4}$ à proximité du ménisque avant. La ligne pointillée verte est la solution de l'éq. (2.28) (équation de l'interface dans le ménisque avant pour une goutte très visqueuse) en $\theta = 0$ et $\lambda = 972$. La ligne en tirets noirs est la solution de l'éq. (2.28) en $\theta = 0$ et $\lambda = \infty$ (cas *sliding*)

(cf. (2.29)) et à $h^{\text{slid,c}}$ (cf. (2.30)) dans la région centrale (*i.e.* $|y| \leq y_{\max}$) et à la solution de l'éq. (2.31) (équation de l'interface d'une goutte très visqueuse dans le ménisque latéral) pour $\lambda = 972$ et $\lambda = \infty$ (*sliding*) dans la région latérale (*i.e.* $|y| \geq y_{\max}$).

A haut nombre capillaire, le profil transversal expérimental présente une forme de voûte, avec une décroissance de l'épaisseur du film sur les côtés comme prédit par la théorie, cependant la décroissance est surestimée par le modèle. Lorsque le capillaire diminue, l'épaisseur expérimentale du film sur les côtés de la goutte est encore davantage sous-estimée par la théorie puisque cette dernière ne tient pas compte de l'effet de saturation.

4.2.3 Ménisque dynamique arrière

On s'intéresse, pour finir, à la partie arrière du film de lubrification. Les profils de l'interface le long de l'axe x dans le plan $(y = 0)$ sont présentés en Fig. 4.19 pour trois nombres capillaires. A haut nombre capillaire (Fig. 4.19.c), on devine la présence d'un creux séparant la région centrale du ménisque statique arrière. L'épaisseur au niveau du creux est légèrement plus faible que celle dans la région centrale. A nombre capillaire plus bas, (Fig. 4.19.a et .b), la transition entre la région centrale du film et le ménisque statique arrière est caractérisée par une variation monotone de l'épaisseur du film, comme dans le ménisque avant. L'absence de creux à bas nombre capillaire s'explique par deux raisons : la première est la pression de disjonction qui empêche le film d'atteindre des épaisseurs inférieures à h_Π à bas nombre capillaire, la seconde est que l'écart entre l'épaisseur du creux et celle de la région centrale diminue avec Ca, et par conséquent, les écarts d'intensité correspondant deviennent plus difficiles à détecter.

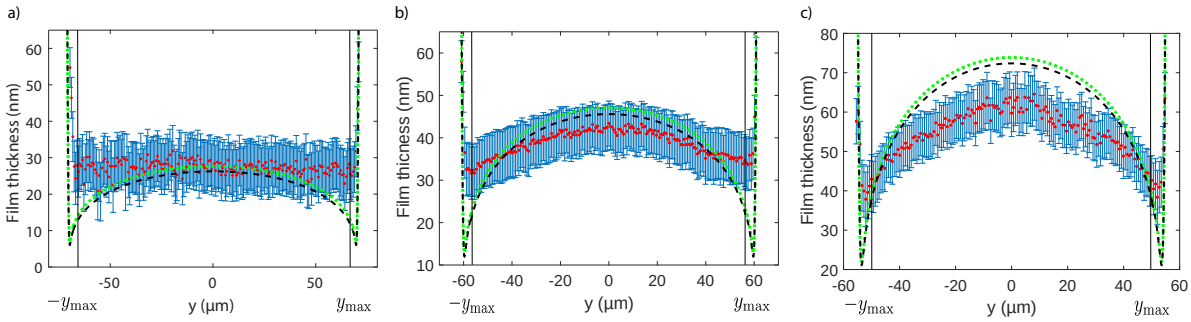

FIGURE 4.18: Profils du film selon l'axe y dans le plan ($x = 0$) pour **(a)** $Ca = 7.4 \times 10^{-5}$, **(b)** $Ca = 1.7 \times 10^{-4}$ et **(c)** $Ca = 3.5 \times 10^{-4}$. Dans la région centrale ($|y| \leq y_{\max}$), les lignes en pointillés verts et en tirets noirs correspondent respectivement à $f^{\text{visq, c}}(\theta^{\text{fr}})h^{\text{Breth}}$ (cf. éq. (2.29)) et à $h^{\text{sli,c}}$ (cf. éq. (2.30)). Dans la région latérale ($|y| > y_{\max}$), les lignes en pointillés verts et en tirets noirs correspondent respectivement à la solution de l'éq. (2.31) (équation de l'interface d'une goutte très visqueuse dans le ménisque latéral) pour $\lambda = 972$ et $\lambda = \infty$ (*sliding*)

En comparant ces profils expérimentaux avec les solutions numériques de l'éq. (2.28) (équation de l'interface dans le ménisque arrière pour une goutte très visqueuse) en $\theta = \pi$ pour $\lambda = 972$ (*visqueux*) et $\lambda = \infty$ (*sliding*), on constate un relativement bon accord quantitatif. A haut nombre capillaire, (Fig. 4.19.c), les modèles surestiment légèrement l'épaisseur au niveau de la région centrale et reproduisent l'épaisseur au niveau du creux. Il est probable que la bosse prédite par les modèles ait une épaisseur trop faible par rapport au film plat pour être détectée expérimentalement. D'autre part, il semble que l'extension radiale du creux expérimental soit aussi bien reproduite par les profils théoriques. A plus bas nombre capillaire (voir Fig. 4.19.a et .b), l'épaisseur dans la région centrale est bien reproduite par la théorie, mais comme on l'a vu, le creux arrière disparaît des profils expérimentaux.

En définitive, la topographie expérimentale est bien reproduite à haut nombre capillaire par un modèle de type visqueux (très proche du *sliding* pour ce rapport de viscosité et dans la gamme de nombres capillaires expérimentale) et à bas nombre capillaire celle-ci s'applatit du fait de la pression de disjonction. On verra au chapitre 5 que pour déterminer théoriquement la mobilité d'une goutte dans ces conditions, le film de lubrification peut être modélisé par une topographie *sliding* dans laquelle on applique un cut-off à partir de l'épaisseur h_Π, pour rendre compte de l'effet de la pression de disjonction en première approximation.

Dans la section suivante, nous allons voir qu'une topographie de type *sliding* est aussi observable dans des systèmes de rapport de viscosités faible (λ =0.64), mettant ainsi en évidence l'effet de rigidification de l'interface induit par les tensioactifs.

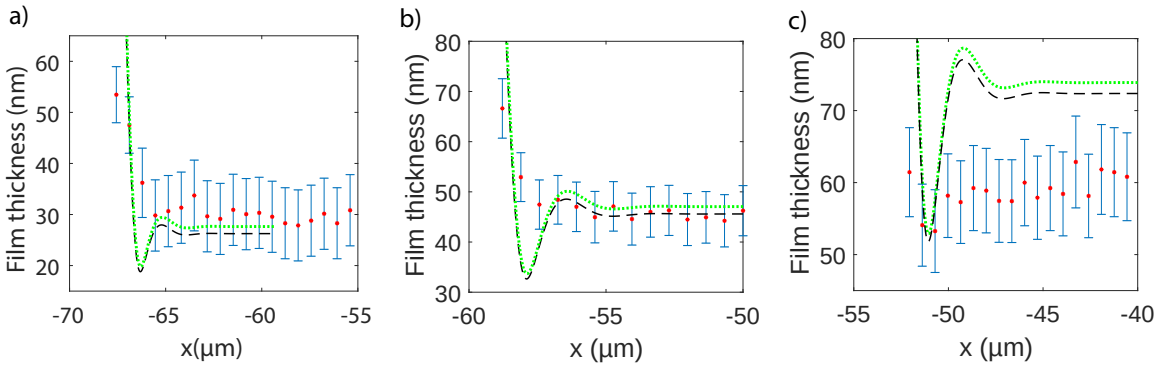

FIGURE 4.19: Epaisseur du film $h(x, y)$ en fonction de x dans le plan $y = 0$ pour **(a)** $Ca = 7.4 \times 10^{-5}$, **(b)** $Ca = 1.7 \times 10^{-4}$ et **(c)** $Ca = 3.5 \times 10^{-4}$ à proximité du ménisque arrière. La ligne pointillée verte est la solution (2.28) (équation de l'interface dans le ménisque arrière pour une goutte très visqueuse) en $\theta = \pi$ et $\lambda = 972$. La ligne en tirets noirs est la solution (2.28) en $\theta = \pi$ et $\lambda = \infty$ (*sliding*)

4.3 Mise en évidence expérimentale de l'influence des tensioactifs sur l'épaisseur du film

Le dernier jeu de données présenté sur la topographie du film de lubrification a été mesuré pour un faible rapport de viscosité ($\lambda = 0.64$). La phase interne à la goutte est constituée d'huile fluorée C6F14, de viscosité η_i =0.64 mPa.s, et la phase externe est une solution aqueuse de Sodium dodecyl sulfate (Sigma-Aldrich) à une concentration de c =0.82 mM, et de NaCl à une concentration de c_{sel} =0.2 M, de viscosité η_o =1 mPa.s. A cette concentration en sel, la concentration micellaire critique du SDS est de 0.9 mM [42], et il n'y a donc pas de micelle en solution puisque c =0.9 CMC. Par rapport à la section 4.1, la concentration en tensioactifs est diminuée d'un facteur 10^3. Cette diminution est susceptible de réduire l'efficacité de peuplement par les tensioactifs de l'interface créée au niveau du ménisque dynamique avant. La tension superficielle entre les deux phases vaut γ =14 mN/m. La gamme de vitesse de goutte U_d explorée est 900-7200 μm/s, ce qui correspond à une gamme de nombres capillaires $[6.3 \times 10^{-5}, 6.8 \times 10^{-4}]$. La Fig. 4.20.a présente l'image RICM d'une goutte peu visqueuse se déplaçant de la gauche vers la droite : on constate que contrairement à la Fig. 4.1.a, l'image ne présente pas de croissant contrasté à l'arrière de la goutte, caractéristique de l'importante bosse décrite en section 4.1, dont la présence a été attribuée à l'accumulation de tensioactifs dans le ménisque dynamique arrière. Comme en section 4.1, on définit expérimentalement le film de lubrification comme la zone de l'image, de rayon $(R - H_o)$, présentant des niveaux de gris bien contrastés. Toutes les mesures présentent un film de lubrification de rayon $(R - H_o)$ =103± 10 μm. Les gouttes étant constituées d'huile fluorée, d'indice de réfraction inférieur à celui de la phase aqueuse externe, la réflexion à l'interface de la goutte

n'induit pas de déphasage supplémentaire de π et la courbe de l'intensité réfléchie en fonction de l'épaisseur (Fig. 4.20.b) présente la même allure qu'en section 4.1. Comme dans les deux dernières sections, la variation du rayon du film de lubrification est suffisamment faible ($\delta(R-H_o)/(R-H_o) = 4\%$) pour pouvoir considérer le film de lubrification comme un disque de rayon $(R-H_o)$.

La topographie du film, déduite de l'image RICM en Fig. 4.20.a, est tracée en Fig. 4.20.c. Elle présente une forme de catamaran avec deux creux sur les côtés de la goutte, mais l'importante bosse à l'arrière de la goutte, mise en évidence dans le système décrit dans la section 4.1, est absente.

Comme dans les deux sections précédentes, le film de lubrification est divisé en différentes régions qui sont analysées indépendamment.

4.3.1 Ménisque avant et région centrale

4.3.1.1 Profils longitudinaux

Des profils sont tracés en fonction de x pour différentes valeurs de y en Fig. 4.21. Loin des ménisques avant/arrière, l'épaisseur du film est indépendante de x, et on note $h_\infty(y)$ cette valeur constante. Cette dernière peut être définie sans ambiguité pour $|y| < y_{\max} = (R-H_o)\sin(\theta_{\max})$ (voir Fig. 4.2). Par exemple, pour $Ca = 2.1\times10^{-4}$, $y_{\max}$ =107 μm (voir Fig. 4.21.c). Pour tous les Ca, cet angle vaut $\theta_{\max}$ =1.27 rad=73°. Cette convention nous donne $y_{\max} = 0.95(R-H_o)$.

4.3.1.2 Profils longitudinaux dans le plan (y=0)

La variation de l'épaisseur au centre du film $h_\infty(0)$ en fonction du nombre capillaire Ca est présentée en Fig. 4.22. On constate que pour la gamme de nombres capillaires $8.5\times10^{-5} \leq Ca \leq 5\times10^{-4}$, l'épaisseur correspondant au modèle *sliding*, $2^{2/3}h^{\mathrm{Breth}}$, reproduit l'épaisseur expérimentale. Dans cette gamme de nombres capillaires, des valeurs d'épaississement proche de $2^{2/3} = 1.5874$, on déjà été mesurées dans des expériences de tirage de fibres [16] et de plaques [47] de solutions de SDS à des concentrations proches de la nôtre. En dehors de cette gamme, l'épaississement expérimental semble légèrement supérieur à l'épaississement *sliding*, $f^{\mathrm{slid}} = 2^{2/3}$, à haut nombre capillaire. Cette tendance suggère une transition vers un épaississement *rolling* à haut nombre capillaire. Compte tenu de la valeur du rapport de viscosité dans ce système ($\lambda = 0.64$), le fait d'observer un épaississement de type *sliding* implique que l'interface dans le ménisque dynamique ne peut pas être considérée comme *stress-free*. Une contrainte supplémentaire apparaît, la contrainte de Marangoni liée à l'inhomogénéité de la concentration surfacique Γ en tensioactifs. En sous-section 4.3.3, des arguments en lois d'échelle seront mis à profit pour expliquer l'installation de ce gradient de concentration surfacique.

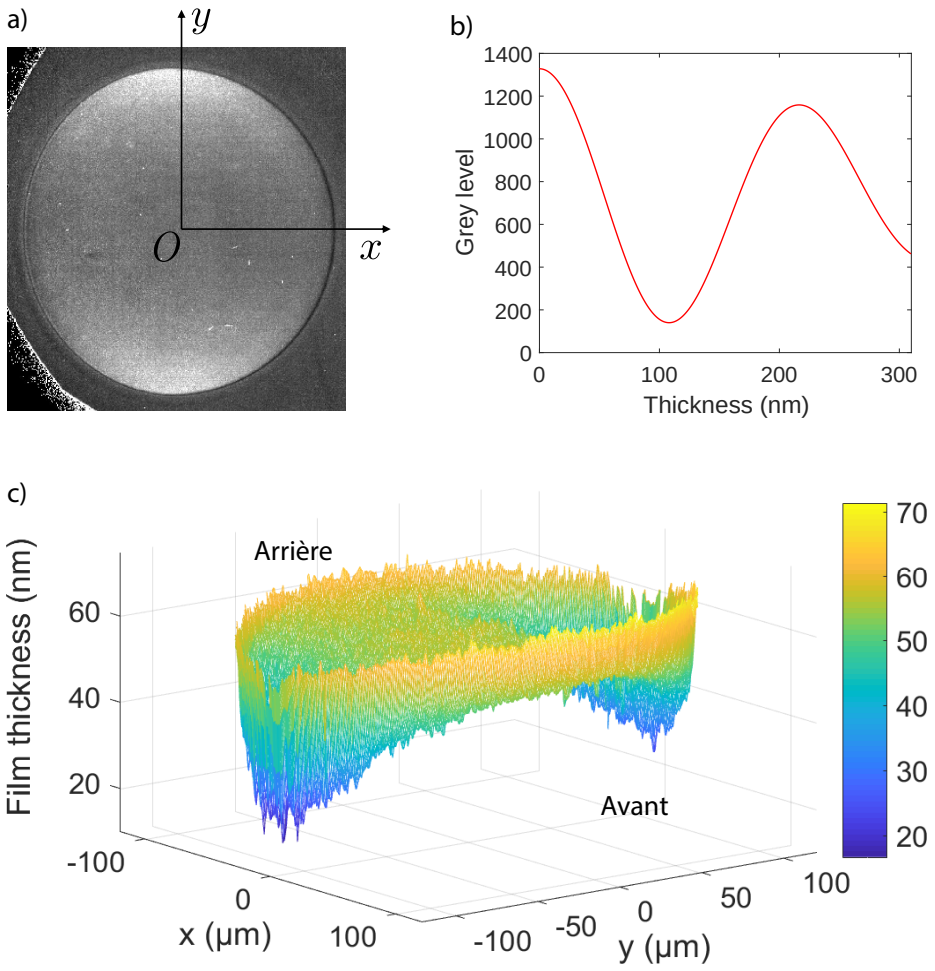

FIGURE 4.20: **(a)** Image RICM d'une goutte d'huile fluorée (C6F14) se déplaçant dans une cellule de Hele-Shaw remplie d'une solution aqueuse de SDS et de NaCl, dans la direction x. Le diamètre de la goutte sur l'image est $2(R - H_o)$ =225 μm, $Ca = 2.1 \times 10^{-4}$ et λ =0.64 ; **(b)** Dépendance théorique de l'intensité réfléchie en fonction de l'épaisseur du film déterminée par le modèle optique [23] ; **(c)** Topographie expérimentale du film de lubrification correspondant à l'image **(a)**

Un zoom sur le profil de l'interface à proximité du ménisque avant est présenté en Fig. 4.23, dans le plan $y = 0$, pour trois nombres capillaires. En comparant ces profils expérimentaux avec les solutions numériques de l'éq. (2.28) (équation de l'interface dans le ménisque avant pour une goutte très visqueuse) en $\theta = 0$ pour $\lambda = \infty$ (*sliding*), on constate un bon accord quantitatif. Notons qu'un épaississement de type *stress-free*, théoriquement valide pour ce rapport de viscosité ($\lambda < 1$) donnerait des valeurs bien en-deçà des valeurs expérimentales.

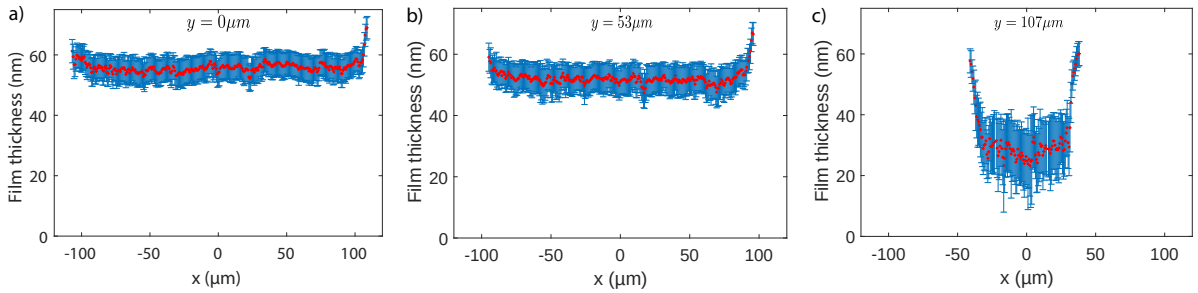

FIGURE 4.21: Epaisseur du film $h(x, y)$ en fonction de x pour **(a)** $y = 0$ μm, **(b)** $y = 53$ μm (*i.e.* $y = 0.47\,[R - H_o]$) et **(c)** $y = 107$ μm (*i.e.* $y = 0.95\,[R - H_o]$). $Ca = 2.1 \times 10^{-4}$

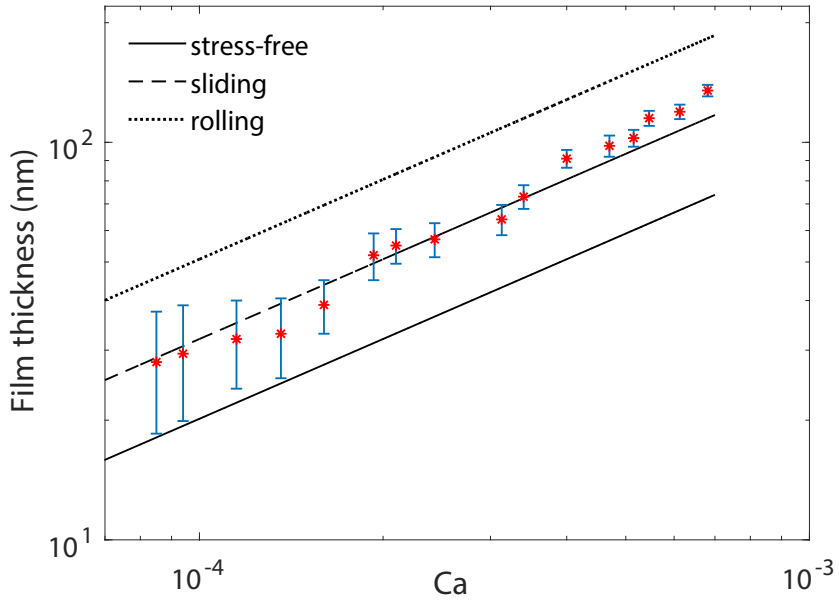

FIGURE 4.22: Variation de $h_\infty(y = 0)$ avec Ca. Les lignes en trait plein, en tirets, et en pointillés correspondent respectivement à $h^{\text{Breth}} = 1.337 H_o\, Ca^{2/3}$ (*stress-free*), $2^{2/3} h^{\text{Breth}}$ (*sliding*), et $4^{2/3} h^{\text{Breth}}$ (*rolling*) ;

4.3.1.3 Profils transversaux dans le plan (x=0)

La Fig. 4.24 présente les variations de l'épaisseur du film $h(0, y)$ en fonction de y pour trois nombres capillaires.

Pour les deux nombres capillaires les plus grands (Fig. 4.24.b et .c), on retrouve un profil similaire à celui décrit en sous-section 4.1.2.3 : $h_\infty(y)$ est maximale en $y = 0$ et décroît doucement lorsque |y| croît. Puis, pour $|y| > y_{\max}$, l'épaisseur décroît avec une pente plus raide que pour $|y| < y_{\max}$, et ensuite croît à proximité du ménisque latéral. A plus faible nombre capillaire (Fig. 4.24.a), le profil a aussi une forme de voûte avec deux creux sur les

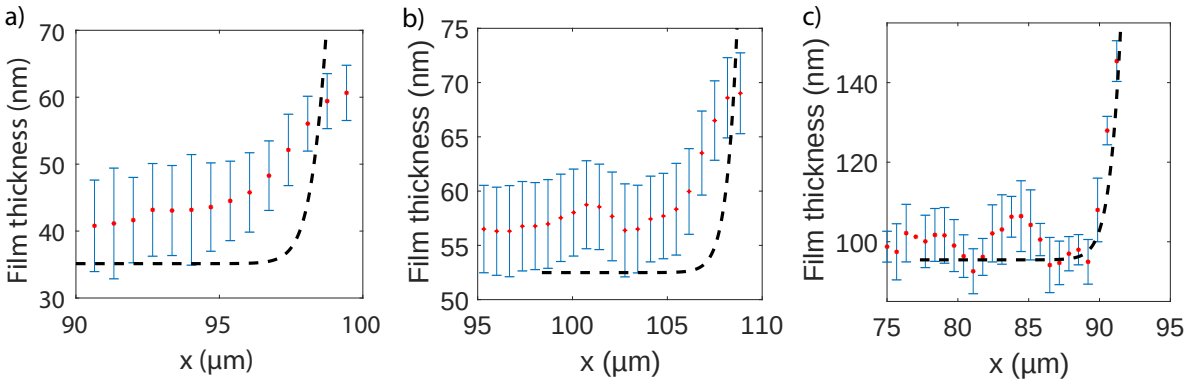

FIGURE 4.23: Epaisseur du film $h(x, y)$ en fonction de x dans le plan $y = 0$ pour **(a)** $Ca = 1.15 \times 10^{-4}$, **(b)** $Ca = 2.1 \times 10^{-4}$ et **(c)** $Ca = 5.15 \times 10^{-4}$ à proximité du ménisque avant. La ligne en tirets noirs est la solution de l'éq. (2.28) (équation de l'interface dans le ménisque avant pour une goutte très visqueuse) en $\theta = 0$ et $\lambda = \infty$ (cas *sliding*)

côtés de la goutte, mais contrairement aux deux cas précédents, l'épaisseur minimale est atteinte pour $|y| < y_{\max}$. Les variations de l'épaisseur du film avec y sont comparées à $h^{\text{sli,c}}$, donné par l'éq. (2.30), dans la région centrale (*i.e.* $|y| \leq y_{\max}$) et à la solution de l'éq. (2.31) (équation de l'interface dans le ménisque latéral pour une goutte très visqueuse) pour $\lambda = \infty$ (*sliding*) dans la région latérale (*i.e.* $|y| \geq y_{\max}$). On constate qu'aux nombres capillaires les plus élevés, le modèle reproduit bien la voûte centrale ainsi que le profil dans le ménisque latéral (Fig. 4.24.b et .c).

Pour le nombre capillaire le plus faible (Fig. 4.24.a), la voûte est bien reproduite par le modèle mais ce dernier sous-évalue l'épaisseur minimale, et présente un creux dont la position suivant l'axe y est plus excentrée que celle du creux expérimental. Il est peu probable que cet écart à bas nombre capillaire soit dû à un effet de pression de disjonction puisque si l'on considère que le seul effet de la pression de disjonction est d'induire un cut-off sur l'épaisseur du film, cette interaction ne peut pas être responsable d'un décalage du creux latéral suivant y. Lorsque la pression de disjonction joue un rôle, l'allure du profil transversal est plutôt celle présentée en Fig. 4.18.b. Au vu de l'influence notable qu'a la répartition des tensioactifs en surface sur l'épaississement du film au centre de la goutte, il est probable que l'écart entre les profils expérimentaux et théoriques suivant y dans la région latérale soit plutôt dû à cette même cause.

4.3.2 Ménisque dynamique arrière

Pour finir, on se concentre sur la partie arrière du film de lubrification. Les profils de l'interface le long de l'axe x dans le plan $(y = 0)$ sont présentés en Fig. 4.25 pour trois nombres capillaires. A haut nombre capillaire (Fig. 4.25.b et .c), on constate que la région centrale est

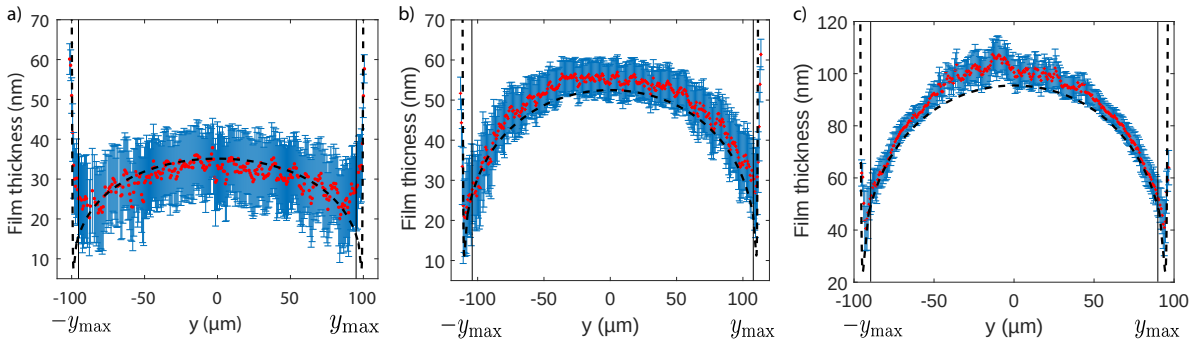

FIGURE 4.24: Profils du film selon l'axe y dans le plan $(x = 0)$ pour **(a)** $Ca = 1.15 \times 10^{-4}$, **(b)** $Ca = 2.1 \times 10^{-4}$ et **(c)** $Ca = 5.15 \times 10^{-4}$. Dans la région centrale ($|y| \leq y_{\max}$), la ligne en tirets noirs correspond à $h^{\text{sli,c}}$ (cf. éq. (2.30)). Dans la région latérale ($|y| > y_{\max}$), la ligne en tirets noirs est la solution de l'éq. (2.31) (équation de l'interface dans le ménisque latéral pour une goutte très visqueuse) pour $\lambda = \infty$ (*sliding*)

séparée du ménisque statique arrière par un creux d'épaisseur légèrement plus faible que celle dans la région centrale. A nombre capillaire plus bas, (Fig. 4.25.a), la transition entre la région centrale du film et le ménisque statique arrière est caractérisée par une variation monotone de l'épaisseur expérimentale du film, comme dans le ménisque avant. En comparant ces profils expérimentaux avec les solutions numériques de l'éq. (2.28) (équation de l'interface dans le ménisque arrière pour une goutte très visqueuse) en $\theta = \pi$ et $\lambda = \infty$ (sliding), on constate un bon accord quantitatif. Pour les trois nombres capillaires, le modèle reproduit bien l'épaisseur au niveau de la région centrale. A haut nombre capillaire (Fig. 4.25.c), l'épaisseur ainsi que l'extension radiale du creux arrière sont très bien reproduites par le modèle. A mesure que le nombre capillaire diminue, l'épaisseur au niveau du creux est sous-estimée par le profil théorique (Fig. 4.25.b) jusqu'à ce que le creux finisse par disparaître du profil expérimental (Fig. 4.25.a). Il est probable qu'à bas nombre capillaire, l'écart d'épaisseur entre le creux et la région centrale soit trop faible pour que la différence d'intensité correspondante puisse être détectée.

En résumé, un modèle de type *sliding* (cf. éq. (2.27)) reproduit relativement bien la topographie expérimentale d'une goutte peu visqueuse se déplaçant dans une solution de tensioactifs peu concentrée. Pour un si faible rapport de viscosité, le fait de retrouver une topographie similaire à celle d'une goutte de viscosité mille fois plus importante, montre les limites du modèle purement hydrodynamique présenté au chapitre 2, et souligne la nécessité de prendre en compte la rhéologie interfaciale dans la modélisation du profil de l'interface. En principe, l'influence des tensioactifs sur l'épaississement du film peut être déterminée en résolvant le problème couplant les équations de transport des surfactants à celle de Stokes [14]. Cette résolution dépasse le cadre de ce travail et dans la section suivante, nous allons plutôt tenter d'expliquer l'épaississement observé au centre de la goutte par des arguments en loi d'échelle

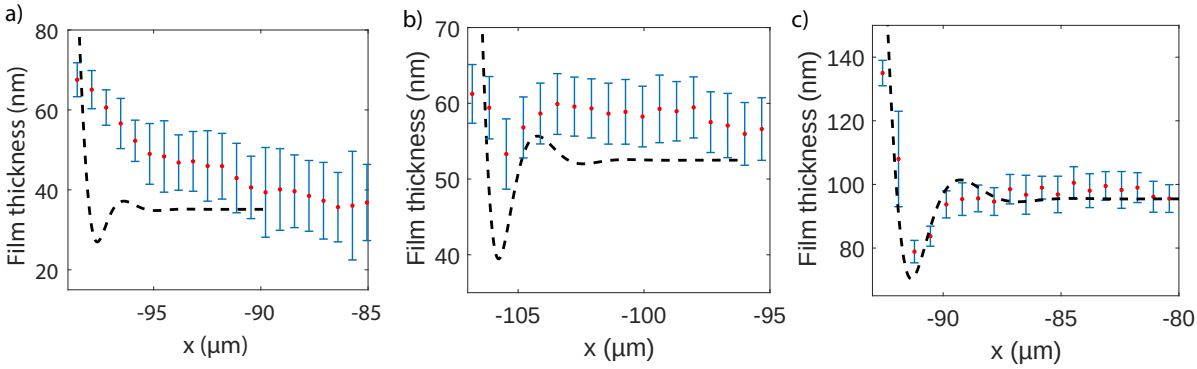

FIGURE 4.25: Epaisseur du film $h(x, y)$ en fonction de x dans le plan $y = 0$ pour **(a)** $Ca = 1.15 \times 10^{-4}$, **(b)** $Ca = 2.1 \times 10^{-4}$ et **(c)** $Ca = 5.15 \times 10^{-4}$ à proximité du ménisque arrière. La ligne en tirets noirs est la solution (2.28) (équation de l'interface dans le ménisque arrière pour une goutte très visqueuse) en $\theta = \pi$ et $\lambda = \infty$ (cas *sliding*)

[37, 16] en comparant le temps carcatéristique de transit du tensioactif avec les temps caractéristiques de diffusion et d'adsorption du tensioactif dans le ménisque dynamique avant.

4.3.3 Discussion

4.3.3.1 Mécanisme d'épaississement

Pour comprendre le mécanisme d'épaississement du film de lubrification dans un système présentant des tensioactifs, appuyons-nous sur le profil de l'écoulement dans le ménisque dynamique avant dans le cas *stress-free* (voir Fig. 4.26.a). Dans le référentiel de la goutte, un point de stagnation divergent (point A) est présent dans le ménisque dynamique avant. En ce point, de l'interface est créée et l'écoulement généré par le mouvement de la paroi dans la direction $-x$ rebrousse chemin sous l'effet du gradient de courbure de l'interface dans la direction x (dépression dans la phase continue) qui tend à vider le film. Par ailleurs un second point de stagnation, convergent cette fois, se trouve au nez de la goutte (point C). Partant de cette situation *stress-free*, si l'on ajoute des tensioactifs en solution, on voit que ces derniers sont advectés par l'écoulement en direction des points de stagnation convergents avant C et arrière D (voir Fig. 4.26.b où les flèches rouges indiquent le sens des écoulements). Lors de son transit dans la phase externe du ménisque dynamique, si le tensioactif ne parvient pas à repeupler l'interface nouvellement créée au niveau du point de stagnation A, un gradient de concentration surfacique en tensioactifs peut s'établir entre le ménisque dynamique avant et le nez de la goutte où le tensioactif au contraire est susceptible de s'accumuler. Le mécanisme d'épaississement du film repose alors sur l'apparition d'une contrainte de Marangoni τ_1 (flèche bleue en Fig. 4.26.b), liée au gradient de concentration surfacique, qui limite la vidange du film par le gradient de courbure de l'interface. On note alors Γ_0 et γ_0 les concentration et tension

de surface dans la région concentrée de l'interface et $\Gamma_0 - \Delta\Gamma$ et $\gamma_0 + \Delta\gamma$ les concentration et tension de surface dans la région de l'interface appauvrie en tensioactif voir Fig. 4.26.b.

D'autre part, une seconde contrainte de Marangoni τ_2 peut s'établir si les tensioactifs s'accumulent au point de stagnation convergent arrière D. Si tel est le cas, une portion ou bien l'intégralité de la région centrale de la goutte peut être cisaillée. Si le profil dans la région centrale présente un épaississement en fonction de x, ceci implique que la contrainte de Marangoni n'est pas uniforme. Par exemple, l'importante bosse mise en évidence en section 4.1 résulte d'une variation locale de la contrainte de Maragoni. En revanche, si l'épaisseur du film dans la région centrale est indépendante de x, alors la contrainte de Marangoni est uniforme et l'intégralité de la région centrale est cisaillée.

Il convient de remarquer que pendant le temps que le tensioactif passe dans le ménisque dynamique avant, deux phénomènes sont susceptibles de s'opposer à l'installation d'un gradient de tension superficielle responsable de l'épaississement : la diffusion du tensioactif et son adsorption à partir du volume.

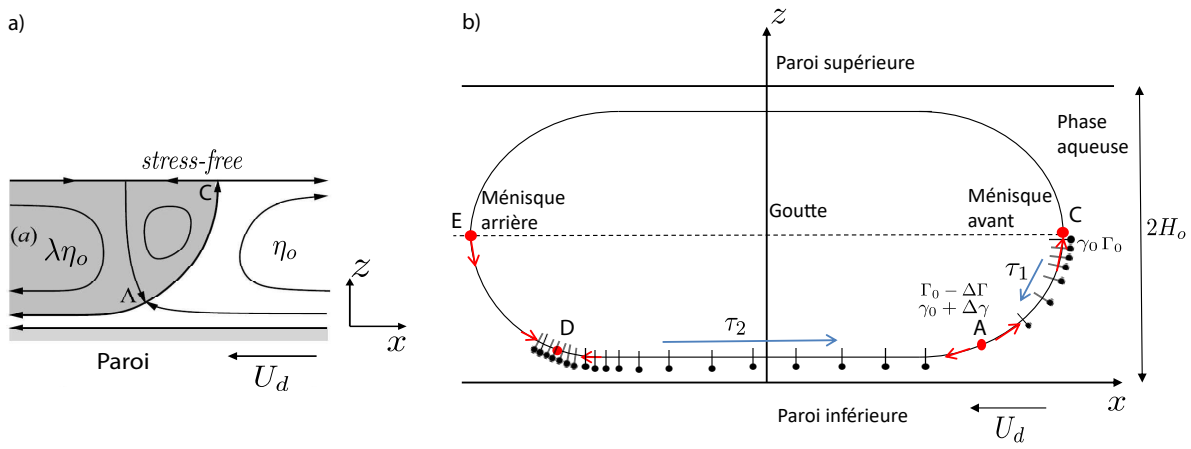

FIGURE 4.26: **(a)** Profil d'écoulement dans le ménisque avant dans le référentiel de la goutte dans le cas *stress-free*. Un point de stagnation divergent A se trouve dans le ménisque dynamique et un point de stagnation convergent C est localisé au nez de la goutte ; **(b)** Schéma de la distribution surfacique de tensioactifs et des contraintes de Marangoni associées pour une goutte se déplaçant dans une solution de tensioactifs. Les flèches rouges indiquent le sens de l'écoulement et les bleues le sens de la contrainte de Marangoni. Les points de stagnation sont représentés en rouge.

4.3.3.2 Effet du réservoir de tensioactifs dans le ménisque dynamique

Avant de déterminer lequel des deux phénomènes est le plus lent et donc potentiellement responsable de l'établisssement du gradient de concentration surfacique, posons-nous la question de savoir si le réservoir de tensioactifs dans le volume du ménisque dynamique est suffisamment abondant pour peupler l'interface. Pour le savoir, raisonnons à partir du cas

stress-free pour lequel de l'interface est créée au point de rebroussement dans le ménisque dynamique avant. Pendant le temps dt, une longueur d'interface $U_d\,dt$ est créée. En notant, C_{bulk} la concentration volumique en tensioactif loin de la goutte, Γ_0 la concentration surfacique de tensioactif à l'équilibre et $h_\infty \sim H_o Ca^{2/3}$ l'épaisseur caractéristique du film, on voit que pour repeupler l'interface créée, il faut que la quantité de tensioactifs contenue dans le volume 2D ($U_d h_\infty dt$), $C_{\text{bulk}} U_d h_\infty dt$, soit supérieure à la quantité à fournir à l'interface, $\Gamma_0 U_d dt$. En utilisant la loi d'échelle pour l'épaisseur du film, on voit que le réservoir en volume est suffisamment abondant pour repeupler l'interface si :

$$\frac{\Gamma_0}{H_o C_{\text{bulk}}} < Ca^{2/3} \tag{4.6}$$

Pour une solution analogue à la nôtre (*i.e.* solution aqueuse de SDS et NaCl à la concentration $C_{\text{SDS}} = C_{\text{bulk}}$ =0.8 mM et C_{sel} =0.2 M), il a été montré expérimentalement [48] que la concentration surfacique d'équilibre Γ_o est proche de la concentration de surface de saturation $\Gamma_\infty \simeq \frac{1}{50}$ particule/Å^2= 3×10^{-6} mol/m^2. Dans nos conditions expérimentales, H_o =7 μm et C_{bulk} =0.8 mM. En prenant Γ_0 =3×10^{-6} mol/m^2 [37], on s'apercoit que $\frac{\Gamma_0}{H_o C_{\text{bulk}}}$ =0.53, et par conséquent, dans toute la gamme de nombres capillaires explorée, le réservoir volumique n'est jamais assez important pour repeupler l'interface. Il n'est donc pas surpenant d'observer un épaississement par rapport au cas *stress-free* quel que soit Ca.

4.3.3.3 Temps caractéristiques

Afin de déterminer quel mécanisme de transport, la diffusion ou l'adsorption, pilote l'épaississement du film, nous considérons les temps caractéristiques liés à la convection, à la diffusion et à l'adsorption du tensioactif dans le ménisque dynamique.

Temps de convection

Le temps de convection du tensioactif t_c à travers le ménisque dynamique de longueur $l^* \sim H_o Ca^{1/3}$ s'écrit

$$t_c \sim l^*/U_d \sim \frac{\eta_o H_o}{\gamma} Ca^{-2/3} \tag{4.7}$$

Pour $Ca = 10^{-4}$, on a $t_c = 2.3 \times 10^{-4}$ s.

Temps de diffusion

Les temps caractéristiques de diffusion du tensioactif le long du ménisque dynamique t_{d1} et sur l'épaisseur de ce dernier t_{d2} s'écrivent

$$t_{d1} \sim \frac{{l^*}^2}{D_s} \sim \frac{H_o^2}{D_s} Ca^{2/3} \qquad t_{d2} = \frac{h_\infty^2}{D} \sim \frac{H_o^2}{D} Ca^{4/3}$$

où D et D_s sont respectivement les coefficients de diffusion des tensioactifs en volume et en surface. D et D_s sont du même ordre de grandeur et on prendra D =10^{-9} m^2/s [37]. On

remarque que pour $Ca \ll 1$, $t_{d2} \ll t_{d1}$, et dans la suite, on ne pendra en compte que t_{d2} dans la caractérisation du mécanisme de diffusion. Pour $Ca = 10^{-4}$, on a $t_{d2} = 2.2 \times 10^{-7}$ s.

Temps d'adsorption

Pour finir, il faut évaluer l'adsorption du tensioactif à l'interface, à partir du volume. Le flux d'adsorption peut s'écrire sous la forme [49] :

$$j = kC_{\text{bulk}} \left(1 - \frac{\Gamma}{\Gamma_0}\right)$$

où k est la vitesse intrinsèque d'adsorption (en cm/s).

Le temps caractéristique d'adsorption s'écrit alors :

$$t_{\text{ads}} = \frac{\Gamma_0}{j} = \frac{\Gamma_0^2}{kC_{\text{bulk}}(\Gamma_0 - \Gamma)} \geq \frac{\Gamma_0}{kC_{\text{bulk}}}$$

En prenant k =10^{-2} m/s [37], Γ_0 =$3{\times}10^{-6}$ mol/m^2, et $Ca = 10^{-4}$, on obtient $t_{\text{ads}} \geq \frac{\Gamma_0}{kC_{\text{bulk}}}$ =$4\times$ 10^{-4} s. Outre le fait que le réservoir de tensioactifs en volume est trop pauvre pour peupler l'interface dans le ménisque dynamique, il semble que le processus d'adsorption soit le plus lent, et donc que ce soit ce mécanisme qui pilote l'épaississement du film. Lorsque ceci est le cas, Ramdane et Quéré [50] ont montré que l'épaississement ne dépend pas du nombre capillaire puisque t_{ads} et t_{c} varient de la même façon avec Ca. Ceci se démontre en exprimant t_{ads} en fonction du nombre de Marangoni $M = -\frac{\Gamma}{\gamma}\left(\frac{\partial\gamma}{\partial\Gamma}\right)_\Gamma$ et du nombre capillaire Ca [37]. Pour ce faire, on considère dans un premier temps la continuité des contraintes à l'interface qui s'écrit en loi d'échelle

$$\frac{\Delta\gamma}{l^*} \sim \frac{\eta_o U_d}{h_\infty} \tag{4.8}$$

En considérant les lois d'échelle pour la longueur et l'épaisseur du ménisque dynamique, $l^* \sim H_o Ca^{1/3}$ et $h_\infty \sim H_o Ca^{2/3}$, la relation (4.8) montre qu'à petit nombre capillaire les variations relatives de tension superficielle au sein du ménisque dynamique sont petites puisque

$$\frac{\Delta\gamma}{\gamma_0} = Ca^{2/3} \tag{4.9}$$

Dans un second temps, on se sert du fait que les variations de tension superficielle sont faibles pour écrire :

$$\frac{\Delta\gamma}{\gamma_0} = M_0 \frac{\Delta\Gamma}{\Gamma_0} \tag{4.10}$$

où $M_0 = -\frac{\Gamma_0}{\gamma_0}\left(\frac{\partial\gamma}{\partial\Gamma}\right)_{\Gamma_0}$

Les deux dernières relations (4.9) et (4.10), nous permettent alors d'écrire le temps d'adsorption sous la forme

$$t_{\text{ads}} \sim \frac{M_0\Gamma_0}{kC_{\text{bulk}}} Ca^{-2/3} \tag{4.11}$$

On voit alors que le rapport t_c/t_{ads} ne dépend pas de Ca. Dans notre expérience, cet argument permet d'expliquer l'indépendance de l'épaississement par rapport au nombre capillaire ($f \simeq 2^{2/3}$) pour $8.5 \times 10^{-5} \leq Ca \leq 5 \times 10^{-4}$ (voir Fig. 4.22).

En définitive la topographie du film de lubrification de la goutte est bien approchée par une topographie théorique de type *sliding* dans une large gamme de capillaire $8.5 \times 10^{-5} \leq Ca \leq 5 \times 10^{-4}$. Hors de cette gamme, l'épaississement au centre de la goutte est légèrement plus important à haut nombre capillaire. Il convient de remarquer que le modèle théorique du *sliding* s'appuie sur l'hypothèse que la vitesse à l'interface est nulle en tout point de l'interface et que par conséquent, le film plat est cisaillé. Ce cas limite est celui prédit par Park [41] en géométrie cylindrique, pour des gouttes de taille finie se déplaçant dans une solution de tensioactifs, et dont le rapport de leur longueur sur le diamètre du tube est équivalent à R/H_o dans notre situation expérimentale. Dans son analyse, le cisaillement du film résulte de l'accumulation de tensioactifs à l'arrière de la goutte, générant un gradient de tension superficielle dans la direction opposée à celle du mouvement de la paroi dans le référentiel de la goutte.

L'accord de nos données expérimentales avec le modèle *sliding*, n'implique pas pour autant qu'expérimentalement le film soit cisaillé. En effet, Ratulowsky & Chang [14], ont montré théoriquement que pour des gouttes de longueur considérée comme infinie (*i.e.* absence de ménisque arrière), l'épaississement du film peut varier avec le nombre capillaire, et évoluer d'un épaississement *rolling* $4^{2/3}$ à *stress-free* 1 en passant par du *sliding* $2^{2/3}$, tout en conservant la condition d'un film plat au repos. Afin de déterminer si l'épaissisement sliding mesuré résulte d'une rigidification globale de l'interface de la goutte ou bien simplement de la contrainte de Marangoni exercée localement dans le ménisque dynamique, nous mettrons à profit les mesures de vitesse de gouttes en sous-section 5.3.4 du chapitre 5.

4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, trois topographies de film de lubrification ont été mesurées pour deux rapports de viscosités très différents ($\lambda < 1$ et $\lambda \simeq 1000$) et à différentes concentrations en tensioactifs. Dans tous les cas, la forme de catamaran, avec deux creux sur les côtés de la goutte, est présente. Pour des gouttes peu visqueuses se déplaçant dans une solution aqueuse très concentrée en tensioactifs section 4.1, la topographie expérimentale du film est reproduite quantitativement par le modèle *stress-free* de Burgess & Foster dans la région centrale, mais ce dernier sous-estime l'épaisseur du film sur les côtés de la goutte et ne reproduit pas l'importante bosse à l'arrière de la goutte. L'épaississement expérimental observé sur les côtés et à l'arrière de la goutte est attribué à des effets Marangoni induisant une rigidification de l'interface dans ces zones. A l'aide d'un modèle semi-empirique, la prise en compte de cette rigidification nous a permis de reproduire quantitativement l'oscillation de l'interface à l'arrière de la goutte.

La mesure de l'épaisseur du film pour des gouttes très visqueuses (voir section 4.2) montre qu'un modèle de type visqueux (cf. éq. (2.25) avec λ =972), équivalent au *sliding* (cf. éq. (2.27)) dans la gamme de nombres capillaires expérimentale, parvient à reproduire la topographie expérimentale à haut nombre capillaire. En revanche, lorsque le nombre capillaire diminue, les effets de pression de disjonction tendent à faire saturer l'épaisseur du film à une valeur donnée. Cet effet se faisant d'abord sentir sur les côtés de la goutte à mesure que le nombre capillaire diminue, le modèle tend à sous-estimer l'épaisseur du film dans ces zones.

Pour finir, il a été mis en évidence en section 4.3 que les effets Marangoni à l'interface d'une goutte d'huile peu visqueuse se déplaçant dans une solution aqueuse faiblement concentrée en tensioactifs, pouvait donner lieux à un épaississement du film par rapport au cas *stress-free*, et ce, en tout point de l'interface. Il a été montré que l'épaisseur au centre de la goutte est bien décrite par un épaississement de type *sliding* dans une large gamme de nombres capillaires, mais qu'en dehors de cette gamme, l'épaisseur du film semble tendre vers un épaississement de type *rolling* à haut nombre capillaire. Globalement, la topographie expérimentale est bien décrite par un modèle de type *sliding* (cf. (2.27)).

Au regard des résultats obtenus, nous mettons en évidence que l'épaisseur du film de lubrification est complexe et peut montrer des effets locaux qui ne permettent pas de décrire la topographie en considérant des propriétés interfaciales homogènes. Dans le chapitre suivant, nous étudions la mobilité des gouttes en prenant en compte l'ensemble des propriétés complexes décrites dans ce chapitre.

Synthèse - Chapitre 4

- Mesure de topographies de films de lubrification pour deux rapports des viscosités et différentes concentrations en tensioactifs
  1. Forme de catamaran retrouvée dans tous les cas : deux creux sur les côtés de la goutte.
- Topographie du film pour une goutte peu visqueuse ($\lambda = 0.26$) dans une solution très concentrée en tensioactifs (section 4.1)
  1. Comme $\lambda \ll Ca^{-1/3}$, la topographie expérimentale est comparée au modèle de Burgess & Foster.
  2. Le modèle reproduit quantitativement l'épaisseur du film dans la région centrale et la sous-évalue sur les côtés et à l'arrière de la goutte.
  3. Rigidification locale de l'interface sur les côtés et à l'arrière de la goutte.
  4. Prise en compte de cette rigidification dans un modèle empirique permettant de retrouver quantitativement l'oscillation expérimentale arrière.
- Topographie du film pour une goutte très visqueuse ($\lambda \simeq 1000$) (section 4.2)
  1. Saturation de l'épaisseur du film du fait de la pression de disjonction
  2. Topographie expérimentale bien reproduite par un modèle visqueux (cf. éq. (2.25) de la sous-section 2.2.4), proche du *sliding* (cf. éq. (2.27) de la sous-section 2.2.4) dans la gamme de nombres capillaires expérimentale.
- Topographie du film pour une goutte peu visqueuse ($\lambda = 0.64$) dans une solution faiblement concentrée en tensioactifs (section 4.3)
  1. Contrainte de Marangoni génère un épaississement du film par rapport au *stress-free* en tout point du film.
  2. La topographie expérimentale est bien décrite dans son intégralité par un modèle de type *sliding* (cf. éq. (2.27) de la sous-section 2.2.4).

Chapitre 5

Mobilité d'une goutte en géométrie de Hele-Shaw

Ce dernier chapitre est dédié à l'étude de la dynamique de bulles et gouttes pancake en géométrie de Hele-Shaw par la compréhension du lien existant entre les propriétés de l'interface (nature, topographie) et les mécanismes de dissipation visqueuse (friction) dans le film de lubrification.

Dans une première section, des mesures expérimentales de la mobilité (rapport entre la vitesse de la goutte et la vitesse de la phase externe U_d/U_f) de bulles et gouttes pour différents rapports de viscosités et concentrations en tensioactifs sont présentées. Une analyse de ces résultats expérimentaux permettra de dégager en particulier une dépendance de la vitesse de la bulle/goutte avec son rayon R, différente en fonction de λ et de la concentration en tensioactif.

Une seconde section sera consacrée à l'élaboration d'un *modèle général* pour la vitesse d'une goutte pancake en géométrie de Hele-Shaw. La mobilité théorique est alors déterminée en s'appuyant sur une modélisation de la topographie du film qui tient compte des effets (rigidification, saturation de l'épaisseur du film) mis en évidence expérimentalement au chapitre 4.

Dans la dernière section, la confrontation des résultats de cette approche théorique avec les données expérimentales révèlera que ce modèle est en mesure de reproduire la dynamique de systèmes limites en terme de rapport de viscosité ($\lambda < 1$ et $\lambda \simeq 1000$) dans lesquels les effets Marangoni sont absents ou bien suffisamment importants et localisés pour induire une totale rigidification de l'interface dans certaines zones quel que soit le nombre capillaire. En revanche, ce modèle est incapable de rendre compte de la dynamique complexe d'une goutte

dont l'interface est sujette à une contrainte de Marangoni dont l'intensité varie en fonction du point de l'interface, du nombre capillaire et du rayon de la goutte.

5.1 Relevés expérimentaux de la mobilité $\beta = U_d/U_f$ en fonction du nombre capillaire Ca

Pour analyser la dynamique de bulles et gouttes en géométrie de Hele-Shaw, des mesures de la mobilité $\beta = U_d/U_f$ en fonction du nombre capillaire $Ca = \eta_o U_d/\gamma$ ont été effectuées pour chaque couple de fluides listé dans le tableau 5.1. Il s'agit des mêmes couples de fluides qu'au chapitre 4, auxquels nous avons ajouté le cas d'une bulle sans tensioactif se déplaçant dans de l'huile fluorée. Dans ce cas, la topographie n'a pas été mesurée par RICM, mais comme l'élément responsable de l'écart entre les topographies expérimentales et les modèle hydrodynamiques, le tensioactif, est absent, on s'attend à ce que la topographie expérimentale sous la bulle soit bien décrite par le modèle de Burgess & Foster. Pour chaque solution, la mobilité a été mesurée à différents rayons de bulle/goutte (voir Fig. 5.1).

Phase dispersée	Phase continue	[Tensioactif](mM)	[NaCl](mM)	λ	γ (mN/m)
air	huile fluorocarbonée FC-40	0	0	4.5×10^{-3}	15
C6F14 (FC-72)	eau MilliQ +C10TAB+NaCl	990	1000	0.26	15
huile silicone (V1000)	eau MilliQ +SDS+NaCl	16.2	100	972	7
C6F14 (FC-72)	eau MilliQ +SDS+NaCl	0.82	200	0.64	14

TABLE 5.1: Couples de fluides utilisés dans ce travail. La concentration en tensioactifs et en NaCl ainsi que le rapport de viscosité λ et la tension superficielle sont indiqués.

La première série de mesures présente la mobilité de bulles dans de l'huile fluorocarbonée (FC-40) sans tensioactif (voir Fig. 5.1.a) pour trois rayons de bulle différents. Quelle que soit la valeur du rayon de la bulle, la mobilité croît avec le nombre capillaire. D'autre part, on constate qu'à nombre capillaire fixé, la mobilité augmente avec le rayon de la bulle. *Ainsi, plus la bulle est large, moins le gradient de pression à appliquer pour lui communiquer une vitesse donnée est important.* Cette dépendance de la mobilité avec le rayon de la bulle sera démontrée en sous-section 5.3.1. La loi de Taylor & Saffman qui prévoit $\beta = U_d/U_f = 2$ surestime donc nos données expérimentales et ne reproduit pas la dépendance de la mobilité avec le rayon de la bulle et le nombre capillaire.

Le deuxième jeu de données en Fig. 5.1.b, représente la mobilité de gouttes d'huile fluorée C6F14 dans une solution aqueuse de C10TAB très concentrée (c_{C10TAB} =990 mM) et NaCl (cf. troisième ligne du tableau 5.1). La topographie du film de lubrification pour ce couple de solutions a été analysée en section 4.1 du chapitre 4. Comme pour les bulles, la mobilité croît avec Ca et, à nombre capillaire donné, celle-ci augmente avec le rayon de la goutte. On voit sur les Fig. 5.1.a et .b, qu'à nombre capillaire et rayon égaux, par exemple $Ca = 10^{-3}$ et R =100 μm, la mobilité d'une goutte peu visqueuse dans une solution de tensioactifs très concentrée est du même ordre de grandeur, quoique légèrement inférieure (β =0.8), à celle

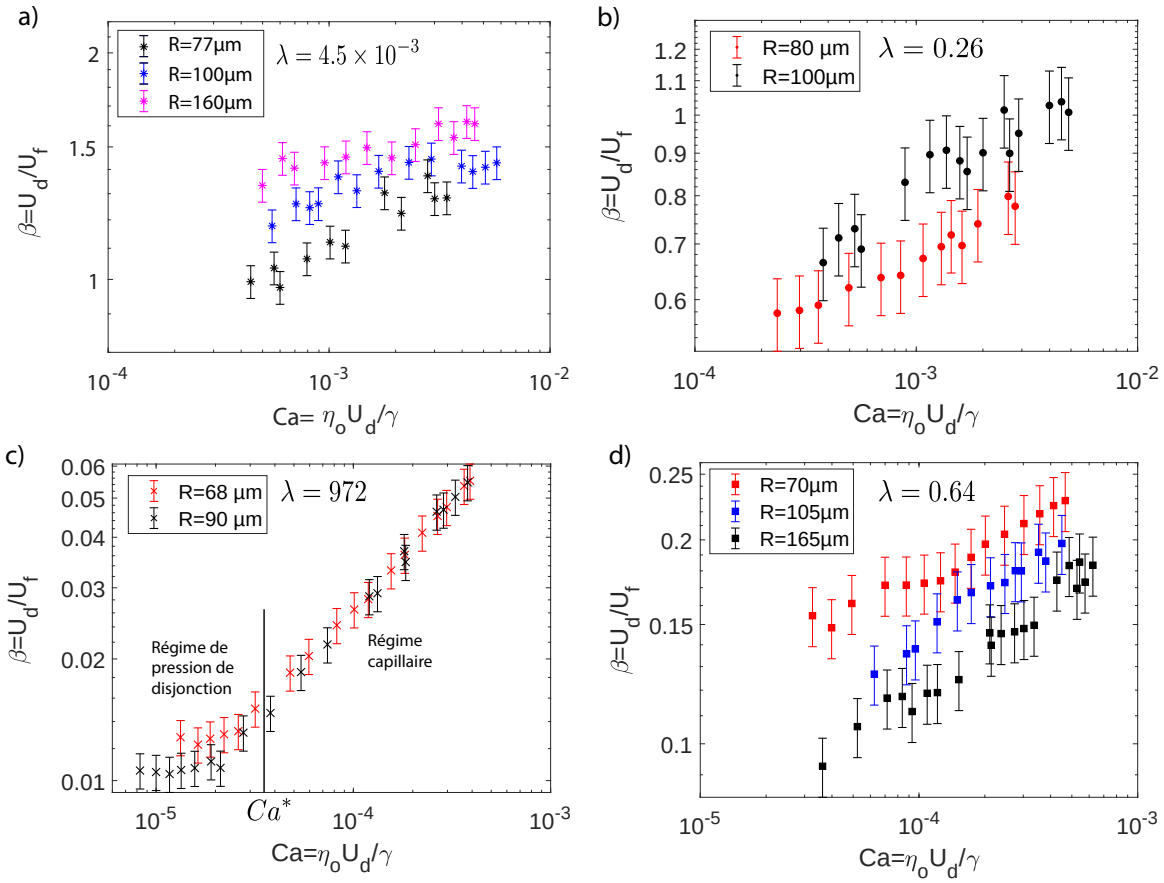

FIGURE 5.1: **(a)** Mobilité en fonction du nombre capillaire pour des bulles d'air dans de l'huile fluorocarbonée FC-40 (λ =4.5×10^{-3}) (cf. deuxième ligne du tableau 5.1). Trois rayons de bulle sont mesurés ; **(b)** Mobilité en fonction de Ca pour des gouttes de C6F14 dans une solution aqueuse de C10TAB et NaCl (λ = 0.26) (cf. troisième ligne du tableau 5.1) ; **(c)** Mobilité en fonction de Ca pour des gouttes d'huile silicone dans une solution aqueuse de SDS et NaCl (λ = 972) (cf. quatrième ligne du tableau 5.1) ; **(d)** Mobilité en fonction de Ca pour des gouttes de C6F14 dans une solution aqueuse de SDS et NaCl (λ = 0.64) (cf. cinquième ligne du tableau 5.1).

d'une bulle dans de l'huile (β =1.2). Le fait qu'il soit plus difficile de déplacer une goutte, même de faible viscosité, dans une solution de tensioactifs par rapport à une bulle dans de l'huile révèle la présence d'une friction plus importante dans le système.

Dans le cas extrême où la goutte est très visqueuse (λ =972), la friction dans le système est telle que la mobilité devient deux ordres de grandeur inférieure au cas bulle (voir Fig. 5.1.c et .a pour $Ca = 5 \times 10^{-4}$). *On constate alors que la mobilité ne dépend plus du rayon de la goutte.* On retrouve les deux régimes (régime de pression de disjonction et régime capillaire) déjà mis en évidence dans la mesure de la topographie du film pour ce couple de fluides (cf. quatrième ligne du tableau 5.1) en section 4.2 du chapitre 4. La saturation de l'épaisseur du

film de lubrification entraîne donc une saturation de la mobilité de la goutte pour un nombre capillaire de l'ordre de $Ca^* \simeq 3.5 \times 10^{-5}$.

Pour finir, la Fig. 5.1.d montre la mobilité de gouttes peu visqueuses ($\lambda = 0.64$) dans une solution aqueuse de SDS faiblement concentrée (c_{SDS} =0.82 mM) et NaCl (cf. cinquième ligne du tableau 5.1). Il est frappant de constater qu'à même rapport de viscosité ($\lambda \simeq 0.5$), la mobilité d'une goutte peut être diminuée d'un ordre de grandeur lorsqu'on diminue la concentration en tensioactifs (voir Fig. 5.1.b et .d). Au chapitre 4 en section 4.3, la mesure de la topographie du film pour le couple de fluides correspondant à la Fig. 5.1.d a montré, qu'à faible concentration, la présence de tensioactifs est capable de générer un épaississement de type *sliding* alors que le rapport de viscosité est faible. La contrainte de Marangoni supplémentaire à l'interface a donc pour effet d'épaissir le film d'une part mais aussi d'induire de la friction supplémentaire dans le système. Un autre effet de ces contraintes interfaciales supplémentaires est d'inverser le sens de variation de la mobilité avec le rayon de la goutte, puisqu'on voit qu'à nombre capillaire fixé, la mobilité décroît avec le rayon de la goutte lorsque la solution est faiblement concentrée en tensioactifs (voir Fig. 5.1.d) alors qu'elle croissait pour une solution très concentrée (voir Fig. 5.1.b).

Toutes ces observations nous montrent que la mobilité d'une goutte est à la fois dépendante de sa taille, de sa viscosité, et des propriétés physico-chimiques de son interface par l'intermédiaire de la concentration en tensioactifs dans la phase externe. Dans la section suivante, nous allons établir un modèle théorique de la mobilité purement hydrodynamique, c'est à dire sans tenir compte d'effets tels que la pression de disjonction ou bien des effets Marangoni à l'interface.

Dans la dernière section 5.3, la comparaison de ce modèle purement hydrodynamique avec les données expérimentales révèlera son efficacité à rendre compte de la mobilité de systèmes dans lesquels les effets supplémentaires mentionnés précédemment (pression de disjonction, effet Marangoni) sont absents ou négligeables devant les effets hydrodynamiques visqueux. Cette approche purement hydrodynamique permettra de comprendre dans quelle zone du système la dissipation visqueuse dominante est localisée en fonction du rapport de viscosités et la dépendance de la mobilité avec le rayon de la goutte en résultant. Cependant, pour les systèmes dans lesquels des effets additionnels, tels que la pression de disjonction et/ou des effets Marangoni sont présents, le modèle purement hydrodynamique de la mobilité devra être modifié, en tenant compte des caractériqtiques du film de lubrification mesuré en chapitre 4 (rigidification à l'arrière de la goutte, effet de saturation de l'épaisseur du film), afin de reproduire les données expérimentales de mobilité.

5.2 Mobilité théorique d'une goutte pancake

5.2.1 Relation formelle entre la mobilité et la dissipation visqueuse dans le système

On s'intéresse maintenant à la modélisation de la vitesse d'une goutte pancake se déplaçant dans une cellule de Hele-Shaw. Pour rappel, la stationnarité des écoulements, ainsi que la petitesse des dimensions de la puce microfluidique et de la vitesse caractéristique, permettent de décrire le mouvement du fluide par l'équation de Stokes (cf. chapitre 1). Notre approche est basée sur une méthode proposée par Dangla [6] consistant à équilibrer la puissance injectée avec le taux de dissipation visqueuse dans un volume de contrôle cylindrique Ω, de hauteur $2H_o$ et de rayon $(R + H_o)$ autour de la goutte (voir Fig. 5.2.a). Plus spécifiquement, la puissance fournie par le tenseur des contraintes externes (*i.e.* contraintes de pression et visqueuses) W, à la frontière de Ω, est égale au taux de dissipation visqueuse D_Ω dans le volume de Ω :

$$W = D_\Omega \tag{5.1}$$

La repère $(O, \mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z)$ est attaché à la goutte dont le mouvement est étudié dans le référentiel de la paroi du canal. Les écoulements sont décrits en coordonnées cylindriques (ρ, θ, z) d'axe polaire (Ox) (voir Fig. 5.2.a). L'interface de la goutte est divisée en trois zones : le film plat I, le ménisque dynamique III et le ménisque statique II. Chacune de ces zones est divisée en une région interne (indice i) et externe (indice o) à la goutte (voir Fig. 5.2.b). On appelle $U_{\text{int}}\mathbf{e}_x$ la vitesse interfaciale dans la région I dans le référentiel de la paroi (voir Fig. 5.2.b). Sa nature unidirectionnelle, ainsi que son expression, $U_{\text{int}}(y) = \frac{3\lambda U_d}{3\lambda + H_o/h_\infty(y)}$ sont justifiées en Annexe F.

Le volume de contrôle Ω est divisé en sous-volumes en fonction de l'approximation utilisée pour décrire l'écoulement : Ω_1 est un cylindre de rayon $(R - H_o)$ et de hauteur $2H_o$, incluant l'écoulement dans le corps de la goutte (région I_i), le film plat (région I_o) et les régions interne (III_i) et externe (III_o) du ménisque dynamique, Ω_2 est une couronne d'épaisseur et de hauteur $2H_o$ incluant l'écoulement 3D proche de l'interface de la goutte. A l'extérieur de Ω (*i.e* au moins à une distance d'ordre H_o de l'interface de la goutte), le champ des vitesses lointain est donné par l'approximation de Hele-Shaw [51] :

$$\mathbf{u}_{||} = \frac{3}{2}\frac{z(2H_o - z)}{H_o^2}\mathbf{V}_{||} = -\frac{z(2H_o - z)}{2\eta_o}\mathbf{grad}_{||}(p_{out}) \tag{5.2}$$

où $p_{out} = p_{out}(\rho, \theta)$ est le champ de pression externe et l'indice $||$ désigne la composante vectorielle dans le plan (xOy). $\mathbf{V}_{||} = -\frac{H_o^2}{3\eta_o}\mathbf{grad}_{||}(p_{out})$ est la moyenne du champ des vitesses sur l'épaisseur de la cellule de Hele-Shaw.

Il reste maintenant à déterminer W et D_Ω. Nous commençons par établir l'expression de la puissance fournie à Ω, W, puis dans un second temps, nous détaillerons les contributions à la dissipation visqueuse totale provenant des différentes zones du système.

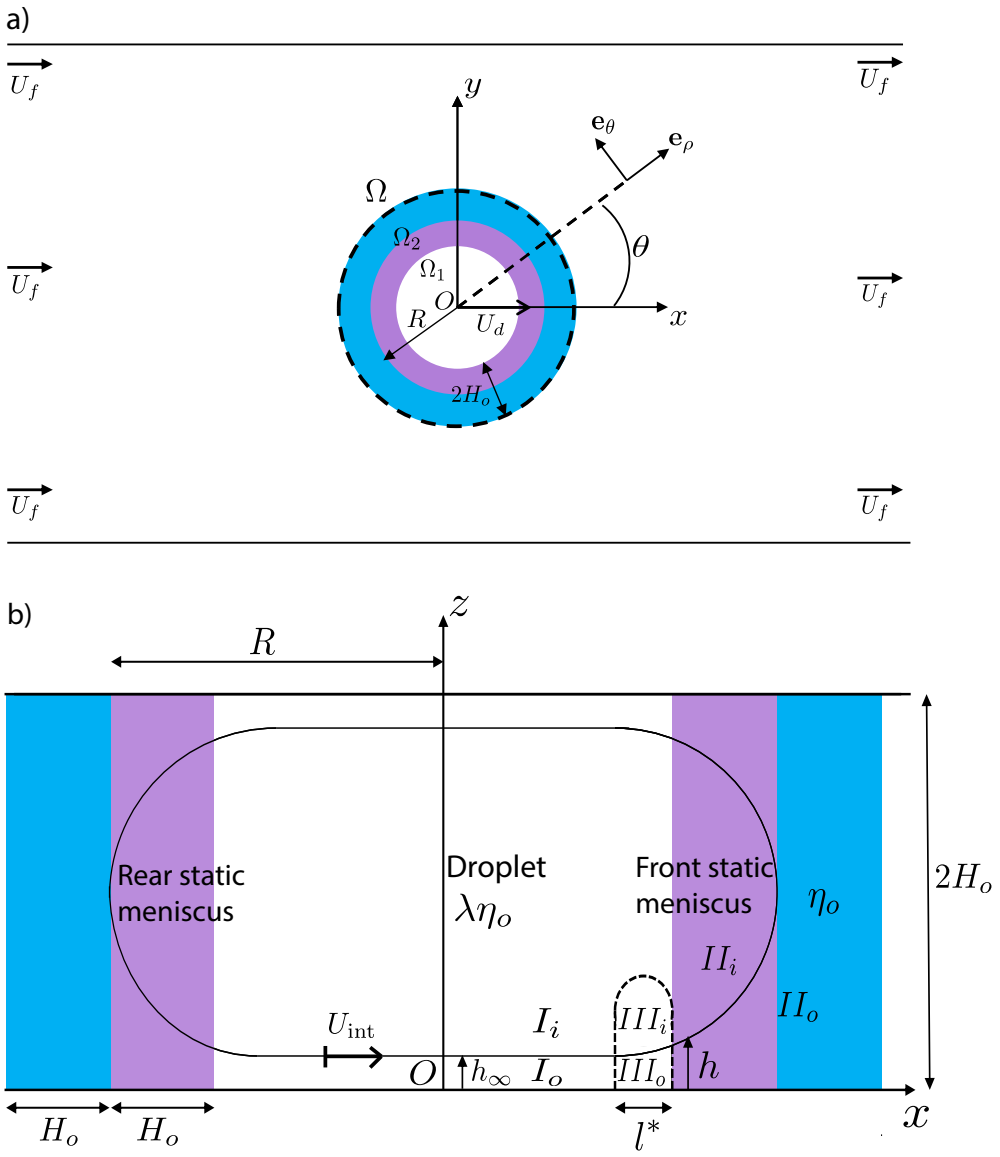

FIGURE 5.2: **(a)** Coupe de la goutte dans le plan d'équation $z = H_o$. L'équilibre entre la puissance injectée et la puissance dissipée est effectué au sein du volume de contrôle Ω de rayon $(R + H_o)$ autour de la goutte (tirets noirs) ;**(b)** Coupe de la goutte dans le plan d'équation $y = 0$.

Puissance fournie à Ω par le tenseur des contraintes

Nous commençons par établir les champs de pression et des vitesses à l'extérieur de Ω. L'équation de Hele-Shaw (5.2) montre que l'écoulement externe est un écoulement potentiel 2D où la vitesse moyenne $\mathbf{V}_{||}$ s'exprime comme le gradient du potentiel $\psi = -\frac{H_o^2}{3\eta_o} p_{out}$. Dans ce contexte, le champ des vitesses lointain est la superposition d'un écoulement uniforme de vitesse $U_f\,\mathbf{e}_x$ loin de la goutte de potentiel $\psi_1 = U_f \rho\cos(\theta)$, et d'une perturbation dipolaire de moment $\mathbf{m} = 2\pi R^2(U_d - U_f)\,\mathbf{e}_x$ et de potentiel $\psi_2 = -\frac{\mathbf{m}.\mathbf{e}_\rho}{2\pi\rho}$ au voisinage de la goutte [52][13] :

$$\mathbf{V}_{||}(\rho,\theta) = V_\rho(\rho,\theta)\,\mathbf{e}_\rho + V_\theta(\rho,\theta)\,\mathbf{e}_\theta$$

avec

$$\begin{aligned} V_\rho(\rho,\theta) &= U_f\cos(\theta) - (U_f - U_d)\,\frac{R^2}{\rho^2}\cos(\theta) \\ V_\theta(\rho,\theta) &= -U_f\sin(\theta) - (U_f - U_d)\,\frac{R^2}{\rho^2}\sin(\theta) \end{aligned} \tag{5.3}$$

et le champ de pression extérieur s'écrit

$$p_{out}(\rho,\theta) = -\frac{3\eta_o}{H_o^2}\left[\rho\,U_f\cos(\theta) + (U_f - U_d)\,\frac{R^2}{\rho}\cos(\theta)\right]$$

Dans notre étude $H_o \ll R$, et ces équations montrent que les contraintes visqueuses normale et tangentielle, s'exercant sur la surface latérale S du volume de contrôle en $\rho = R + H_o$, sont plus faibles que le champ de pression d'un ordre $(H_o/R)^2$. Pour $H_o \ll R$, on pourra donc approcher W par la puissance délivrée par le seul champ de pression externe à la frontière du volume de contrôle :

$$\begin{aligned} W &= -\int_S p_{out}(R+H_o,\theta)\mathbf{u}_{||}(R+H_o,\theta)\,\mathrm{d}\mathbf{S} \\ &= \frac{6\eta_o\pi(R+H_o)^2}{H_o}\left[U_f^2 - (U_f - U_d)^2\left(\frac{R}{R+H_o}\right)^4\right] \end{aligned}$$

On peut simplifier davantage cette dernière expression en l'écrivant à l'ordre dominant en (H_o/R) :

$$W \simeq \frac{6\eta_o\pi R^2}{H_o}(2U_f - U_d)U_d \tag{5.4}$$

En égalisant alors W et D_Ω, on obtient une expression formelle pour β :

$$\boxed{\beta = \frac{U_d}{U_f} = \frac{2}{1 + \dfrac{H_o\eta_o}{6R^2Ca^2\gamma^2\pi}D_\Omega}} \tag{5.5}$$

où γ est la tension superficielle et $Ca = \eta_o U_d/\gamma$ le nombre capillaire. Cette expression se réduit à la mobilité de Taylor & Saffman lorsque D_Ω n'est pas pris en compte.

L'équation (5.5) montre qu'en déterminant D_Ω il est possible de connaître l'évolution de β avec Ca.

5.2.2 Détermination de la dissipation totale dans le volume de contrôle

La partie délicate de cette étude consiste à évaluer le taux de dissipation visqueuse totale D_Ω dans le volume de contrôle Ω. L'expression générale du taux de dissipation pour un écoulement visqueux est rappelée en Annexe E. Pour évaluer la dissipation totale nous commençons par établir des lois d'échelle pour les différentes contributions à cette dissipation afin de savoir lesquelles sont les plus importantes. Ensuite ces contributions seront déterminées numériquement à l'aide du profil théorique de la topographie de l'interface.

5.2.2.1 Lois d'échelle des contributions à D_Ω

Dans un premier temps D_Ω est divisée en deux contributions provenant des deux sous-domaines Ω_1 et Ω_2 :

$$D_\Omega = D_{\Omega_2} + D_{\Omega_1}$$

Ω_2 comprend les écoulements localisés au voisinage de l'interface sur une couche interne (rose) et externe (bleu) à la goutte d'épaisseur caractéristique H_o (voir Fig. 5.2). La complexité des écoulements dans cette région empêche tout calcul simple du champ des vitesses et donc du taux de dissipation D_{Ω_2}. Cependant une loi d'échelle peut être déterminée pour D_{Ω_2}. Pour cela, on décompose cette dissipation en deux contributions : celle de la région interne du ménisque statique D_{II_i} et celle de la région externe du ménisque statique D_{II_o}.

$$D_{\Omega_2} = D_{II_i} + D_{II_o}$$

Evaluons ces deux contributions. Le cisaillement établi dans le corps de la goutte $(U_d - U_{\text{int}})/H_o$ s'étend au ménisque statique (région II_i) de volume $\pi R H_o^2$, de façon à ce que l'ordre de grandeur de la dissipation dans la région II_i soit

$$D_{II_i} \sim \lambda \eta_o \pi R U_d^2 \left(1 - \frac{U_{\text{int}}}{U_d}\right)^2 \tag{5.6}$$

Dans la zone II_o, le cisaillement est d'ordre U_d/H_o et le volume d'ordre $\pi R H_o^2$, ce qui implique que la dissipation visqueuse dans cette région est d'ordre

$$D_{II_o} \sim \pi \eta_o R U_d^2 \tag{5.7}$$

Ω_1 comprend le corps de la goutte (région I_i), le film "plat" (région I_o) et les deux régions interne (III_i) et externe (III_o) du ménisque dynamique. Afin d'évaluer D_{Ω_1}, ce taux de dissipation est divisé en contributions provenant des différentes zones mentionnées :

$$D_{\Omega_1} = D_{I_i} + D_{I_o} + D_{III_i} + D_{III_o}$$

Montrons que $D_{\Omega_2} \ll D_{\Omega_1}$ en évaluant en ordre de grandeur les contributions de D_{Ω_1}.

Dans le corps de la goutte (I_i), le cisaillement est d'ordre $(U_d - U_{\text{int}})/H_o$ et le volume d'ordre $V_{I_i} \sim \pi R^2 H_o$, ce qui donne :

$$D_{I_i} \sim \frac{\lambda \eta_o \pi R^2 U_d^2}{H_o} \left(1 - \frac{U_{\text{int}}}{U_d}\right)^2 \tag{5.8}$$

Dans le film plat (I_o), le cisaillement est d'ordre U_{int}/h_∞ et le volume d'ordre $V_{I_o} \sim \pi R^2 h_\infty$, ce qui donne :

$$D_{I_o} \sim \frac{\eta_o \pi R^2 U_d^2}{h_\infty} \left(\frac{U_{\text{int}}}{U_d}\right)^2 \tag{5.9}$$

Dans la région (III_i), la variation caractéristique de vitesse est d'ordre $v_b \sim U_d/(1 + \lambda \frac{h_\infty}{l^*})$ (voir sous-section 2.1.2 du chapitre 2) et s'effectue sur une distance l^*, par conséquent, le cisaillement est d'ordre v_b/l^*. Comme le volume de cette région est d'ordre $V_{III_i} \sim \pi R {l^*}^2$, on obtient :

$$D_{III_i} \sim \pi \lambda \eta_o R U_d^2 / \left(1 + \frac{\lambda h_\infty}{l^*}\right)^2$$

Par ailleurs la continuité de la courbure entre le ménisque dynamique et le ménisque statique donne $\frac{\partial^2 h}{\partial \rho^2} \sim \frac{h_\infty}{{l^*}^2} \sim \frac{1}{H_o}$ et on peut alors exprimer la dissipation dans la région III_i sous la forme

$$D_{III_i} \sim \pi \lambda \eta_o R U_d^2 / \left(1 + \lambda \sqrt{\frac{h_\infty}{H_o}}\right)^2 \tag{5.10}$$

Dans la région (III_o), le taux de cisaillement est d'ordre U_d/h_∞ et son volume d'ordre $\pi R l^* h_\infty$, ce qui donne pour D_{III_o} :

$$D_{III_o} \sim \eta_o \left(\frac{U_d}{h_\infty}\right)^2 \pi R l^* h_\infty$$

Par ailleurs la continuité de la courbure entre le ménisque dynamique et le ménisque statique donne $\frac{\partial^2 h}{\partial \rho^2} \sim \frac{h_\infty}{{l^*}^2} \sim \frac{1}{H_o}$ et on peut alors exprimer la dissipation dans la région III_o sous la forme

$$D_{III_o} \sim \eta_o U_d^2 \pi R \sqrt{\frac{H_o}{h_\infty}} \tag{5.11}$$

Ces lois d'échelle montrent que D_{II_i} est d'un ordre (H_o/R) plus faible que D_{I_i} et que D_{II_o} est d'un ordre $\sqrt{\frac{h_\infty}{H_o}}$ plus faible que D_{III_o}, par conséquent, la principale contribution au taux de dissipation visqueuse dans Ω provient de Ω_1 :

$$\boxed{D_\Omega \simeq D_{\Omega_1}}$$

D'autre part, au sein de la dissipation D_{Ω_1} on peut négliger D_{III_i} puisque en se servant de l'expression de $U_{\text{int}} = \frac{3\lambda U_d}{3\lambda + H_o/h_\infty}$, on voit que

$$\frac{D_{III_i}}{D_{I_i}} \sim \frac{H_o}{R} \frac{1}{\left(1+\lambda\sqrt{\frac{h_\infty}{H_o}}\right)^2 \left(\frac{H_o/h_\infty}{3\lambda+H_o/h_\infty}\right)^2} \ll 1$$

En définitive la dissipation totale dans le volume de contrôle Ω peut être approchée par

$$\boxed{D_\Omega \simeq D_{I_i} + D_{I_o} + D_{III_o}} \tag{5.12}$$

On voit alors qu'en déterminant les trois contributions D_{I_i}, D_{I_o} et D_{III_o}, il est possible de connaître l'évolution de β avec Ca. La méthode d'évaluation de ces trois contributions à partir de la topographie théorique du film de lubrification est détaillée dans la prochaine sous-section.

5.2.3 Détermination numérique de la dissipation visqueuse D_Ω grâce à la topographie théorique du film

Pour calculer D_{I_i} et D_{I_o} nous faisons des hypothèses sur les écoulements dans le corps de la goutte et dans le film plat. Dans le corps de la goutte, la condition $R \gg H_o$ permet d'approcher le champ des vitesses par un champ contenu dans le plan (Oxy) dont la variation est lente suivant x et y par rapport à sa variation selon z (cf. approximation de Hele-Shaw). D'autre part, il a été montré expérimentalement [25] que pour $R \gg H_o$, l'écoulement au sein de la goutte est quasiment unidirectionnel (selon l'axe x) avec une vitesse moyennée sur l'épaisseur de la cellule uniforme. On considère alors l'écoulement à l'intérieur de la goutte comme un écoulement de Poiseuille dans la direction x, dont la moyenne sur l'épaisseur de la cellule est uniforme et égale à U_d dans le référentiel de la paroi. En particulier, on appelle $U_{\text{int}}\,\mathbf{e}_x$ la vitesse interfaciale dans la région I. Dans le film plat, la petitesse de l'ordre de grandeur de l'épaisseur du film de lubrification par rapport aux autres longueurs du problème ($h_\infty \ll H_o \ll R$), permet de considérer l'écoulement dans cette région comme un écoulement de Couette unidirectionnel suivant l'axe x. La détermination des champs des vitesses selon x, u_i et u_o, respectivement à l'intérieur de la goutte (région I_i) et dans le film plat (région I_o), a été effectuée en Annexe F. Leur expression permet alors de calculer D_{I_i} et D_{I_o}. En notant V_{I_o} et V_{I_i} les volumes du film plat et de l'intérieur de la goutte, on obtient :

$$D_{I_o} = \eta_o \int_{V_{I_o}} \left(\frac{\partial u_o}{\partial z}\right)^2 \mathrm{d}V = \frac{2\gamma^2 Ca^2}{\eta_o} \int_0^{(R-H_o)} \int_0^{2\pi} \left(\frac{3\lambda}{3\lambda h_\infty + H_o}\right)^2 h_\infty \rho \, d\rho \, d\theta \tag{5.13}$$

$$D_{I_i} = \lambda\eta_o \int_{V_{I_i}} \left(\frac{\partial u_i}{\partial z}\right)^2 \mathrm{d}V = \frac{6\lambda\gamma^2 Ca^2 H_o}{\eta_o} \int_0^{(R-H_o)} \int_0^{2\pi} \frac{\rho}{(3\lambda h_\infty + H_o)^2} d\rho\, d\theta \tag{5.14}$$

Dans ces deux contributions à la dissipation totale, h_∞ représente l'épaisseur du film plat ne dépendant que de y. Cette épaisseur est déterminée par la résolution de l'équation du film de lubrification (2.13).

Nous évaluons maintenant le taux de dissipation dans le ménisque dynamique. Dans cette région, l'approximation de lubrification permet de négliger les variations radiale et orthoradiale du champ des vitesses devant ses variations suivant z. Nous pouvons alors approcher le taux de dissipation dans le ménisque dynamique par :

$$D_{III_o} = \eta_o \int_{V_{III_o}} \left[\left(\frac{\partial u_{o_\rho}}{\partial z}\right)^2 + \left(\frac{\partial u_{o_\theta}}{\partial z}\right)^2\right] dV$$

où V_{III_o} est le volume du ménisque dynamique et $(u_{o_\rho}, u_{o_\theta})$ sont les composantes radiale et orthoradiale du champ des vitesses dans le ménisque dynamique, données par le système d'équations (2.12). L'écriture des taux de cisaillement radial et orthoradial

$$\frac{\partial u_{o_\rho}}{\partial z} = -\frac{\gamma}{\eta_o}\frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3}(z - h/2) + \left[U_{III_\rho} + U_d\cos(\theta)\right]/h$$

$$\frac{\partial u_{o_\theta}}{\partial z} = -\frac{\gamma}{\eta_o \rho}\frac{\partial^3 h}{\partial \rho^2 \partial \theta}(z - h/2) + \left[U_{III_\theta} - U_d\sin(\theta)\right]/h$$

montre que, lorsque $H_o \ll R$, on peut négliger le premier terme du taux de cisaillement orhtoradial puisque le gradient orthoradial de courbure $\frac{1}{\rho}\frac{\partial^3 h}{\partial \rho^2 \partial \theta}$ est négligeable devant le gradient radial $\frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3}$. Le taux de dissipation dans le ménisque dynamique s'écrit alors :

$$D_{III_o} = \eta_o \int_{V_{III_o}} \left[-\frac{\gamma}{\eta_o}\frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3}(z - h/2) + \frac{U_{III_\rho} + U_d\cos(\theta)}{h}\right]^2 + \left[\frac{U_{III_\theta} - U_d\sin(\theta)}{h}\right]^2 dV \tag{5.15}$$

Dans les faits, pour calculer D_{III_o} on commence par se placer dans un des deux cas limites sur le rapport de viscosité (cf. chapitre 2) de façon à connaître l'expression de la vitesse interfaciale dans la région III, $\mathbf{U}_{III} = U_{III_\rho}\mathbf{e}_\rho + U_{III_\theta}\mathbf{e}_\theta$. Ceci permet de simplifier l'équation générale du film (2.13) que l'on résout. On se sert ensuite du profil théorique de l'interface pour calculer D_{III_o}.

Ce calcul est effectué en divisant, comme dans l'analyse de Burgess & Foster, le domaine d'intégration angulaire en trois zones, les ménisque avant/arrière et latéral, correspondant chacune à une contribution à la dissipation totale dans le ménisque dynamique. Dans la section suivante, nous allons évaluer numériquement les trois contributions D_{I_i} D_{I_o} et D_{III_o}

dans chacune des quatres configurations mentionnées dans le tableaux 5.1 et comparer la mobilité calculée numériquement aux données expérimentales.

Avant d'effectuer cette comparaison, nous établissons une expression de la mobilité en loi d'échelle sur la base de l'expression de W (éq. (5.4)) et des lois d'échelle pour D_{I_i} (éq. (5.8)) et D_{I_o} (éq. (5.9)) et D_{III_o} (éq. (5.11)). Cette expression de la mobilité en loi d'échelle permettra de mieux comprendre quelle contribution dissipative domine dans le système en fonction du rapport de viscosité et la dépendance de la mobilité avec le rayon de la goutte en résultant.

5.2.4 Expression de la mobilité en loi d'échelle

La loi d'échelle pour la mobilité est établie en remplaçant dans l'équation formelle de la mobilité (5.5), D_Ω par la somme des trois lois d'échelle pour D_{I_i}, D_{I_o} et D_{III_o}, on obtient :

$$\boxed{\beta = \frac{U_d}{U_f} \sim \frac{2}{1 + \underbrace{a\left(\frac{H_o}{R}\right)\left(\frac{h_\infty}{H_o}\right)^{-1/2}}_{\text{dissipation dans } III_o} + \underbrace{b\,\lambda\left(1 - \frac{U_{\text{int}}}{U_d}\right)^2}_{\text{dissipation dans } I_i} + \underbrace{c\left(\frac{h_\infty}{H_o}\right)^{-1}\left(\frac{U_{\text{int}}}{U_d}\right)^2}_{\text{dissipation dans } I_o}}} \tag{5.16}$$

où la vitesse interfaciale dans la région I, U_{int}, s'écrit

$$U_{\text{int}}(y) = \frac{3\lambda U_d}{3\lambda + H_o/h_\infty(y)}$$

La relation (5.16) montre que les rapports de viscosité λ et des longueurs (h_∞/H_o), notamment par l'intermédiaire de la vitesse interfaciale U_{int}, régissent la manière dont la dissipation visqueuse se répartit dans les régions I_i et I_o.

En se rappelant que la loi d'échelle pour l'épaisseur du film plat est $h_\infty \sim H_o Ca^{2/3}$, l'équivalence (5.16) peut être réécrite sous la forme :

$$\beta = \frac{U_d}{U_f} \sim \frac{2}{1 + \underbrace{a\left(\frac{H_o}{R}\right)Ca^{-1/3}}_{\text{dissipation dans } III_o} + \underbrace{b\lambda\left(1 - \frac{U_{\text{int}}}{U_d}\right)^2}_{\text{dissipation dans } I_i} + \underbrace{c\,Ca^{-2/3}\left(\frac{U_{\text{int}}}{U_d}\right)^2}_{\text{dissipation dans } I_o}} \tag{5.17}$$

Cette loi d'échelle pour la mobilité indique que lorsque la dissipation dans le ménisque dynamique (D_{III_o}) domine les deux autres contributions, alors β croît avec le rayon de la goutte à nombre capillaire fixé. Lorsque c'est la dissipation dans le film plat (D_{I_o}) et/ou la dissipation dans le corps de la goutte (D_{I_i}) qui dominent, alors β ne dépend plus du rayon de la goutte. Ce comportement s'explique par la dépendance quadratique de W (éq. (5.4)), D_{I_i} (éq. (5.8)) et D_{I_o} (éq. (5.9)) différente de la dépendance linéaire de D_{III_o} avec le rayon de la goutte.

5.3 Confrontation du modèle théorique aux données expérimentales de mobilité de gouttes

Nous confrontons à présent le modèle théorique présenté dans la section précédente aux données expérimentales sur la mobilité de bulle/goutte pour les quatres couples de solutions indiqués dans le tableau 5.1.

5.3.1 Mobilité d'une bulle

Dans le cas d'une bulle, le rapport de viscosité est d'ordre $\lambda \sim 10^{-2}$. Dans ce cas, la vitesse interfaciale dans la région I est négligeable devant U_d puisque $U_{\text{int}}/U_d \sim h_\infty/H_o \ll 1$. En utilisant les lois d'échelle pour D_{I_i} et D_{III_o} en y incorporant la loi pour U_{int}/U_d, on remarque que $D_{I_i} \ll D_{III_o}$ car :

$$\frac{D_{I_i}}{D_{III_o}} \sim \lambda \frac{R}{H_o}\sqrt{\frac{h_\infty}{H_o}} \sim 10^{-1} Ca^{1/3} \ll 1$$

où on a remplacé $R/H_o \sim$10 et $h_\infty/H_o \sim Ca^{2/3}$.

Le même raisonnement pour D_{I_o} et D_{III_o} indique que $D_{I_o} \ll D_{III_o}$ puisque leur rapport vérifie

$$\frac{D_{I_o}}{D_{III_o}} \sim \frac{R}{H_o}\sqrt{\frac{h_\infty^3}{H_o^3}} \sim 10\, Ca \ll 1$$

Ainsi, dans le cas d'une bulle, la dissipation dans le ménisque dynamique D_{III_o} domine les deux autres contributions dissipatives et il est cohérent de voir expérimentalement que la mobilité augmente avec le rayon de la bulle à nombre capillaire donné (voir Fig. 5.1.a). Pour le calcul numérique de la mobilité on ne considère que la contribution D_{III_o} (éq. (5.15)) qui est nettement supérieure aux deux autres. Pour la calculer, il est nécessaire de connaître l'expression de la vitesse interfaciale dans la région III. Dans le cas d'une interface *stress-free*, cette vitesse interfaciale s'obtient par la nullité des contraintes visqueuses tangentielles à l'interface et son expression est donnée par (cf. chapitre 2 équation (2.19))

$$\mathbf{U}_{III} = \left(-\frac{Ah^2}{2} - U_d\cos(\theta)\right)\mathbf{e}_\rho + \left(-\frac{A'h^2}{2} + U_d\sin(\theta)\right)\mathbf{e}_\theta$$

En remplaçant l'expression de cette vitesse dans l'équation (5.15) de D_{III_o}, on obtient à l'ordre dominant en H_o/R :

$$D_{III_o} = \frac{\gamma^2}{\eta_o}\int_{V_{III_o}} \left(\frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3}\right)^2 (z-h)^2 dV \tag{5.18}$$

Dans le cas d'une bulle, l'équation de l'interface est donnée par (2.20). En la résolvant numériquement on peut déterminer D_{III_o} et donc la variation de la mobilité avec le nombre

capillaire. En comparant le résultat de ce modèle théorique aux données expérimentales de mobilité de bulle (Fig. 5.3.a), *on constate un accord quantitatif entre la théorie et l'expérience sans paramètre d'ajustement dans toute la gamme de Ca et quel que soit le rayon de la bulle* . Dans la Fig. 5.3.a, le modèle de Taylor & Saffman est aussi indiqué par β_{TS} et montre qu'il surestime la mobilité expérimentale.

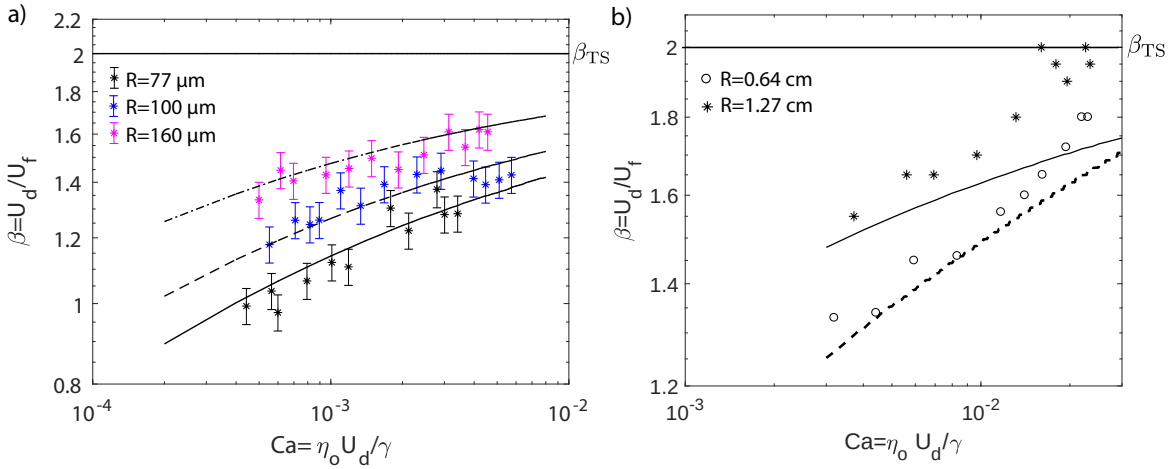

FIGURE 5.3: **(a)** Mesures expérimentales de mobilité β de bulle d'air dans de l'huile FC-40 en fonction du nombre capillaire pour trois rayons différents. La ligne noire horizontale est la solution de Taylor & Saffman [4]. Les lignes en tiret-pointillé, en tirets et en trait plein sont les courbes théoriques de la mobilité calculées à l'aide du modèle exposé en section 5.2 pour chaque rayon de bulle ; **(b)** Mesures expérimentale de mobilité de Maruvada & Park [9] pour des bulles dans de l'huile silicone ($2H_o = 1.8$ mm, $\gamma = 21$ mN/m, $\eta_o = 97$ mPa.s) pour deux rayons différents. La ligne noire horizontale est la solution de Taylor & Saffman [4]. Les lignes en tirets et en trait plein sont les courbes théoriques de la mobilité calculées pour les deux rayons de bulle.

Le modèle présenté a aussi été comparé aux données expérimentales de Maruvada & Park [9] de la mobilité de bulle d'air se déplaçant dans de l'huile silicone sans tensioactif (voir Fig. 5.3.b). Pour ce jeu de données également, on constate qu'à nombre capillaire fixé, la mobilité croît avec le rayon de la bulle. D'autre part, il apparaît que le modèle théorique de la mobilité présenté dans la section précédente reproduit quantitativement leurs données expérimentales pour $Ca \leq 10^{-2}$ et commence à les sous-estimer pour $Ca > 10^{-2}$. Cette écart résulte probablement d'une surestimation de la dissipation visqueuse dans le ménisque dynamique, liée à une sous-estimation de l'épaisseur du film dans notre modèle. En effet, l'établissement de l'équation du profil de l'interface, et donc la détermination de la valeur de l'épaisseur du film, est basé sur deux hypothèses : les termes inertiels peuvent être négligés dans l'équation de Navier-Stokes et l'approximation de lubrification est valide. Pour connaître l'importance des effets inertiels par rapport aux effets capillaire et visqueux, les nombres de Reynolds (effet inertiel/effet visqueux) Re et de Weber (effet inertiel/effet capillaire) We

sont évalués dans le ménisque dynamique dans la configuration de Maruvada & Park (masse volumique de l'huile silicone $\rho_{\text{sil}} = 10^3$ Kg/m^3, viscosité de l'huile silicone $\eta_o = 0.1$ Pa.s, tension superficielle $\gamma = 21$ mN/m, $U_d \sim 10^{-3}$ m/s et $H_o = 10^{-3}$ m) :

$$Re = \left(\frac{\rho_{\text{sil}} U_d^2}{l^*}\right) / \left(\frac{\eta_o U_d}{h_\infty^2}\right) \sim \frac{\rho U_d H_o}{\eta_o} \left(\frac{h_\infty}{H_o}\right)^{3/2} \sim 10^{-2} \left(\frac{h_\infty}{H_o}\right)^{3/2} \ll 10^{-2}$$

et

$$We = \left(\frac{\rho_{\text{sil}} U_d^2}{l^*}\right) / \left(\frac{\gamma h_\infty}{l^{*3}}\right) \sim \frac{\rho_{\text{sil}} U_d^2 H_o}{\gamma} = 5 \times 10^{-5}$$

Pour chaque nombre adimensionné, les équivalences successives découlent de la relation de continuité des courbures entre le ménisque dynamique et statique $\frac{h_\infty}{l^{*2}} \sim \frac{1}{H_o}$. La petitesse des nombres de Reynolds de Weber montre que les effets inertiels sont effectivement négligeables dans le système de Maruvada & Park et que donc la première hypothèse du modèle est bien vérifiée. En revanche l'approximation de lubrification est valide tant que $h_\infty (\propto Ca^{2/3}) \ll l^* (\propto Ca^{1/3})$, c'est-à-dire pour $Ca \leq 10^{-3}$. Pour des nombres capillaires supérieurs à cette valeur limite, comme c'est le cas chez Maruvada & Park, l'approximation de lubrification est susceptible de ne plus être vérifiée et des films d'épaisseur plus importante que celle prévue par l'équation (2.20) peuvent se développer.

5.3.2 Mobilité d'une goutte peu visqueuse dans une solution très concentrée en tensioactifs

La mobilité de gouttes de C6F14 dans une solution aqueuse de NaCl et de C10TAB (troisième ligne du tableau 5.1) a été mesurée pour deux rayons de goutte (voir Fig. 5.1.b). Comme pour les bulles, on voit que la mobilité augmente avec le rayon de la goutte à nombre capillaire fixé. Ce comportement s'explique encore par le fait que la contribution D_{III_o} domine D_{I_i} et D_{I_o}. En effet, pour ce système le rapport de viscosité vaut $\lambda \simeq 2 \times 10^{-1}$ et par conséquent, l'ordre de grandeur de la vitesse interfaciale dans la région I est encore $U_{\text{int}}/U_d \sim h_\infty/H_o \ll 1$. En utilisant les lois d'échelle pour D_{I_i} et D_{III_o} en y incorporant la loi pour U_{int}/U_d, on voit que :

$$\frac{D_{I_i}}{D_{III_o}} \sim \lambda \frac{R}{H_o} \sqrt{\frac{h_\infty}{H_o}} \sim 2\, Ca^{1/3} \leq 0.4$$

où on a remplacé $R/H_o \sim$10. La borne supérieure de l'inégalité est évaluée pour le nombre capillaire expérimental le plus grand $Ca \simeq 5 \times 10^{-3}$ (voir Fig. 5.1.b).

Le même raisonnement pour D_{I_o} et D_{III_o} indique que $D_{I_o} \ll D_{III_o}$ puisque leur rapport vérifie encore

$$\frac{D_{I_o}}{D_{III_o}} \sim \left(\frac{R}{H_o}\right) Ca \sim 10 Ca \ll 1$$

On remarque que par rapport au cas bulle, le rapport D_{I_i}/D_{III_o} est plus important, et dans le calcul numérique de la dissipation nous tiendrons compte des deux contributions D_{III_o} et D_{I_i}.

Pour ce rapport de viscosité $\lambda \sim 2 \times 10^{-1}$ la topographie du film de lubrification est théoriquement la même que celle sous une bulle puisque, pour $\lambda \ll Ca^{-1/3}$, l'interface peut être considérée comme *stress-free* et l'équation du film est la même que pour une bulle (cf. équation (2.20) du chapitre 2). Ainsi, en résolvant (2.20), on peut déterminer numériquement D_{III_o}, donnée par l'expression (5.18) (interface *stress-free*), et D_{I_i}, donnée par l'équation (5.14). Les courbes de la mobilité théorique en fonction du nombre capillaire sont tracées en trait plein sur la Fig. 5.4 : la courbe noire correpond à $R = 100$ μm et la rouge à $R = 80$ μm. On constate que la mobilité déterminée à partir d'une hypothèse d'interface *stress-free* en tout point surestime nos données expérimentales. Il y a donc une source de dissipation qui n'a pas été prise en compte.

Pour comprendre l'origine de cet écart, nous allons nous baser sur la topographie expérimentale du film de lubrification mesurée pour ce système et analysée en sous-section4.1 du chapitre 4. Il avait été mis en évidence que la topographie théorique *stress-free* de Burgess & Foster (cf. équation (2.20)) sous-estime l'épaisseur expérimentale dans le ménisque dynamique arrière où une importante bosse est observée expérimentalement. La présence de cette importante bosse est liée à l'accumulation de tensioactifs à l'arrière de la goutte qui génèrent une contrainte de Marangoni rigidifiant l'interface dans cette région. Afin de rendre compte de l'influence de cet effet sur la mobilité de la goutte, nous pouvons considérer en première approximation que l'interface dans le ménisque dynamique arrière est assimilable à une interface totalement rigide (*i.e. sliding*) dont le profil est donnée par l'équation (2.28) pour $\lambda = \infty$. Cette approximation se justifie par deux constatations. La première est la petitesse de la vitesse interfaciale $u_s^{\max}$ dans le référentiel de la goutte mesurée au sommet de la bosse, par rapport à U_d. Le rapport de ces deux vitesses vaut $u_s^{\max}/U_d \simeq -0.2$ (voir Fig. 4.7.c), ce qui montre qu'en direction de l'arrière de la goutte, passée la bosse, l'interface est quasiment rigide. La seconde constatation est que la valeur de l'épaisseur de la bosse expérimentale $h_{\max} \simeq 1.7 h_\infty$ (voir Fig. 4.7.b) est très proche de la valeur du film plat obtenue dans le cas *sliding*, $2^{2/3} h^{\mathrm{Breth}} = 1.59 h^{\mathrm{Breth}}$, puisque l'épaisseur du film plat expérimentale h_∞ est bien reproduite par h^{Breth} (voir Fig. 4.4.c). Pour déterminer la dissipation totale dans le ménisque dynamique on considère alors que l'interface est *stress-free* dans les ménisques avant et latéraux et rigide dans le ménisque dynamique arrière. Comme précédemment, on résout l'équation *stress-free* (2.20) pour calculer numériquement la dissipation visqueuse dans les ménisques avant et latéraux donnée par l'expression (5.18). Dans le ménisque dynamique arrière la condition *sliding* donne $U_{III_\rho} = U_{III_\theta} = 0$ et l'expression de la dissipation dans le volume $V_{III_o}^{\mathrm{arr}}$ du ménisque dynamique arrière s'écrit

$$D_{III_o}^{\mathrm{arr}} = \eta_o \int_{V_{III_o}^{\mathrm{arr}}} \left[-\frac{\gamma}{\eta_o} \frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3} (z - h/2) + \frac{U_d \cos(\theta)}{h} \right]^2 + \left[\frac{-U_d \sin(\theta)}{h} \right]^2 dV \tag{5.19}$$

Le calcul numérique de $D_{III_o}^{\mathrm{arr}}$ s'effectue alors en résolvant l'équation du profil de l'interface rigide dans le ménisque dynamique arrière (cf. équation (2.28) pour $\lambda = \infty$). Le résultat du calcul de la mobilité, en tenant compte de cette dissipation plus importante dans le ménisque dynamique arrière, est tracé en tirets sur la Fig. 5.4 pour les deux rayons de goutte (tirets noir pour $R = 100$ μm et rouge pour $R = 80$ μm). On voit que *la prise en compte de cette dissipation plus importante dans le ménisque dynamique arrière dans le modèle théorique de la mobilité, permet alors de reproduire quantitativement les données expérimentales. Ce résultat montre qu'une modification de la condition limite à l'interface, même locale, peut influencer de façon notable la mobilité d'une goutte.*

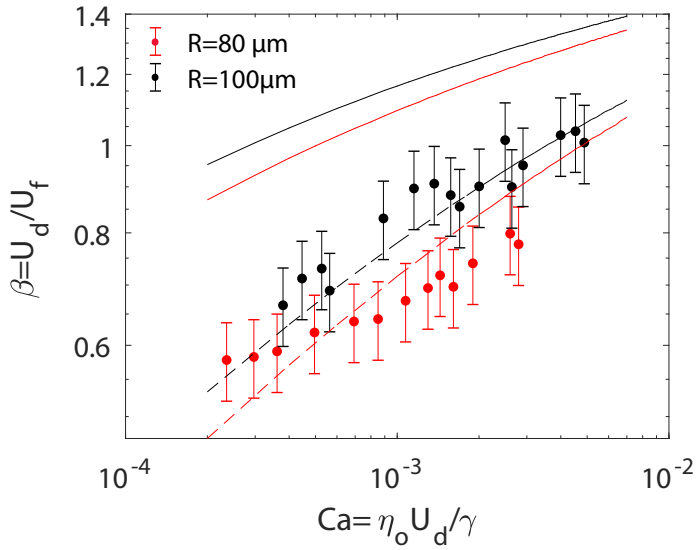

FIGURE 5.4: Mesures expérimentales de mobilité β de gouttes de C6F14 dans une solution aqueuse de NaCl et C10TAB en fonction du nombre capillaire pour deux rayons différents. Les lignes en trait plein (noire pour $R = 100$ μm, rouge pour $R = 80$ μm) sont les courbes de la mobilité théorique déterminées par un modèle considérant que toute l'interface de la goutte est *stress-free*. Les lignes en tiret (noire pour $R = 100$ μm, rouge pour $R = 80$ μm) sont les courbes de la mobilité théorique déterminées par un modèle considérant que l'interface est *stress-free* dans les ménisques dynamiques avant/ latéral et rigide dans le ménisque dynamique arrière

5.3.3 Mobilité d'une goutte très visqueuse

La mobilité de gouttes d'huile silicone (V1000) dans une solution aqueuse de NaCl et de SDS (quatrième ligne du tableau 5.1) a été mesurée pour deux rayons de goutte (voir Fig.

5.1.c). Comme nous l'avons déjà mentionné, deux régimes de variation de la mobilité sont présents dans ce système : le régime capillaire dans lequel β croît avec Ca, et le régime de pression de disjonction au sein duquel β est constant. La saturation de la mobilité à bas nombre capillaire ($Ca \leq Ca^* \simeq 3.5 \times 10^{-5}$) observée expérimentalement s'explique par la saturation de l'épaisseur du film de lubrification qui, comme on le voit dans l'expression (5.16), régit la valeur de la mobilité.

D'autre part, on voit que la mobilité ne dépend quasiment pas du rayon de la goutte à nombre capillaire fixé. Ce comportement s'explique par le fait que les contributions D_{I_i} et D_{I_o} dominent D_{III_o}. En effet, pour ce système le rapport de viscosité vaut $\lambda = 972$ et par conséquent la vitesse interfaciale dans la région I vérifie $U_{\text{int}}/U_d \sim 1$ et $\left(1 - \frac{U_{\text{int}}}{U_d}\right) \sim \frac{H_o}{\lambda h_\infty}$.

En utilisant les lois d'échelle pour D_{III_o} et D_{I_i} en y incorporant la loi pour $\left(1 - \frac{U_{\text{int}}}{U_d}\right)$, on voit que :

$$\frac{D_{I_i}}{D_{III_o}} \sim \frac{R}{H_o}\frac{1}{\lambda}\left(\frac{H_o}{h_\infty}\right)^{3/2} \sim \frac{R}{H_o}\frac{1}{\lambda Ca} \sim \frac{10^{-2}}{Ca} \gg 1$$

où on a remplacé $R/H_o \sim$10 et $h_\infty \sim H_o Ca^{2/3}$.

Le même raisonnement pour D_{I_o} et D_{III_o} indique que $D_{I_o} \gg D_{III_o}$ puisque leur rapport vérifie

$$\frac{D_{I_o}}{D_{III_o}} \sim \left(\frac{R}{H_o}\right)\sqrt{\frac{H_o}{h_\infty}} \sim \frac{10}{Ca^{1/3}} \gg 1$$

Pour cet important rapport de viscosité $\lambda = 972$, la topographie du film de lubrification est théoriquement décrite par l'équation (2.25) valable pour $\lambda \gg \left(\frac{h_f(\frac{\pi}{2})}{H_o}\right)^{-1/2}$ (pour H_o =7 μm et $h_f(\frac{\pi}{2}) \sim 10$ nm, $\left(\frac{h_f(\frac{\pi}{2})}{H_o}\right)^{-1/2} \sim 25$). Si l'on tient compte des trois contributions D_{I_i} , D_{I_o} et D_{III_o} pour le calcul de la dissipation, on commence par réexprimer D_{III_o} à l'aide de l'expression de la vitesse interfaciale $\mathbf{U}_{III}$ dans ce cas (cf. sous-section 2.2.4 du chapitre 2) :

$$U_{III_\rho} = U_{I_\rho} = \frac{-U_d\cos(\theta)}{1+3\lambda\epsilon_f(\theta)} \qquad U_{III_\theta} = U_{I_\theta} = \frac{U_d\sin(\theta)}{1+3\lambda\epsilon_f(\theta)}$$

où $\epsilon_f(\theta) = h_f(\theta)/H_o$ et $h_f(\theta)$ est l'épaisseur du film à la frontière entre les régions III et I.

La dissipation dans le ménisque dynamique (éq. (5.15)) devient :

$$D_{III_o} = \eta_o \int_{V_{III_o}} \left[-\frac{\gamma}{\eta_o}\frac{\partial^3 h}{\partial\rho^3}(z-h/2) + \frac{3\lambda\epsilon_f U_d\cos(\theta)}{h(1+3\lambda\epsilon_f)}\right]^2 + \left[\frac{-3\lambda\epsilon_f U_d\sin(\theta)}{h(1+3\lambda\epsilon_f)}\right]^2 dV \quad (5.20)$$

La résolution de l'équation du film de lubrification (2.25) permet alors de calculer numériquement D_{III_o}, D_{I_o}, D_{I_i} et de tracer la courbe théorique de la mobilité (trait continu bleu pour $R = 90$ μm et vert pour $R = 68$ μm) pour λ =972 en Fig. 5.5. On voit que le profil théorique reproduit quantitativement les données expérimentales dans le régime capillaire

pour $Ca > Ca^* \simeq 3.5 \times 10^{-5}$, mais a tendance à les sous-estimer dans le régime de pression de disjonction pour $Ca \leq Ca^*$. Cette sous-estimation est liée au fait que l'effet de saturation de l'épaisseur du film n'est pas pris en compte dans le calcul théorique de la mobilité.

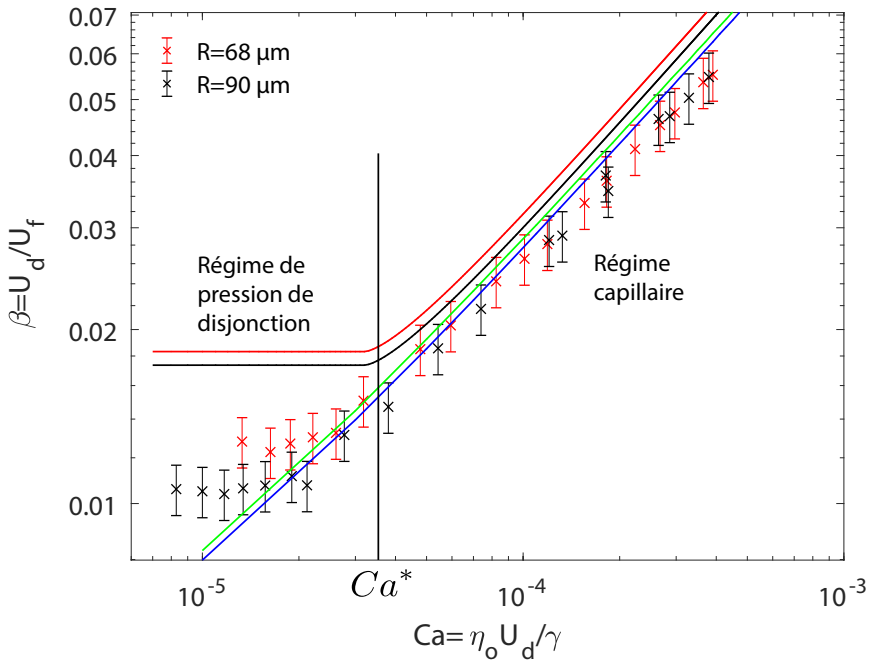

FIGURE 5.5: Mesures expérimentales de mobilité β de gouttes d'huile silicone (V1000) dans une solution aqueuse de NaCl et SDS en fonction du nombre capillaire pour deux rayons différents. Les lignes en trait plein bleu ($R = 90$ μm) et vert ($R = 68$ μm) sont les courbes de la mobilité théorique déterminées par un modèle considérant les trois contributions dissipatives D_{I_i}, D_{I_o} et D_{III_o}. Les lignes en trait plein noir ($R = 90$ μm) et rouge ($R = 68$ μm) sont les courbes de la mobilité théorique déterminées par un modèle considérant les deux contributions dissipatives D_{I_i} , D_{I_o} avec un cut-off sur l'épaissseur du film

Si l'on souhaite tenir compte de cet effet de saturation de l'épaisseur du film sur la mobilité, on peut dans une première approximation appliquer un simple "cut-off" à h_π =25 nm (voir Fig. 4.15) sur l'épaisseur du film dans le modèle. En ne considérant que les contributions dissipatives dominantes, D_{I_i} et D_{I_o}, dans le calcul de la mobilité, on obtient les lignes en trait plein noire ($R = 90$ μm) et rouge ($R = 68$ μm). On remarque que dans le régime capillaire, l'écart entre les deux modèles théoriques (avec ou sans prise en compte de la dissipation dans le ménisque dynamique) est faible, et on pourra négliger la contribution de la dissipation dans le ménisque dynamique pour modéliser la mobilité d'une goutte pour cet ordre de rapport de viscosité. D'autre part, on constate que le modèle reproduit la transition entre les deux régimes pour un nombre capillaire proche du nombre capillaire de transition expérimentale Ca^*, mais qu'il surestime la mobilité expérimentale dans le régime de pression de disjonction. Pour savoir si cet écart résulte de la négligeance de la dissipation visqueuse dans le ménisque dynamique,

il faudrait la calculer en trouvant le profil de l'interface dans cette région. L'épaisseur sature aussi dans le ménisque dynamique et la détermination du profil de l'interface dans cette région suppose alors d'utiliser une méthode de shooting numérique afin de trouver le profil de l'interface raccordée à une épaisseur fixée dans le film plat (h_π) et à une interface de courbure fixée $1/H_o$ dans le ménisque statique. Ce développement est un projet en cours et n'est pas présenté dans ce travail.

5.3.4 Mobilité d'une goutte peu visqueuse dans une solution peu concentrée en tensioactifs

Pour finir nous analysons la mobilité de gouttes d'huile fluorée C6F14 dans une solution aqueuse de NaCl et SDS (cinquième ligne du tableau 5.1). Une approche purement hydrodynamique (*i.e.* sans prendre en compte l'effet des tensioactifs à l'interface) montre que pour cette gamme de rapport de viscosités (λ =0.64), les dissipations visqueuses dans le film plat (D_{I_o}) et dans le corps de la goutte (D_{I_i}) sont négligeables devant celle dans le ménisque dynamique (D_{III_o}) et par conséquent, la mobilité devrait augmenter avec le rayon à nombre capillaire fixé. Or expérimentalment on observe le comportement inverse : la mobilité décroît avec le rayon de la goutte. Ce comportement, ainsi que la présence d'une topographie du film de lubrification de type sliding (cf. 4.3) pour un si faible rapport de viscosité, *souligne l'importance de l'effet de la contrainte interfaciale, liée à la présence des tensioactifs, sur la topographie du film et la mobilité de la goutte.*

Une première approche pour décrire la mobilité de la goutte consiste à supposer l'intégralité de l'interface comme rigide puisque ce cas donnerait effectivement lieu au développement d'une topographie de type *sliding*. Dans ce cas de figure, la vitesse interfaciale dans la région I dans le référentiel de la paroi vérifie $U_{\text{int}} = U_d$ et la vitesse interfaciale dans le référentiel de la goutte dans le ménisque dynamique vérife $U_{III_\rho} = U_{III_\theta} = 0$. La dissipation dans le corps de la goutte D_{I_i} est alors nulle, celle dans le ménisque dynamique D_{III_o} est donnée par l'expression (5.19), mais intégrée cette fois sur tout le volume du ménisque dynamique et D_{I_o} est donnée par l'expression (5.13) pour $\lambda = \infty$. La résolution de l'équation du film dans le cas rigide (2.27) permet de calculer numériquement les deux contributions D_{I_o} et D_{III_o} et de tracer la mobilité théorique en fonction du nombre capillaire. Ces courbes théoriques sont présentées en tiret (rouge pour $R = 70$ μm, vert pour $R = 105$ μm et noir pour $R = 165$ μm) en Fig. 5.6. *Il apparaît clairement que le fait de considérer l'interface comme uniformément rigide conduit à une sous-estimation de la mobilité de la goutte.*

Cette sous-estimation est probablement liée à une surestimation de la dissipation dans le film plat. En effet, il a été montré théoriquement par Ratulowski & Chang [14] dans le cas d'une bulle infinie (pas d'influence du ménisque arrière) se déplaçant dans une solution de tensioactifs dans un capillaire cylindrique, que l'épaississement du film plat peut évoluer d'un épaississement *rolling* ($4^{2/3}$) à un épaississement *stress-free* (1) en fonction du nombre

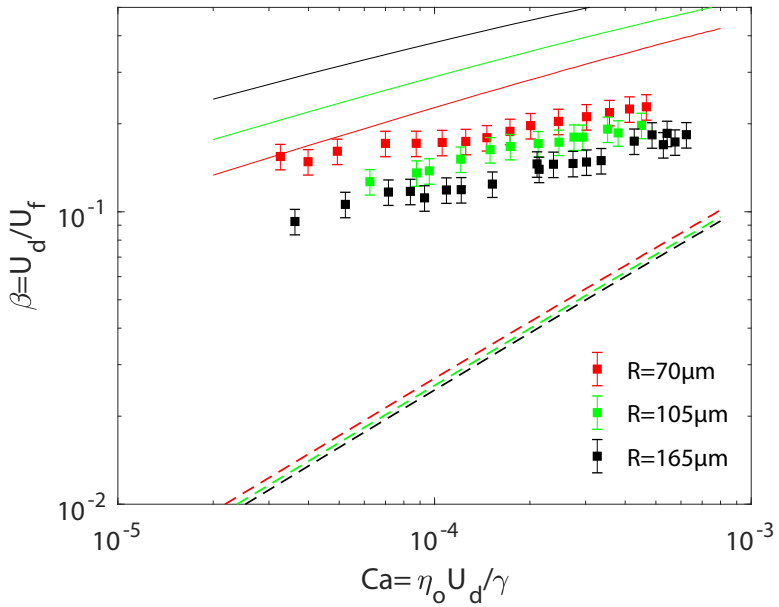

FIGURE 5.6: Mesures expérimentales de mobilité β de goutte d'huile fluorée C6F14 dans une solution aqueuse de NaCl et SDS en fonction du nombre capillaire pour deux rayons différents. Les lignes en tirets (rouge pour $R = 70$ μm, vert pour $R = 105$ μm et noir pour $R = 165$ μm) sont les courbes de mobilité théorique en considérant toute l'interface comme rigide (*sliding*). Les lignes en traits pleins (rouge pour $R = 70$ μm, vert pour $R = 105$ μm et noir pour $R = 165$ μm) sont les courbes de mobilités théorique en considérant seulement l'interface dans le ménisque dynamique comme rigide.

capillaire, tout en maintenant la condition d'un film plat au repos par rapport à la paroi. On peut alors supposer que l'épaississement *sliding* observé expérimentalement soit dû au fait que l'on se trouve à la transition entre ces deux épaississements limites et que le film plat soit au repos par rapport à la paroi. Evaluons la mobilité théorique dans ce cas. Les dissipations dans le film plat et le corps de la goutte sont données par les expressions (5.13) et (5.14) pour λ =0.64. La dissipation dans le ménisque dynamique est calculée en considérant l'interface dans cette zone comme étant rigide. L'expression de D_{III_o} est donnée par (5.19) mais intégrée sur tout le volume du ménisque dynamique. Il convient de noter que la dissipation que l'on évalue en supposant l'interface rigide est la plus importante que l'on puisse atteindre en faisant varier la condition limite à l'interface [17]. Par conséquent, celle-ci est supérieure à celle qu'on obtiendrait par une approche telle que celle de Ratulowsky & Chang dans laquelle la vitesse interfaciale varie le long du ménisque dynamique. La résolution de l'équation du film dans le cas rigide (éq. (2.27)) permet de calculer numériquement les trois contributions dissipatives et de tracer la mobilité théorique en fonction du nombre capillaire. Ces courbes théoriques sont présentées en trait plein (rouge pour $R = 70$ μm, vert pour $R = 105$ μm et noir pour $R = 165$ μm) en Fig. 5.6. On constate sans surprise que la condition $D_{III_o} \gg D_{I_o}, D_{I_i}$, conduit la mobilité théorique à augmenter avec le rayon de la goutte. Par ailleurs, on voit que les

courbes théoriques de mobilité surestiment les données expérimentales. Etant donné que la dissipation dans le ménisque dynamique est prise à sa valeur maximale, cela implique que la dissipation visqueuse manquante dans le modèle est localisée dans le film plat. Il apparaît donc que le film plat n'est ni au repos ni totalement cisaillé mais dans une configuration intermédiaire. Comme proposé par Park [41], ce cisaillement partiel du film plat est lié au caractère fini de la taille de la goutte qui suppose de tenir compte de la présence du ménisque dynamique arrière. En effet, l'accumulation de tensioactifs au point de stagnation convergent arrière et le déficit en tensioactifs au point de stagnation divergent à l'avant sont susceptibles de générer une contrainte de Marangoni $\frac{\partial \gamma}{\partial x}$ cisaillant l'intégralité du film plat. L'équilibre des contraintes à l'interface s'écrit alors $\frac{\partial \gamma}{\partial x} = \eta_o \frac{U_{\text{int}}}{h_\infty}$. Comme le montre la loi d'échelle pour D_{I_o} (éq. (5.9)), la mobilité ne peut être une fonction décroissante du rayon de la goutte, à nombre capillaire donnée, que si $U_{\text{int}} \propto R^a$ avec $a > 0$. Ainsi, la contrainte de Marangoni est elle aussi une fonction croissante du rayon de la goutte, telle que $\frac{\partial \gamma}{\partial x} \propto R^a$. Cette contrainte est aussi probablement une fonction croissante de la vitesse de la goutte puisqu'à mesure que cette dernière augmente, le temps de convection du tensioactif à travers le film plat diminue et l'efficacité du repeuplement de l'interface par diffusion et adsorption de tensioactif est d'autant moins efficace.

Etablir une loi théorique pour la contrainte de Marangoni et la vitesse interfaciale suppose de considérer les équations de transport des tensioactifs par diffusion, convection et adsorption et sort du cadre de cette étude. En revanche, il serait intéressant de mesurer cette vitesse interfaciale en fonction du nombre capillaire, par une méthode de FRAP (Fluorescence recovery after photobleaching) par exemple, afin de voir si la prise en compte de cette mesure dans le calcul de la dissipation dans le film plat permet de retrouver la mobilité expérimentale.

La comparaison des deux systèmes, goutte de C6F14 dans une solution de tensioactifs très concentrée et goutte de C6F14 dans une solution de tensioactifs peu concentrée, révèle deux comportements différents de peuplement de l'interface dans le film plat. A haute concentration en tensioactifs, l'interface est peuplée uniformément (pas de contrainte de Marangoni) dans toute la partie avant du film et la contrainte de Marangoni, due à l'accumulation de tensioactifs à l'arrière de la goutte, est localisée sur une courte zone (zone d'épaississement du film) entre le film plat et le ménisque arrière (voir sous-section 4.1.3.2 du chapitre 4). Ainsi, la condition limite à l'interface évolue en fonction de la position le long de l'axe x. En revanche, à faible concentration en tensioactifs, l'accumulation de tensioactifs à l'arrière et le déficit à l'avant de la goutte génèrent une contrainte de Marangoni sur toute la longueur du film plat. Le long de l'axe x, la condition limite à l'interface (*i.e.* la contrainte de Marangoni) est alors uniforme puisque les mesures expérimentales montrent que l'épaisseur dans le film plat est indépendante de x.

5.4 Conclusion

En résumé, il a été montré dans ce chapitre que la dynamique d'une goutte pancake est étroitement liée à sa taille, au rapport de viscosité et à la concentration en tensioactifs. L'établissement d'un modèle théorique de la mobilité, basé sur la modélisation des topographies de films expérimentales mesurées au chapitre 4 a permis de comprendre, dans chacun des quatre cas présentés, où la dissipation visqueuse dominante est localisée dans le système et l'évolution de la mobilité avec le rayon de la goutte en résultant. Il apparaît qu'un modèle purement hydrodynamique de la mobilité (sans prendre en compte les effets Marangoni) reproduit quantitativement les données expérimentales pour des systèmes sans tensioactif (voir 5.3.1) et les systèmes où le rapport de viscosité est suffisamment important pour que l'effet de la viscosité interne à la goutte prenne le pas sur d'éventuelles contraintes de Marangoni. En revanche, la dynamique de systèmes de faible rapport de viscosités est modifiée par la présence de tensioactifs à l'interface, et un modèle purement hydrodynamique ne permet pas de rendre compte de la mobilité mesurée. Il faut alors coupler la mesure du film de lubrification à celle de la mobilité pour comprendre où la contrainte de Marangoni est localisée et à quelle point celle-ci modifie la condition limite interfaciale. Lorsque l'intensité de cette contrainte est telle qu'elle rigidifie quasiment l'interface (cf. section 5.3.2) dans une certaine région, la prise en compte, en première approximation, d'une friction rigide dans cette région permet de retrouver quantitativement les valeurs de mobilité expérimentales. Cependant, lorsque l'effet Marangoni induit une condition limite intermédiaire entre le cas sans tensioactif et le cas tout à fait rigide, la modélisation de la friction est plus délicate puisqu'elle suppose de connaître la valeur de la contrainte de Marangoni. Cette dernière peut alors être évaluée soit expérimentalement, en mesurant la vitesse interfaciale, soit numériquement en résolvant le problème couplant l'hydrodynamique au transport des tensioactifs par diffusion, adsorption et convection.

Synthèse - Chapitre 5

- Mise en évidence expérimentale de paramètres influençant la dynamique de goutte pancake en cellule de Hele-Shaw :
  1. Géométrie de la goutte (*i.e.* son rayon).
  2. Rapport de viscosités $\lambda = \eta_i/\eta_o$.
  3. Condition limite à l'interface (*i.e.* contrainte de Marangoni due à la présence de tensioactifs).
  4. La mobilité $\beta = U_d/U_f$ croît toujours avec le nombre capillaire $Ca = \eta_o U_d/\gamma$.
  5. La variation de β avec le rayon dépend de λ et de la concentration en tensioactifs (*i.e.* évolution de la contrainte de Marangoni avec la concentration en tensioactifs).
- Etablissement d'un modèle théorique pour la mobilité de goutte pancake en cellule de Hele-Shaw :
  1. Purement hydrodynamique (pas de contrainte de Marangoni à l'interface).
  2. Basé sur la topographie théorique du film (cf. chapitre 2).
- Confrontation du modèle aux données expérimentales de mobilité :
  1. Accord quantitatif entre modèle et expérience sans paramètre de fit pour des systèmes sans tensioactif (bulle dans huile) et des systèmes très visqueux ($\lambda \simeq 1000$).
  2. Désaccord entre modèle et expérience pour des sytèmes peu visqueux $\lambda \simeq 0.5$ avec tensioactifs : la friction supplémentaire, liée à la contrainte Marangoni n'est pas prise en compte dans le modèle qui surestime la mobilité expérimentale.
  3. Nécessité de coupler la mesure de la topographie du film de lubrification à celle de la mobilité pour connaître l'intensité et la localisation de la contrainte de Marangoni.
  4. Une contrainte de Marangoni très intense entraîne une rigidification quasi totale de l'interface. Le rajout de friction rigide dans le modèle théorique de β permet de retrouver quantitativement les données expérimentales.
  5. Une contrainte de Marangoni intermédiaire donne lieu à une condition limite interfaciale comprise entre le cas sans tensioactif et le cas rigide. L'évaluation de la friction nécessite alors d'évaluer la contrainte de Marangoni.

Conclusion

Dans ce travail, nous avons entrepris de caractériser la dynamique d'une goutte pancake en cellule de Hele-Shaw en exploitant la double mesure du film de lubrification et de la vitesse de la goutte. Cette approche s'explique par le fait que la vitesse d'une goutte est étroitement liée à la topographie et à la nature physico-chimique de l'interface qui modulent la friction visqueuse dans le film de lubrification (cf. chapitre 1). Nous nous sommes donc efforcés dans un premier temps de comprendre la forme adoptée par l'interface en fonction de la viscosité de la goutte et de la concentration en tensioactifs.

La caractérisation expérimentale du film de mouillage a été précédée d'une modélisation, purement hydrodynamique (pas d'effet de pression de disjonction et d'effet Marangoni), de celui-ci en fonction de la viscosité de la goutte pour la géométrie de Hele-Shaw (cf. chapitre 2). En effet, si en géométrie axisymétrique la forme de l'interface sous une bulle et une goutte visqueuse avait déjà fait l'objet de développements théoriques par Bretherton [2] et Hodges *et al.* [1], la forme de l'interface en géométrie de Hele-Shaw n'était prédite que dans le cas limite d'une bulle par Burgess & Foster [3]. L'approche théorique menée au chapitre 2 s'appuie sur un couplage entre les théories de Hodges *et al.* [1] et celle de Burgess & Foster [3]. Elle prévoit que la topographie du film sous une goutte en géométrie de Hele-Shaw est bien approchée par celle sous une bulle pour $\lambda \ll Ca^{-1/3}$ et est donnée par un modèle visqueux (cf. sous-section 2.2.4) pour $\lambda \gg \left(\frac{h_f(\pi/2)}{H_o}\right)^{-1/2}$. Lorsque $\lambda = \infty$ ce modèle visqueux se résume à un modèle *sliding* pour lequel toute l'interface est rigide. D'autre part, ce modèle prédit, comme celui de Hodges *et al.* [1], que l'épaississement au centre de la goutte peut être supérieur à $f^{\text{slid}} = 2^{2/3}$ lorsque $Ca^{-1/3} \ll \lambda \ll Ca^{-2/3}$.

Au chapitre 4 la topographie du film de mouillage est mesurée et caractérisée, pour différents rapports de viscosités et concentrations en tensioactifs, en la comparant au modèle théorique de la topographie développé au chapitre 2. Dans tous les cas, la topographie expérimentale présente une forme de catamaran, avec deux creux sur les côtés de la goutte. Pour des gouttes peu visqueuses (λ =0.26) se déplaçant dans une solution très concentrée en tensioactifs (cf. section 4.1), les données expérimentales sont comparées au modèle de Burgess & Foster [3] sous une bulle pancake puisque $\lambda \ll Ca^{-1/3}$. La topographie expérimentale du film est reproduite quantitativement par le modèle *stress-free* de Burgess & Foster dans la région centrale, mais ce dernier sous-estime l'épaisseur du film sur les côtés de la goutte et

ne reproduit pas l'importante bosse à l'arrière de la goutte. L'épaississement expérimental observé sur les côtés et à l'arrière de la goutte est attribué a des effets Marangoni induisant une rigidification de l'interface dans ces zones. *On voit alors que la présence de tensioactifs en solution génère des contraintes de Marangoni qui modifient localement la condition limite à l'interface.* A l'aide d'un modèle semi-empirique, la prise en compte de cette rigidification nous a permis de reproduire quantitativement l'oscillation de l'interface à l'arrière de la goutte. La mesure de l'épaisseur du film pour des gouttes très visqueuses (voir section 4.2) montre qu'un modèle de type visqueux (cf. éq. (2.25) avec λ =972 en sous-section 2.2.4), équivalent au *sliding* (*i.e.* interface totalement rigide) dans la gamme de nombres capillaires expérimentale, parvient à reproduire la topographie expérimentale à haut nombre capillaire. En revanche, lorsque le nombre capillaire diminue, les effets de pression de disjonction tendent à faire saturer l'épaisseur du film à une valeur donnée. Cet effet se faisant d'abord sentir sur les côtés de la goutte à mesure que le nombre capillaire diminue, le modèle tend à sous-estimer l'épaisseur du film dans ces zones. Pour finir, il a été mis en évidence en section 4.3 que les effets Marangoni à l'interface d'une goutte d'huile peu visqueuse (λ =0.64) se déplaçant dans une solution aqueuse faiblement concentrée en tensioactifs, pouvait donner lieux à un épaississement du film par rapport au cas *stress-free*, et ce, en tout point de l'interface. Globalement, la topographie de l'interface est bien reproduite dans son intégralité par un modèle *sliding* (cf. éq. (2.27) en sous-section 2.2.4). L'épaisseur au centre de la goutte est bien décrite par un épaississement de type *sliding* dans une large gamme de nombres capillaires, mais en dehors de cette gamme, l'épaisseur du film semble tendre vers un épaississement de type *rolling* à haut nombre capillaire. Ces résultats expérimentaux sur la topographie du film de mouillage sont mis à profit au chapitre 5.

Le dernier chapitre est dédié à l'étude de la dynamique de bulle et goutte pancake en géométrie de Hele-Shaw par la compréhension du lien existant entre les propriétées de l'interface (nature, topographie) et les mécanismes de dissipation visqueuse (friction) dans le film de lubrification. Il est d'abord montré expérimentalement que la dynamique d'une goutte pancake est étroitement liée à sa taille, au rapport de viscosité, et à la concentration en tensioactifs. L'établissement d'un modèle théorique de la mobilité, basé sur la modélisation des topographies de films expérimentales mesurées au chapitre 4 permet de comprendre, dans chacun des quatres cas présentés, où la dissipation visqueuse dominante est localisée dans le système et l'évolution de la mobilité avec le rayon de la goutte en résultant. Il apparaît qu'un modèle purement hydrodynamique de la mobilité (sans prendre en compte les effets Marangoni) reproduit quantitativement et sans paramètre d'ajustement, les données expérimentales pour des systèmes sans tensioactifs (voir sous-section 5.3.1) et les systèmes où le rapport de viscosité est suffisamment important pour que l'effet de la viscosité interne à la goutte prenne le pas sur d'éventuelles contraintes de Marangoni (voir sous-section 5.3.3). En revanche, la dynamique de systèmes de faible rapport de viscosités est modifiée par la présence de tensioactifs à l'interface, et un modèle purement hydrodynamique ne permet pas de

rendre compte de la mobilité mesurée. Il faut alors coupler la mesure du film de lubrification à celle de la mobilité pour comprendre où la contrainte de Marangoni est localisée et à quel point celle-ci modifie la condition limite interfaciale. Lorsque l'intensité de cette contrainte est telle qu'elle rigidifie quasiment l'interface (cf. section 5.3.2) dans une certaine région, la prise en compte, en première approximation, d'une friction rigide dans cette région permet de retrouver quantitativement les valeurs de mobilité expérimentales. Cependant, lorsque l'effet Marangoni induit une condition limite intermédiaire entre le cas sans tensioactif et le cas tout à fait rigide (cf. section 5.3.4), comme c'est le cas pour une goutte peu visqueuse se déplaçant dans une solution faiblement concentrée en tensioactifs, la modélisation de la friction est plus délicate puisqu'elle suppose de connaître la valeur de la contrainte de Marangoni. Cette dernière peut alors être évaluée soit expérimentalement, en mesurant la vitesse interfaciale, soit théoriquement en résolvant le problème couplant l'hydrodynamique au transport des tensioactifs par diffusion, adsorption et convection.

En somme, nous avons démontré dans ce travail de thèse l'importance de caractériser la topographie du film de lubrification pour prédire la vitesse d'une goutte. Pour un système sans tensioactif, un modèle purement hydrodynamique de la mobilité fonctionne bien. En revanche, la présence de tensioactifs dans le système nécessite de caractériser la topographie du film propre à la configuration étudiée, puisque des effets interfaciaux peuvent apparaître tant à faible concentration en tensioactifs (rigidification globale) qu'à haute concentration en tensioactifs (rigidification locale).

Perspectives

Ce travail de thèse montre qu'il est délicat de modéliser la dynamique d'une goutte lorsque l'effet Marangoni à l'interface est tel qu'il génère une condition limite intermédiaire entre le cas sans tensioactif et le cas tout à fait rigide (cf. sous-section 5.3.4), puisque dans ce cas, un modèle purement hydrodynamique pour la mobilité ne fonctionne plus et il devient nécessaire d'évaluer la vitesse de l'interface pour déterminer la dissipation visqueuse dans le film de lubrification et l'intérieur de la goutte. Cette vitesse interfaciale peut être mesurée expérimentalement par une méthode de FRAP (Fluorescence recovery after photobleaching) et il serait intéressant de voir si la prise en compte de cette mesure dans le calcul de la dissipation visqueuse permet de retrouver la mobilité expérimentale.

La seconde des perspectives est de mettre en évidence exprimentalement le régime d'épaississement prévu par le modèle de Hodges *et al.* [1] et le modèle visqueux (sous-section 2.2.4) dans lequel l'épaississement du film devient supérieur à l'épaississement *sliding* $f^{\text{slid}} = 2^{2/3}$. De tels épaississments ont déjà été observés expérimentalement du fait de l'effet des tensioactifs à l'interface [37] mais jamais sous l'effet de la viscosité.

Enfin, il serait intéressant de caractériser l'influence d'un gradient de tension superficielle, imposé avec un gradient de température, sur la topographie du film de lubrification et la

dynamique d'une goutte.

Articles

Ce travail de thèse a pu être valorisé par une publication sur la topographie du film de lubrification. Une seconde est en cours d'écriture sur la dynamique de gouttes dans une cellule de Hele-Shaw.

- Benjamin Reichert, Axel Huerre, Olivier Théodoly, Marie-Pierre Valignat, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien, *Topography of the lubrication film under a pancake droplet traveling in a Hele-Shaw cell*, J. Fluid Mech., *submitted*
- Benjamin Reichert, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien, *Predicting bubble velocity in a Hele-Shaw cell*, Physical Review Letters, *in preparation*

Topography of the lubrication film under a pancake droplet traveling in a Hele-Shaw cell

Benjamin Reichert[1]†, Axel Huerre[1], Olivier Theodoly[2], Marie-Pierre Valignat[2], Isabelle Cantat[3], and Marie-Caroline Jullien [1]‡

[1]Gulliver UMR CNRS 7083, PSL research University, ESPCI ParisTech, 10 rue Vauquelin, F-75005 Paris, France

[2]LAI, INSERM UMR_S 1067, CNRS UMR 7333, Aix-Marseille Universite 13009 Marseille, France

[3]IPR, UMR CNRS

(Received xx; revised xx; accepted xx)

Understanding the dynamics of a droplet pushed by an external fluid in a confined geometry calls for the identification of all the dissipation mechanisms at play in the lubrication film between droplet and cell wall. Experimentally, Reflection Interference Contrast Microscopy (RICM) has proven an efficient tool to measure the thickness of such lubrication films for microfluidic droplets, with a precision of a few nanometers (Huerre et al. (2016)). The present work takes advantage of the high accuracy of this technique to chart quantitatively the lubrication film between oil droplets and the glass wall of a microfluidic chamber. We find the lubrication films to exhibit a complex 3D shape, which we are able to rationalize using a hydrodynamical model in the lubrication approximation. We show that the complete topography cannot be recovered using a single model boundary condition along the whole interface. Rather, surface tension gradients are negligible at the front of the bubble, whereas they significantly modify the film profile at the rear, where a surfactant accumulation induces local thickening of the lubrication film. The presence of ravines on the sides of the droplet is due to 3D effects which can be qualitatively reproduced numerically. To our knowledge, this is the first experimental investigation of such local effects on traveling droplets.

Key words: Authors should not enter keywords on the manuscript, as these must be chosen by the author during the online submission process and will then be added during the typesetting process (see http://journals.cambridge.org/data/relatedlink/jfm-keywords.pdf for the full list)

1. Introduction

Since the groundwork laid by Taylor & Saffman (1959), our understanding of traveling menisci in confined environments has been increasingly refined. As the non-wetting disperse phase advances, a lubrication film of external phase develops between the interface and the substrate, where all the dissipation is localized. Droplet motion depends on the shape of that interface, as well as its physico-chemical properties. This was first evidenced by Bretherton (1961), in the case of a slender bubble traveling in a

† Email address for correspondence: benjamin.reichert90@gmail.com
‡ Email address for correspondence: marie-caroline.jullien@espci.fr

horizontal capillary tube. The thickness of the lubrication film was found to be set by a balance between capillary and viscous forces in the external phase, expressed *via* the capillary number, $Ca = \frac{\eta_o U_d}{\gamma}$, where η_o, U_d and γ are respectively the external phase viscosity, the bubble velocity and the interfacial tension. For $Ca \leqslant 10^{-3}$, and assuming a vanishing tangential stress at the interface (*stress-free* boundary condition), this classical analysis predicts a film thickness scaling in $Ca^{2/3}$ far from the front meniscus, and an oscillation of the interface at the back of the bubble. This theory was then extended to different model boundary conditions: incompressible interfaces (the $Ca^{2/3}$ scaling was recovered with corrections to the pre-factors by Shen et al. (2002) and Cantat (2013)), and viscous droplets (Hodges et al. (2004) found an additional contribution scaling in Ca). That approach was also adapted to non-axisymmetric problems, such as two-phase displacement through Hele-Shaw cells. In such a configuration Park & Homsy (1984) extended Bretherton's results to a meniscus of arbitrary shape with an asymptotic approach. Similarly, the shape of the lubrication film for a bubble of radius much larger than the cell gap was derived for a stress-free boundary condition by Burgess & Foster (1990).

These theoretical results were found in good agreement with experimental work ever since Bretherton's early work (Bretherton (1961)), with sometimes discrepancies attributed to additional effects neglected in the model. Recent examples include surfactant-covered bubbles (Denkov et al. (2006)) and viscous droplets (Huerre et al. (2015)). However, most of these works could only access average quantities over the size of the droplet, since the height of the lubrication film was generally deduced from the velocities of the droplet and external phase, via the conservation of the flow. Interferometry methods were used to measure the height of thin films directly, but only for non-confined cases such as a soap film Mysels & Cox (1962), the wetting film left on a plate Snoeijer et al. (2008) or the lubrication film under a foam (Denkov et al. (2006)). In this context, a previous study investigating droplets confined in a microfluidic Hele-Shaw cell via Reflection Interference Contrast Microscopy (RICM) provided the first direct measurement of the lubrication film thickness in a confined geometry, Huerre et al. (2016). Though it was not the focus of that article, the lubrication film was found to exhibit complex 3D topographies, which had been predicted by Burgess & Foster (1990) but never quantitatively characterized experimentally. This challenging experimental characterization is the aim of the present article.

Fluorinated-oil droplets travel through a microfluidic Hele-Shaw cell, in an aqueous solution containing a single surfactant (C_{10}TAB). They are confined into a pancake shape, as the cell gap is much smaller than the droplet diameter. Using RICM, we measure lubrication film thicknesses down to a precision of a few nanometers (Huerre et al. (2016)). We find the lubrication films to exhibit a complex 3D shape: ravines develop along the sides, while a bump appears at the rear of the droplet. Bretherton's model is in quantitative agreement with our data for the experimental film thickness at the front meniscus and in the central flat region along the axis of motion. However, it fails to account for the observed bump at the rear, which can be recovered by assuming a surface tension gradient in the rear meniscus and a locally incompressible interface. In turn, the ravines on the lateral sides of the droplet can be qualitatively reproduced numerically by solving the lubrication equation in this non axisymmetric case.

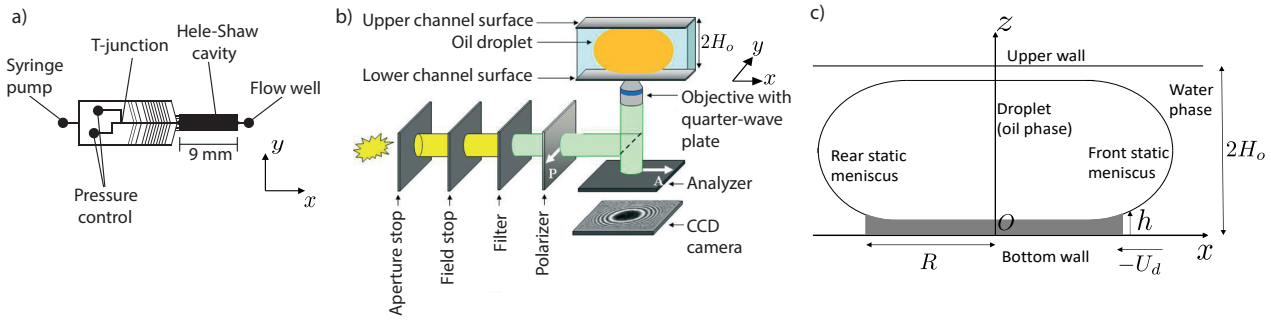

FIGURE 1. Schematic representation of the experimental set-up. **(a)** Top view of the microfluidic chip. **(b)** Optical set-up used for reflection interference contrast microscopy (RICM). The Hele-Shaw cell is placed just above the objective so that the thin film of water between the bottom wall and the oil droplet is imaged. **(c)** Side view of the droplet in its frame of reference. The gray domain is the region of the film that can be characterized.

2. Experimental set-up

2.1. *Materials and methods*

Fluorinated-oil droplets (C_6F_{14}: 3M Fluorinert FC-72, of viscosity $\eta_i = 0.64$ mPa.s) are traveling in an aqueous solution of C_{10}TAB (Sigma-Aldrich, concentration c = 990 mM) and NaCl (concentration c_{salt}= 1 M). The high concentration of salt ensures that the Debye length is decreased down to $\lambda_d = 0.2$ nm, *i.e.* much smaller than the typical thickness of the lubrication films in our experiments. The viscosity of the external phase was measured to be $\eta_o = 2.5$ mPa.s (Anton Paar MCR 302 rheometer), while the interfacial tension between the two phases was measured to be $\gamma = 15$ mN/m (KRUSS DSA30 tensiometer).

The microfluidic chip is shown in Fig. 1.a. The upper part of the chamber is made of PDMS and fabricated using soft photo-lithography, Xia & Whitesides (1998). It is permanently bonded to a glass slide via oxygen plasma. The PDMS layer is covered by a second glass slide, to ensure that the channels do not deform even at the highest pressures applied, Taccoen (2015). The droplets are generated at a T-junction using a MAESFLO pressure controller, and accelerated with a Nemesys syringe pump. The droplets then reach a Hele-Shaw cell of height $2H_o = 14$ μm, width $l = 2500$ μm and length $L = 9$ mm. The external phase flow is controlled by the syringe pump and ranges from 9 to 36 μL/min. The resulting droplet velocities U_d in the Hele-Shaw cavity range from 2300 to 14700 μm/s, which corresponds to capillary numbers between 3.9×10^{-4} and 2.4×10^{-3}. The flow is measured at the exit of the channel with a Fluigent flow-well.

The droplets are large enough to adopt a pancake shape of height very close to $2H_o$ and radius much larger than H_o in the Hele-Shaw cell (see Fig. 1.c). The droplet is separated from the top and bottom cell walls by a continuous thin film of external phase, stabilized by surfactant and hydrodynamical forces. Outside this region, the interface is almost not deformed by the flow and keeps its equilibrium shape. For this reason, the domain of continuous phase trapped between the lateral part of the interface and the bottom (respectively top) wall is referred to as the bottom (respectively top) static meniscus (see Fig. 1.c). All the experiments have been performed with a thin film radius of $R \simeq 91 \pm 6$ μm.

The topography of the lubrication film is measured at the bottom wall, below the moving droplet, using reflection interference contrast microscopy (RICM), Fig. 1.b. This technique has been covered in detail in a previous article, and only the main steps are mentioned here (see Huerre et al. (2016)). Light is provided by a lamp X-Cite 120Q with a RGB filter (Semrock: FF01- 464 nm/542 nm/639 nm), so that the intensity is

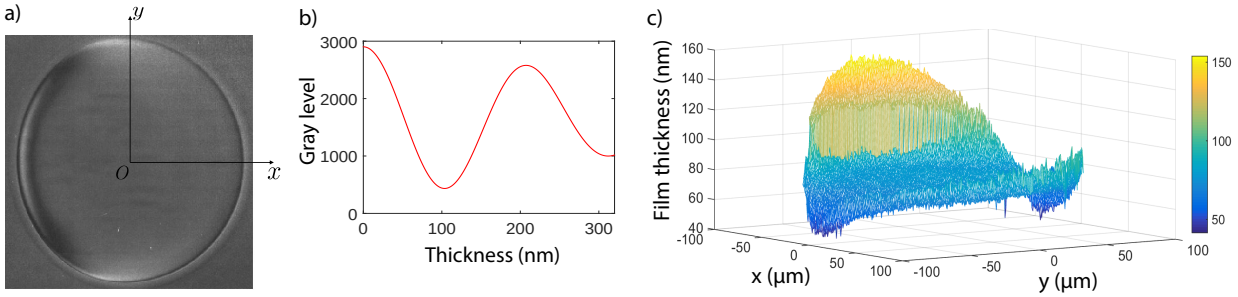

FIGURE 2. **(a)** RICM picture of a droplet traveling through the Hele-Shaw cell, in the x direction. The droplet diameter is 170 μm in this picture; $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$. **(b)** Theoretical variation of the reflected light intensity with the film thickness (the optical model is detailed in Huerre et al. (2016)); **(c)** Film topography extracted from picture **(a)**.

high enough to investigate faster droplets, compared to the previous work. Experimental movies are acquired using a high-speed camera (Photron) at 250 Hz and a Zeiss Neofluar 63/1.25 antiflex objective. The pixel resolution is $\delta_{pix} = 0.67$ μm. A raw RICM picture of a traveling droplet moving from left to right is shown on Fig. 2.a. Contrasted gray levels are observed within the thin film, whereas the static meniscus corresponds to a uniform gray level: this well-defined transition provides an experimental definition of the frontier between the thin film of radius R and the unresolved meniscus. The film thickness is determined with high accuracy from the RICM picture, to a precision of 4 nm, using the relationship between the light intensity and the film thickness given in Fig. 2.b. The detail of the image processing is given in Appendix A. A height difference of 100 nm corresponds to one half intensity oscillation: if the film thickness varies for more than 100 nm over a single pixel, the signal is lost, as happens outside the central disc in Fig. 2.a, and an average gray level is measured. The region we are able to characterize is represented in Fig. 1.c.

2.2. *Notes on the experiments*

We first reported experimental evidence of 3D topographies of the lubrication film using a similar experimental set-up in a previous work (Huerre et al. (2015)). The present work aims to investigate these 3D geometries more locally. As listed below, the physico-chemical properties of the solution we choose belongs *a priori* to the class of systems leading to stress-free interfaces. However, even in this model situation we show that strong surfactant effects are observed in some domains on the interface.

(i) First, Park & Homsy (1984) showed that the viscosity of the droplet has a negligible influence, on the film thickness, as long as the viscosity ratio between the inner and outer phases remains smaller than $Ca^{-1/3}$. In our experimental conditions, we set $\eta_i/\eta_o = 0.256$ and $Ca^{-1/3} = 7$ at the highest velocity explored, so that additional effects due to droplet viscosity are expected to be negligible.

(ii) Secondly, short-range interactions between interfaces can affect the thickness of the lubrication film, and their signature has been observed experimentally in similar experimental conditions, Huerre et al. (2015). In order to make the disjoining pressure in the film negligible, we ensured in the present work that the Debye length $\lambda_d = 0.2$ nm remained much smaller than the lubrication film thickness throughout our velocity range, by adding salt to the solution.

(iii) Lastly, Bretherton's model assumes a stress-free boundary condition, but an interface viscosity or elasticity can induce a thickening of the lubrication film by a factor of up to 2.5 (Quéré & de Ryck (1998); Shen et al. (2002); Scheid et al. (2010); Delacotte et al. (2012); Champougny et al. (2015)). We chose to use a surfactant that was previously

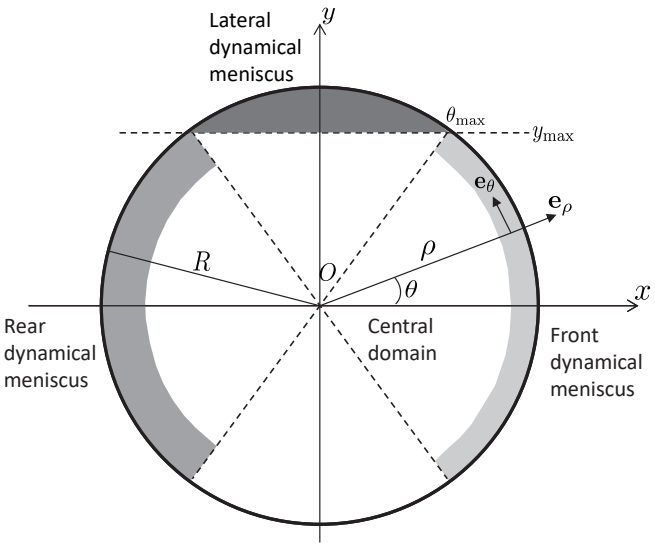

FIGURE 3. Definition of the geometrical parameters and of the separate domains in the lubrication film. The disc of radius R corresponds to the region where $h(x, y)$ can be measured, and is divided into the front and rear meniscus domains, the central domain and the two lateral meniscus domains, represented using different gray levels. For clarity the radial extension of the dynamical meniscii are oversized.

shown to have negligible influence on the boundary condition by Delacotte et al. (2012), in similar experimental conditions: same solution (without salt), same capillary range, but larger scale (meniscus size).

3. Geometry and film domains

The geometry of the film is described in the droplet reference frame $(O, \mathbf{e_x}, \mathbf{e_y}, \mathbf{e_z})$. The origin O sits at the center of the film in the bottom wall plane (x, y), with $-x$ the direction of wall motion, and z the normal to the wall oriented upwards. Polar coordinates (ρ, θ, z) are used, with a polar axis in the x direction. $h(x, y)$ is the film thickness, between the bottom wall and the liquid/liquid interface (see Fig. 1.c).

At first glance, the contour of the thin film is almost circular, with relative variations of its radius of order $\delta R/R \sim 3\%$, the in-plane curvature being slightly smaller at the rear than at the front. The corresponding Laplace pressure variation scales as $\delta P = \gamma \delta R/R^2 \sim 5$ Pa. This is consistent with the order of magnitude of the viscous pressure field $(\eta_o - \eta_i)U_d R/H_0^2 \sim 18$ Pa, responsible for this deformation at the droplet scale. We neglect it in what follows, and assume that the thin film is a disc of radius R while the lateral droplet interface keeps its static equilibrium shape, with a total curvature close to $1/H_0$.

The film topography extracted from the RICM picture in Fig. 2.a is plotted in Fig. 2.c. It shows a complex catamaran-like 3D shape, with a bump at the rear and two ravines on the sides, as previously observed by Huerre et al. (2016). To address the complexity of this shape, the film is decomposed into four parts, shown in Fig.3 and analyzed independently: i) the central region, (ii) the front dynamical meniscus, iii) the rear dynamical meniscus and, iv) the lateral dynamical meniscus. Fig. 4 shows longitudinal film profiles taken at different values of y for a given Ca. Far enough from the front and rear menisci, the film thickness keeps a value independant of x, $h_\infty(y)$, that can be defined without ambiguity for $|y| < y_{max} = R\sin(\theta_{max})$, see Fig. 3. This angle, of order $\theta_{max} = 6\pi/16$ for all Ca, allows us to define experimentally the frontier to the lateral meniscus: with this

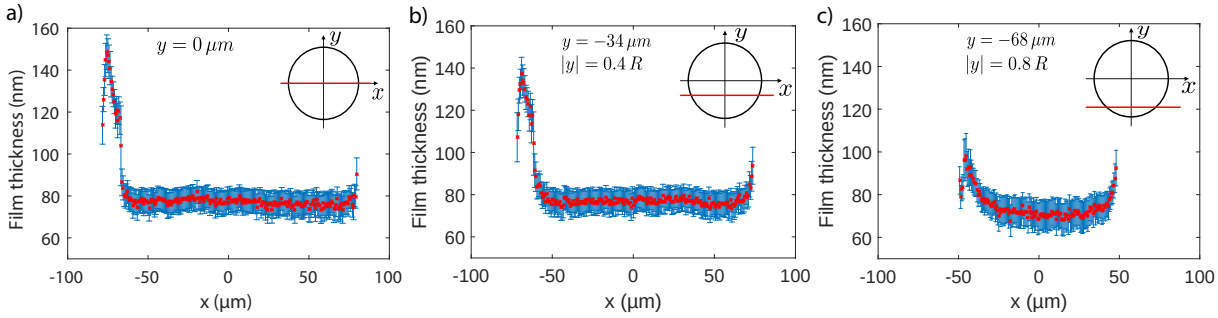

FIGURE 4. Longitudinal profiles of the film thickness $h(x, y)$, along the lines **(a)** $y = 0$ μm, **(b)** $y = -34$ μm ($|y| = 0.4\,R$) and **(c)** $y = -68$ μm ($|y| = 0.8\,R$). The capillary number is $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$. Inset: the red line indicates the location of the longitudinal profile for each y value.

convention $y_{\max} = 0.92\,R$. In turn, the region where $h(x, y) = h_\infty(y)$ is referred to as the central region, or flat film.

4. Longitudinal film profiles for $y = 0$

4.1. *2D theoretical framework*

Bretherton's classical result is established for the configuration shown in Fig. 1.c, for a droplet invariant along y and of negligible viscosity. The flow in the thin film is determined using the lubrication approximation $\frac{\partial p}{\partial x} = \eta_o \frac{\partial^2 u}{\partial z^2}$, where the pressure p does not depend on z and u is the x-component of the velocity field in the droplet's frame. Continuity of the normal stress at the interface imposes a Laplace pressure difference $p_o - p = \gamma \frac{\partial^2 h}{\partial x^2}$, where p_o is the uniform internal pressure within the droplet. The boundary conditions $u(z = 0) = -U_d$ and $u(z = h) = u_s(x)$ give the velocity profile:

$$u(x, z) = \frac{\gamma}{2\eta_o} \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} (h - z)\, z + \frac{(u_s + U_d)}{h} z - U_d \ . \tag{4.1}$$

At the front meniscus, at the small x limit, a flat film of unknown thickness $h = h_\infty$ is assumed, as well as a constant interfacial velocity u_s^0. The velocity field in this film is therefore given by $u = \left(\frac{u_s^0 + U_d}{h_\infty}\right) z - U_d$, and the flow rate $Q(x) = \int_0^h u\, \mathrm{d}z$ becomes $Q_0 = \frac{h_\infty (u_s^0 - U_d)}{2}$. For an incompressible and steady flow, writing $Q(x) = Q_0$ gives:

$$-\gamma \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} = \frac{6\eta_o}{h^3} \left[h(u_s - U_d) - h_\infty (u_s^0 - U_d) \right] \ . \tag{4.2}$$

Additionally, the continuity of the tangential stress at the interface leads to the following Marangoni relation:

$$\frac{\partial \delta\gamma}{\partial x} = \eta_o \frac{\partial u}{\partial z}(h) \ , \tag{4.3}$$

with $\delta\gamma$ the interfacial stress variation relative to its reference value γ. The equation (4.2) is general, in the sense that it is valid for any rheological properties of the interface, as long as $\delta\gamma \ll \gamma$.

In his study, Bretherton imposes a stress-free condition, *i.e.* $\delta\gamma = 0$. The corresponding boundary condition at the interface, $\frac{\partial u}{\partial z} = 0$, then yields $u_s = -U_d + \frac{\gamma}{2\eta_o} \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} h^2$ and $u_s^0 = -U_d$. By substituting these two expressions in Eq. (4.2), Bretherton's classical equation is recovered:

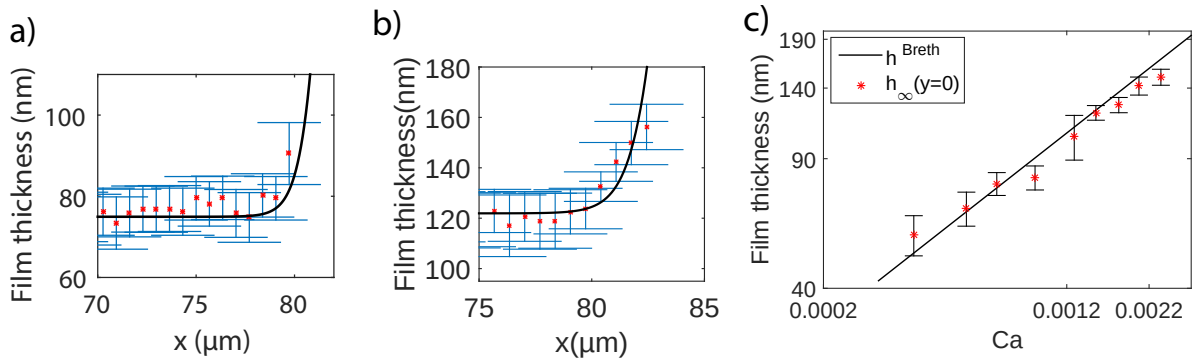

FIGURE 5. Front meniscus profile and film height in the central region. Film profiles $h(x, y)$ along the x axis ($y = 0$) for **(a)** $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$, **(b)** $Ca = 1.3 \times 10^{-3}$ and **(c)** $Ca = 1.5 \times 10^{-3}$. Solid line: Bretherton's prediction from Eq. (4.4). **(d)** Variation of $h_\infty(y = 0)$ with Ca. Solid line: Bretherton's solution, $h^{\mathrm{Breth}} = 1.337\, H_o Ca^{2/3}$.

$$\gamma \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} = \frac{3\eta_o U_d}{h^3} \left[h - h_\infty\right] \ . \tag{4.4}$$

Finally, we impose a curvature $1/H_o$ at large x to solve this equation numerically and write the thickness in the flat film:

$$h^{\mathrm{Breth}} = 1.337 H_o Ca^{2/3} \ . \tag{4.5}$$

To derive the profile in the rear meniscus, the same approach is used. However, the problem is not symmetric with respect to the y axis in terms of boundary conditions. At the front meniscus $x \geqslant 0$ and the curvature is set to $1/H_0$ at large x. However, at the rear meniscus, $x \leqslant 0$ and there are two constraints to ensure the uniqueness of the solution: setting a curvature equal to $1/H_0$ at small x, and an asymptotic film thickness at large x. This leads to a monotonic evolution of the profile at the front and to an oscillation in the rear meniscus.

4.2. *Front meniscus and central region*

Examples of film profiles close to the front meniscus along the x axis and for $y = 0$ are given in Fig. 5.a-b. These experimental profiles are in quantitative agreement with numerical solutions of Eq. (4.4) for a meniscus of curvature $1/H_o$ at large x. In particular, we recover $h_\infty(y = 0) = h^{\mathrm{Breth}}$ from Eq. (4.5), within the precision of our error bars, over the whole range of capillary numbers investigated (Fig. 5.c). This confirms that additional contributions we aimed to keep negligible, such as droplet viscosity, disjoining pressure or surfactant effects, do not affect the profile significantly in this region of the droplet, where Bretherton's model correctly captures the film thickness.

Regarding the non axisymmetric geometry, Burgess & Foster (1990) found under similar assumptions that the 2D prediction for the film thickness remains valid in the (x, O, z) plane as long as $(H_o/R)^3 \ll Ca \ll H_o/R \ll 1$, which was confirmed numerically by Zhu & Gallaire (2016). In our case the constraint $(H_o/R)^3 \ll Ca$ is not fully satisfied at our smallest capillary numbers, and a geometrical correction on the meniscus curvature might be expected. The Laplace pressure drop, at the droplet interface, at equilibrium is given by (de Laplace (1806)):

$$\Delta P = \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}\right) = \frac{\gamma}{H_o}\left(1 + \frac{\pi}{4}\frac{H_0}{R}\right) \tag{4.6}$$

with R_1 and R_2 the two principal radii of curvature of the interface. As one

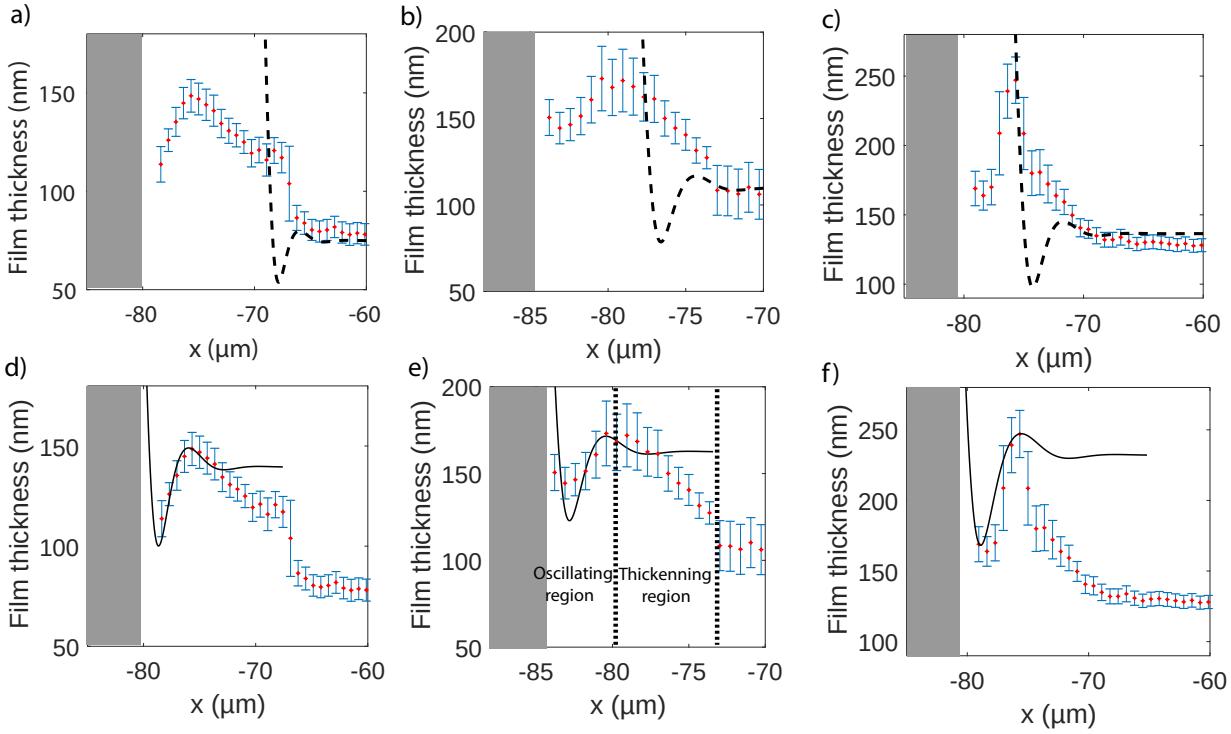

FIGURE 6. Oscillation at the rear meniscus. Longitudinal thickness profiles for three increasing values of Ca: **(a,d)** $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$, **(b,e)** $Ca = 1.3 \times 10^{-3}$, **(c,f)** $Ca = 1.8 \times 10^{-3}$. The film thickness at large x is $h_\infty(0)$ and the local maximum is $h_{\max}$. Dashed lines **(a,b,c)**: Bretherton's prediction from Eq. (4.4). Solid lines **(d,e,f)**: theoretical predictions from Eq. 4.2 using $u_s^{\max} = U_d \left(1 - \frac{2h_\infty(0)}{h_{\max}}\right)$. The gray zone symbolizes the unresolved meniscus.

principal curvature is zero at the contact with the wall, this relation gives us the radius of curvature of the meniscus near the transition to the flat film: $r^* = H_o(1 - (\pi H_o/(4R)) = H_o(1 - 0.06)$ at the first order in H_o/R. Using r^* instead of H_o in eq. 4.5 gives a correction on the film thickness of order $Ca^{2/3}H_o/R$, neglected in Burgess & Foster (1990). Here, this correction is of about 6% and lies within the experimental error bar. For this reason, further comparisons with the theory are made using a meniscus curvature of $1/H_o$.

4.3. *Rear meniscus*

As shown in Fig.6, the transition between the central part of the film and the rear meniscus is characterized by a non-monotonous variation of the film thickness, in contrast to the behavior at the front of the droplet. The determination of the film thickness, from the images, in this region is thus delicate and is discussed in Appendix A. When approaching the rear meniscus from the flat film along the x axis, the film thickness first increases towards a maximum value $h_{\max}$, then decreases before finally diverging when reaching the meniscus. The minimum thickness, located between the bump at $h_{\max}$ and the rear meniscus, is not resolved on all images and its value is therefore not reported in this paper. Indeed, around the minimum, the film thickness varies so fast that an average gray level is obtained on the images. Consequently, the position of the minimum is resolved within one pixel whereas the film thickness value is not resolved. On the graphs the unresolved meniscus is symbolized by a gray zone, see Fig. 6.

Given the very good agreement found at the front meniscus, these experimental profiles are first compared to Bretherton's prediction for the rear meniscus, *i.e.* the solution of

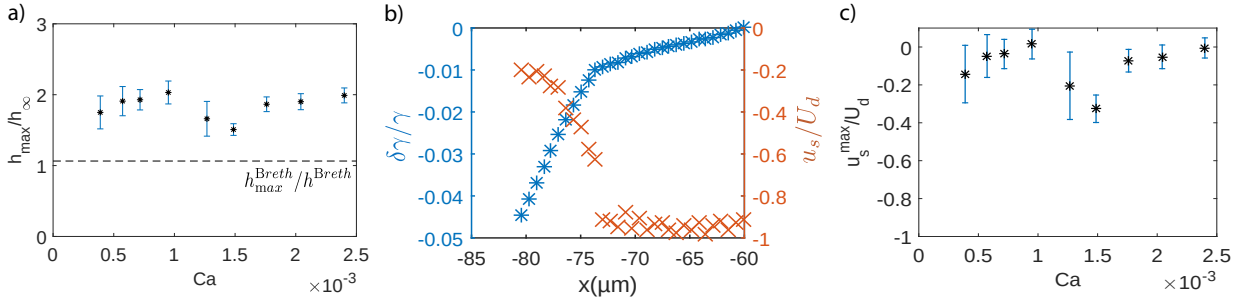

FIGURE 7. **(a)** Maximum height at the bump, relative to height in the flat film. **(b)** Surface tension and interfacial velocity in the thickening region, relative to their values in the flat film. Data points are obtained by applying Eq. (4.7) and Eq. (4.8) to the experimental thickness profile for $Ca = 1.3 \times 10^{-3}$ (Fig. 6.c). **(c)** Variation of the maximum interfacial velocity at the bump relative to that of the droplet, as a function of Ca.

Eq. (4.4) for a stress-free boundary condition, with a curvature $1/H_o$ at small x and a flat film of thickness h^{Breth} at large x. Surprisingly, we find that the experimental profiles of the rear meniscus are very far from the theory, see Fig. 6.a.b.c. We observe significant thickening of the lubrication film as we approach the rear meniscus: in particular, the relative height variation at the bump, $\frac{h_{\max}-h_\infty(y=0)}{h_\infty(y=0)}$ is one order of magnitude higher in our experiments. Indeed, the ratio $h_{\max}/h_\infty(y=0)$ is plotted in Fig. 7.a: we measure $h_{\max}/h_\infty(y=0) \simeq 1.7$ for all capillary numbers, whereas the prediction for a stress-free interface is $h^{\mathrm{Breth}}_{\max}/h^{\mathrm{Breth}} = 1.064$.

Similarly to the front region, the system is almost invariant in the y direction close to the x axis, and the dynamical processes in the rear meniscus along x can be described with a 2D model. In that frame, a departure from the Bretherton's solution is the signature of surface tension variations. These variations can in principle be deduced from the experimental profiles: Eq. (4.2) allows to determine the interfacial velocity u_s, and then Eq. (4.3) leads to the surface tension profile. However, the determination of the third derivative (involved in equation 4.2 and 4.3) of the film thickness from our experimental data is out of reach. In this context, the rear meniscus is decomposed into two parts as justified in section 4.4: the thickening region, between the flat film and the maximum of the bump, and the oscillating region, between the maximum of the bump and the static rear meniscus (see the definition in Fig. 6.c). Both regions are analyzed in the next sections.

4.4. *Thickening region*

We first focused on the thickening region. Two effects can lead to such an increase of the film thickness: the Laplace pressure, leading to a bump of high $h^{\mathrm{Breth}}_{\max}$, and a surface tension-induced modification of the interfacial velocity, as already observed in Cantat & Dollet (2012). As the experimental value of the bump height $(h_{\max} - h_\infty(0))$ is one order of magnitude larger than Bretherton prediction, we assume that the Laplace pressure variations are negligible in this domain of the film. With the interfacial velocity in the flat film u_s^0 equal to the wall velocity $-U_d$ (cf. Bretherton's solution in the flat film), Eq. (4.2) simplifies into

$$u_s(x) = U_d \left[1 - \frac{2h_\infty(0)}{h(x,0)}\right] . \tag{4.7}$$

This equation gives access to the interfacial velocity profile in the thickening region, shown in Fig. 7.b. It varies from -U_d in the flat film, as assumed in the model, to a maximal

value $u_s^{\max}$ in the range $[-0.3, -0.1]U_d$, see Fig. 7.c. In other words, the interface resists entrainment by the lower wall and adopts a velocity closer to the droplet velocity (which is null in the frame of reference). As a consequence, the liquid phase in the thickening domain of the film is strongly sheared.

Since the Laplace pressure is negligible in this region, the velocity varies linearly from $-U_d$ at the wall to $u_s(x)$ at the interface. Integrating the Marangoni Eq. (4.3) between the flat film ($x_{\min} = -60$ μm) and x gives

$$\delta\gamma(x) = \eta_o \int_{x_{\min}}^{x} \frac{u_s(u) + U_d}{h(u,0)} \, \mathrm{d}u \; . \tag{4.8}$$

The relative interfacial tension variation $\delta\gamma(x)/\gamma$ is plotted in Fig. 7.b. The surface tension decreases from $\gamma = 15$ mN/m in the flat film (the reference value at equilibrium) to a smaller value $\gamma_{\min}$ at the top of the bump. $\Delta\gamma = \gamma_{\min} - \gamma$ is constant over our range of capillary numbers within the precision of our error bars, and of order $\Delta\gamma \sim -5 \times 10^{-4}$N/m, which corresponds to a $\sim 3\%$ decrease. Despite the small value, this variation has measurable consequences on the flow.

A decreasing surface tension at the back of the droplet is consistent with the accumulation of surfactants at a convergent stagnation point along the x axis, in the rear transition zone (see Fig. 8.a). The existence of a stagnation point was predicted theoretically by Bretherton (1961); Burgess & Foster (1990); Zhu & Gallaire (2016), while Park (1992) discussed theoretically the accumulation of surfactant at this point. In turn, this variation in surface tension generates a Marangoni stress reducing the compression of the interface in the dynamical meniscus, and therefore the velocity variations in the oscillating region.

4.5. *Oscillating region*

Closer to the rear meniscus, both the Laplace pressure effect and the presence of surfactant at the interface contribute. We propose a semi-empirical model to predict the film profile in this domain. In light of the previous analysis, we assume an incompressible interface of uniform velocity $u_s^{\max}$, measured above. Eq. (4.2) then becomes:

$$-\gamma \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} = \frac{6\eta_o U_d}{h^2} \left[u_s^{\max} - U_d\right] \left[h - h_\infty^*\right] \tag{4.9}$$

with $u_s^{\max} = U_d(1 - \frac{2h_\infty}{h_{\max}})$. The curvature at small x is $1/H_0$ and the film thickness h_∞^* at large x is fitted so that the maximum height $h_{\max}$ is recovered by the model, *i.e.* $h_\infty^* = h_{\max}/1.064$. This numerical prediction is now in very good agreement with the experimental back oscillation, see Fig. 6.

4.6. *Conclusion*

Fig. 8 provides a schematic representation of the mechanisms at play. Pushed by the moving wall, surfactants accumulate at the rear of the droplet, locally decreasing the surface tension. The resulting Marangoni stress imposes a constant interfacial velocity in the oscillating region. The thickening region corresponds to a compression zone in the thin film, where the interfacial velocity rapidly increases from a value close to the wall velocity in the flat film, to a value close to the droplet velocity at the rear. The signature of this transition is a sudden thickening of the film. The accumulation of surfactant at the interface means that the characteristic time for surfactant desorption is larger than the convection time in this region. Oppositely, interface is created at a divergent stagnation point at the front meniscus. Since the convection times in these two different regions

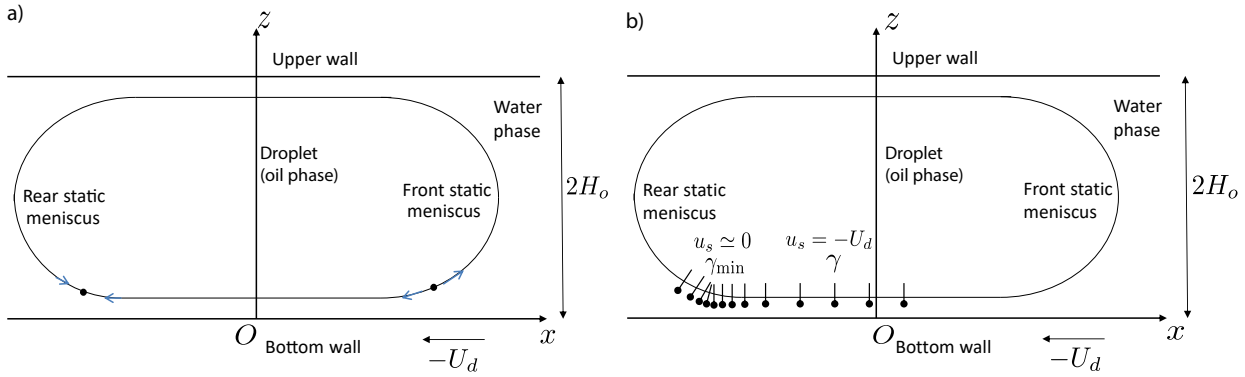

FIGURE 8. Schematic side views of the droplet. **(a)** Bretherton's classical model predicts two stagnation points: a divergent one in the front dynamical meniscus, and a convergent one in the rear dynamical meniscus. **(b)** Representation of a surfactant concentration field at the interface, consistent with our measurements for the interfacial velocity.

have the same order of magnitude, and we find very good agreement with the stress-free model at the front meniscus, we conclude that the adsorption kinetic of the surfactant is faster than its desorption kinetic. Another possible mechanism is the accumulation of traces of non soluble species accumulating at the rear Stebe et al. (1991); Palaparthi et al. (2006); Hourlier-Fargette et al. (2017).

In a nutshell, the lubrication film must be split into three regions in terms of boundary condition: 1) the front meniscus and flat film, with a *stress-free* interface, 2) the oscillating region at the rear meniscus, with an *incompressible* interface of velocity $u_s^{\max}$, and 3) a transition zone, or thickening region, between the first two.

5. Transverse film profiles

The transverse variation of the film thickness $h(0, y)$ as a function of y is shown in Fig. 9. By definition, $h(0, y) = h_\infty(y)$ for $|y| < y_{\max}$. In this domain, $h_\infty(y)$ is maximal for $y = 0$ and slowly decreases as $|y|$ increases. Then for $|y| > y_{\max}$, the thickness decreases with a steeper slope before increasing sharply close to the lateral meniscus, creating what we refer to as lateral ravines.

5.1. *Central region and front meniscus*

Burgess & Foster (1990) showed that Bretherton's 2D approach remains valid close to the front of the droplet if the capillary number is defined using the projection of the velocity along the normal to the film contour $\mathbf{e}_\rho$. This can be understood qualitatively at the scale of the dynamical meniscus, in the local frame $(\mathbf{e}_\rho, \mathbf{e}_\theta, \mathbf{e_z})$. In the plane $(\mathbf{e}_\rho, \mathbf{e_z})$ chosen at an arbitrary angle $\theta^{fr} \ll \pi/2$ (Fig. 3), Bretherton's problem is recovered: the Laplace pressure is governed by the curvature $1/H_o$ of a meniscus quasi-invariant in the $\mathbf{e}_\theta$ direction, the viscous forces are governed by the wall velocity $-U_d \cos(\theta^{fr})$, and the tangential wall velocity $U_d \sin(\theta^{fr})$ has no influence on the profile. Since the thickness of the lubrication film deposited behind the front dynamical meniscus is determined by the balance of the viscous and Laplace pressure contributions, it is expected to decrease with increasing θ^{fr}

Then, far enough from the front dynamical meniscus along $\mathbf{e}_\rho$, the pressure gradients scale as $\nabla P^{\text{film}} \sim \gamma h_\infty / R^3$. This pressure gradient induces velocities of order $\nabla P^{\text{film}} h^2/\eta_o \sim 10^{-8}$m/s, which are negligible compared to our droplet velocities. Once formed in the front meniscus domain, the thin film stays at rest on the wall in the central region until it reaches the rear meniscus domain. The film thickness $h^{\text{BF,c}}(y)$ in the

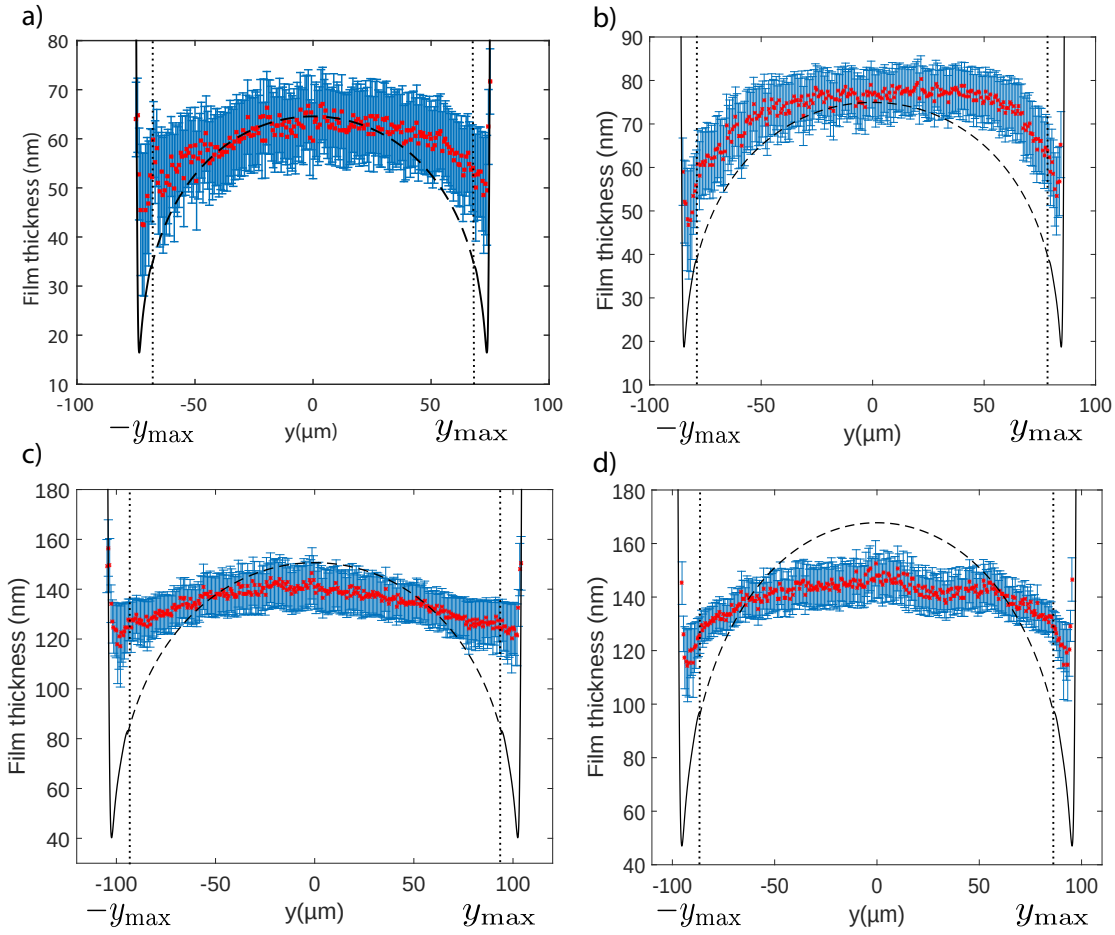

FIGURE 9. Transverse film profiles, for **(a)** $Ca = 5.7 \times 10^{-4}$, **(b)** $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$, **(c)** $Ca = 2 \times 10^{-3}$ and **(d)** $Ca = 2.4 \times 10^{-3}$. The dashed line is $h^{\mathrm{BF,c}}$, given by Eq. (5.1). The black solid line is the solution of Eq. (5.4). The dotted lines indicate $y_{\max}$.

central region is thus determined by the velocity normal to the droplet's contour at the same value of y, $-U_d \cos(\theta^{\mathrm{fr}})$, and does not depend on x. This leads to the prediction for the central film (Burgess & Foster (1990)):

$$h^{\mathrm{BF,c}}(y) = 1.337\, H_o \left[Ca \cos(\theta^{\mathrm{fr}})\right]^{2/3} = 1.337\, H_o Ca^{2/3} \left[1 - \frac{y^2}{R^2}\right]^{1/3} . \qquad (5.1)$$

This corresponds to a weighted Bretherton model, based on the local normal velocity in the front meniscus domain. The transverse variation of $h_\infty(y)$ is compared to $h^{\mathrm{BF,c}}(y)$ in Fig. 9, for $|y| < y_{\max}$. We find that the vault shape of the experimental profile is qualitatively recovered by the model, but the decrease on the sides is overestimated.

5.2. *Lateral region*

The front meniscus domain ends at $\theta_{\max} = 6\pi/16$ without sharp transition. Near the sides, for $|\theta| > \theta_{\max}$, the thickness collapses close to the meniscus: a pinch develops, see the radial profiles plotted in Fig. 10. We define the film thickness at the pinch $h_p(\theta)$ as the minimum of $h(\rho, \theta)$ for a given θ in the lateral domain. The variation of $h_p(\theta)$ with θ is shown in Fig. 12: $h_p(\theta)$ decreases down to a minimal value $h_{\min}$, for θ_m slightly larger than $\pi/2$, then increases under the influence of the rear meniscus. For $|\theta|$ larger than a critical angle $\theta_b \in [\theta_m; \pi - \theta_{\max}]$, a bump precedes the pinch, see Fig. 10.e and 10.f. θ_b

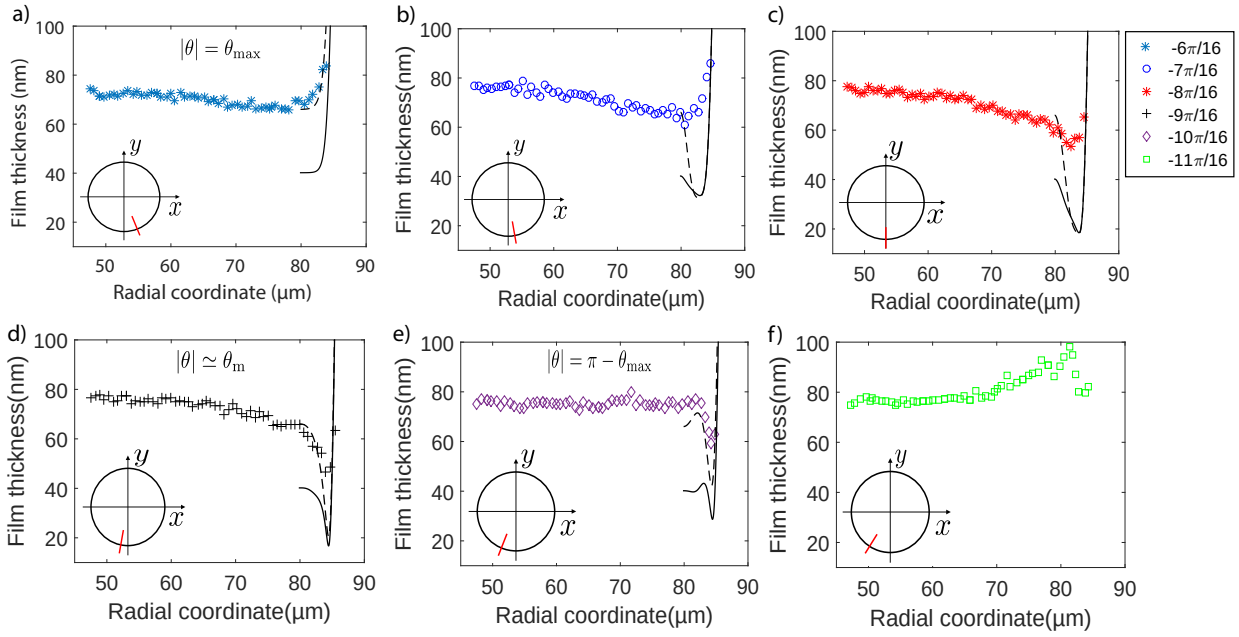

FIGURE 10. Radial profiles for **(a)** $\theta = -\frac{6\pi}{16}$, **(b)** $\theta = -\frac{7\pi}{16}$, **(c)** $\theta = -\frac{8\pi}{16}$ **(d)** $\theta = -\frac{9\pi}{16}$, **(e)** $\theta = -\frac{10\pi}{16}$ and **(f)** $\theta = -\frac{11\pi}{16}$ for $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$. Solid line: solution of (5.4) with the numerical profile $h^{\rm num}(\rho, \theta_{\max})$ as initial condition, *i.e.* the solution of (5.3) for $\theta = \theta_{\max} = \frac{\pi}{2} - \delta'_\theta \phi'_{\max}$. Dashed line: solution of (5.4) using the experimental profile $h^{\rm exp}(\rho, \theta_{\max})$ as an initial condition. Inset: the red line indicates the location of the radial profile for each angle value.

and $\pi - \theta_{\max}$ are of the same order and the small interval $[\theta_b; \pi - \theta_{\max}]$ represents the transition from the lateral domain to the rear meniscus domain.

5.2.1. *Hydrodynamical approach*

To describe formally the lateral meniscus, a weighted 2D Bretherton model based on the normal velocity is no longer physical, since the meniscus is no longer perpendicular to the flow, and would lead to a null film thickness for $\theta = \pi/2$. In this region, the orthoradial viscous entrainment $\propto U_d \sin\theta$ has to be considered. To account for this truly 3D process, the lubrication equations established by Burgess & Foster (1990) are adapted to our geometry and solved numerically. This model relies on the same approximations as previously, except for the assumption of transverse translational invariance. The Stokes equation in the lubrication approximation, $\nabla^{2D} p = \eta_o \partial^2 \mathbf{u}/\partial z^2$, is written in cylindrical coordinates and integrated three times with respect to z to get the flow through the film thickness h. The boundary conditions are $\mathbf{u}(0) = -U_d \mathbf{e}_x$ and $\partial \mathbf{u}/\partial z(h) = 0$. Applying the continuity equation to the flow yields:

$$U_d \cos\theta \frac{\partial h}{\partial \rho} - \frac{U_d \sin\theta}{\rho} \frac{\partial h}{\partial \theta} - \frac{\partial}{\partial \rho}\left[\frac{\gamma}{3\eta_o} \frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3} h^3\right] = 0, \tag{5.2}$$

see detail in Appendix B.

The second term of Eq. (5.2) is negligible for angle θ up to $\theta = \theta_{\max}$ since the orthoradial variations $(1/\rho)(\partial h/\partial\theta)$ of h is much smaller than the radial variations $\partial h/\partial\rho$ of h for $H_0 \ll R$. In this condition, the second term can be neglected in (5.2), for $\theta < \theta_{\max}$ so that Bretherton's equation (4.4) is recovered using the local normal velocity $U_d \cos\theta$:

$$U_d \cos\theta (h - h_\infty) = \frac{\gamma}{3\eta_o} \frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3} h^3. \tag{5.3}$$

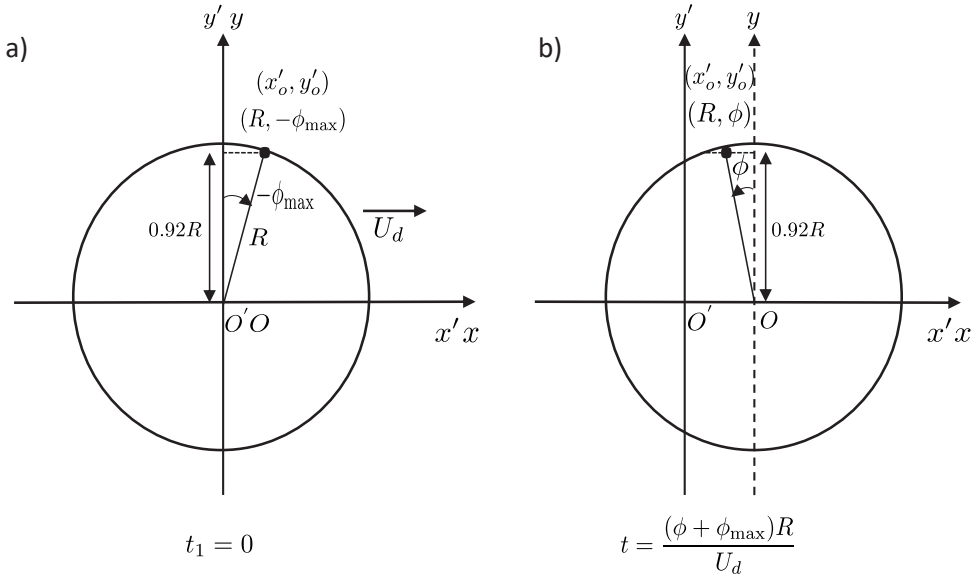

FIGURE 11. Analogy with a soap film deposited along θ rather than over time. **(a)** A film of thickness $h_\infty(\phi_{\max}) = 1.337 H_o Ca^{2/3} (\phi_{\max})^{2/3}$ is deposited at $(R, -\phi_{\max}) = (R, -(\frac{\pi}{2} - \theta_{\max}))$ and **(b)** thins until the influence of the rear meniscus is felt.

As discussed earlier, solving this equation leads to the solution (5.1).
On the lateral side of the droplet, however, the orthoradial component of the viscous driving has to be considered and all three terms of (5.2) must be taken into account. To build a master equation, ensuring that the first two terms in Eq. (5.2) are of the same order of magnitude as long as the rescaled angle is of order 1, Burgess & Foster (1990) introduce the following rescalings:

$$\rho = R + H_o \delta_r r' \qquad z = H_o \delta_z z' \qquad h = H_o \delta_z h' \qquad \theta - \frac{\pi}{2} = \phi = \delta_\theta \phi'$$

where $\delta_r = \left(\epsilon^{1/2} Ca\right)^{2/5}$, $\delta_z = \left(\epsilon^{1/2} Ca\right)^{4/5}$ and $\delta_\theta = \epsilon^{1/2} \left(\epsilon^{1/2} Ca\right)^{1/5}$. These quantities involve $\epsilon = H_0/R$ and the capillary number Ca, under the assumption $Ca \ll \epsilon \ll 1$. With $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$ and $\epsilon = 8 \times 10^{-2}$, we get $\delta_r = 0.03$, $\delta_z = 0.001$ and $\delta_\theta = 0.05$ rad$= 3°$. Using these non dimensional variables and a first order expansion of the sin and cos terms around $\pi/2$, Eq. (5.2) becomes:

$$\left(\frac{1}{3} h'_{r'r'r'} h'^3 + \phi' h' \right)_{r'} = -h'_{\phi'} \tag{5.4}$$

5.2.2. *Analogy with marginal pinching in soap films*

To put this last equation in a different light, it is worth noticing that by taking out the term for a radial viscous supply of liquid $((-\theta' h')_{r'}$, negligible for $\theta \sim \pi/2$) and replacing θ' by the time t, we recover the equation describing the drainage of a soap film (Aradian et al. (2001)). In other words, in this region the lubrication film can be pictured as a soap film being drained along θ, rather than over time. The capillary suction by the lateral meniscus is responsible for the apparition of the pinch for $\theta > \theta_{\max}$ on both sides of the droplet, see Fig. 10.

This process is quantified by Aradian et al. (2001) in a 2D geometry, much simpler than the 3D droplet investigated by Burgess & Foster (1990) and the present work. However, we can establish that the scalings obtained for the pinch thickness and width are identical in both cases. In Aradian et al. (2001), a foam film is put into contact with a meniscus

at time $t = 0$. The film is pinched, with a minimal thickness H^m and a pinch width W evolving over time. They assume a no-slip condition at the air/liquid interfaces, so that the problem is equivalent to a film deposited on a solid wall, with a stress free condition at the air/liquid interface, and can be directly translated to our case.

We look at the droplet motion in the laboratory frame of reference, (O', x', y', z'); the geometrical parameters used are defined in Fig. 11. A thin film is produced at a position (x', y') when the front of the droplet passes that point, at time called t_1. The rear meniscus reaches this point (x', y') at the time called t_2. If $y' \ll R$, i.e. close to the x axis, the fluid velocity is negligible in the central film (see section 5.1) and the thin film is thus at rest on the wall between t_1 and t_2. However, close to the lateral meniscus, this assumption fails. The lateral capillary suction (in the y' direction) induces a film thinning lasting between times t_1 and t_2 and the formation of the pinch.

To compare our study with Aradian's one, we consider the film deposited at the point (x'_0, y'_0), with $y'_0 = y_{\max}$. It has the polar coordinates $(\rho = R; \phi = -\phi_{\max} = -(\pi/2 - \theta_{\max})$ at the time t_1 (with the laboratory and drop frames at the same position at time t_1). For convenience sake, we choose $t_1 = 0$. The thickness of the deposited thin film is $h_\infty(\phi_{\max}) = 1.337 H_o Ca^{2/3} (\phi_{\max})^{2/3}$ (at first order in $\phi_{\max}$). At a later time t, the polar coordinates are $(\rho = R; \phi = -\phi_{\max} + U_d t/R))$ (see Fig. 11). So the age of the film since the beginning of the pinching process is simply $t = (\phi + \phi_{\max})R/U_d$.

The scaling laws at long times for the pinch profile give us (Aradian et al. (2001)):

$$\begin{aligned} W &\sim H_o \left(\tfrac{\eta_o h_\infty(\phi_{\max})}{\gamma} \right)^{1/4} (t)^{-1/4} \\ H^m &\sim H_o \left(\tfrac{\eta_o h_\infty(\phi_{\max})}{\gamma} \right)^{1/2} (t)^{-1/2} \end{aligned} \tag{5.5}$$

In these equations, the theoretical value of $\phi_{\max}$ remains to be determined. It corresponds to the point where the film thickness gradient, projected along x, is no longer dominated by the radial gradient (Burgess & Foster (1990)). In the lateral region, at the first order in ϕ, $\partial h/\partial x = -(1/R)\partial h/\partial \phi - \phi \partial h/\partial \rho$. Equaling both contributions at $\phi = \phi_{\max}$, and using $\partial/\partial\phi \sim 1/\phi_{\max}$ and $\partial/\partial\rho \sim 1/W$, we get $\phi_{\max} = (W/R)^{1/2}$. Injecting it in $h_\infty(\phi_{\max})$ and solving the system 5.5 yields:

$$\begin{aligned} W &\sim H_o \left(\tfrac{H_o}{R}\right)^{1/5} Ca^{2/5} \left(1 + \tfrac{\phi}{\phi_{\max}}\right)^{-1/4} \\ H^m &\sim H_o \left(\tfrac{H_o}{R}\right)^{2/5} Ca^{4/5} \left(1 + \tfrac{\phi}{\phi_{\max}}\right)^{-1/2} \\ \phi_{\max} &\sim \left(\tfrac{H_o}{R}\right)^{3/5} Ca^{1/5} \end{aligned} \tag{5.6}$$

This is the same scaling as the one established by Burgess & Foster (1990).

As a last remark, the interface profile at given time (or angle in our situation) is related to two different length scales in Aradian et al. (2001): the radius of curvature in the vicinity of the pinch, and the distance between the minimal thickness and the unperturbed flat film. The first one scales as W, which decreases with ϕ, whereas the second scales as $\lambda \sim H_o Ca^{3/5} (H_o/R)^{1/5} \left(1 + \frac{\phi}{\phi_{\max}}\right)^{1/4}$, which increases with ϕ. The presence of two different length scales to characterize the interface profile in the radial direction means that, contrary to the front dynamical meniscus, the profiles are not self similar in the lateral region.

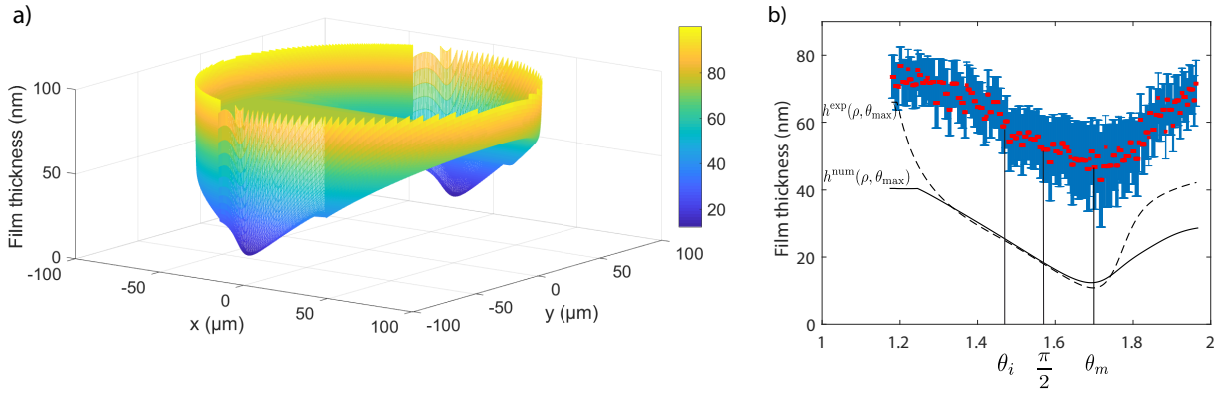

FIGURE 12. **a** Numerical topography obtained by joining the profiles calculated in the different dynamical meniscii with the central domain for $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$. **b** Minimum film thickness across the pinch $h_p(\theta)$ as a function of θ for $|\theta| \in [\theta_{\max}; \pi - \theta_{\max}]$. The inflexion point occurs for θ_i =1.47 rad and the minimal thickness $h_{\min}$ is reached for θ_m =1.72 rad. Solid line: solution of (5.4) using the solution of (5.3) for $\theta = \theta_{\max} = \frac{\pi}{2} - \delta_\theta^{'}\phi_{\max}^{'}$, $h^{\mathrm{num}}(\rho, \theta_{\max})$, as an initial condition for the numerical calculation. Dashed line: solution of (5.4) using the experimental profile for $\theta = \theta_{\max}$, $h^{\exp}(\rho, \theta_{\max})$, as an initial condition.

5.2.3. *Results and discussion*

To compare that theoretical approach to our experimental data, we establish numerical profiles by solving Eq. (5.4) for $-\phi_{\max}^{'} \leqslant \phi^{'} \leqslant \phi_{\max}^{'}$ with $\phi_{\max}^{'}$ =7.5 and $-18 \leqslant r^{'} \leqslant 26$. This corresponds, in physical units, to the parameter range $[\theta_{\max} = \frac{6\pi}{16}; \pi - \theta_{\max} = \frac{10\pi}{16}]$ and $[\rho_{\min} = 79\mu\mathrm{m}\ ;\ \rho_{\max} = 90\mu\mathrm{m}]$. A profile $h'(r', -\phi'_{\max})$ is chosen as initial condition and the profiles $h'(r', \phi')$ for larger angles are obtained using a Crank-Nicolson scheme. The boundary conditions are a constant curvature in the meniscus, $d^2h/dr^2(\rho_{\max}) = 1/H_o$, and a connection to a flat film of constant thickness, $h(\rho_{\min}, \theta) = h(\rho_{\min}, \theta_{\max})$. The simulations have been performed using either the numerical profile from Eq. (5.3), $h^{\mathrm{num}}(\rho, \theta_{\max})$, or the experimental profile $h^{\exp}(\rho, \theta_{\max})$ for the initial condition at $\phi' = -\phi'_{\max}$. An example of the numerical topography of the film obtained by joining the calculated profiles in the different dynamical meniscii with the central domain is shown in Fig. 12.a, while the solid line and the dashed line in Fig. 12.b are the solutions of (5.4) computed respectively from $h^{\mathrm{num}}(\rho, \theta_{\max})$ and $h^{\exp}(\rho, \theta_{\max})$.

Several qualitative features are well recovered by the simulations. As expected, a pinch develops, Fig. 10, as the film thickness decreases slowly from the initial condition before increasing sharply near the rear meniscus, see Fig. 12.b. Its characteristic width in the $\mathbf{e}_\rho$ direction is in good agreement with the experimental observations, Fig. 10. In agreement with Eq. 5.6, W decreases with ϕ for $\phi \in [-\phi_{\max}; \phi_m]$ ($\phi_m = \theta_m - \frac{\pi}{2}$), however our image resolution does not allow us to measure a power law exponent for its variation with ϕ or Ca. The angles θ_m, corresponding to the smallest pinch thickness, and θ_b, at which the bump appears, are both predicted quantitatively, see Fig. 10.d-e. θ_i, shown in Fig. 13.a and Fig. 12.b, is the angle at which the curvature inversion occurs and is used to measure the ravines angular extension. The angular extent of the pinch, $\Delta\theta = \theta_m - \theta_i$, is measured from $h_p(\theta)$, and its variation with Ca is shown in Fig. 13.b, for both experimental and numerical datasets. The correct order of magnitude is recovered, though we cannot draw conclusions on the trend in Ca.

In contrast, the film thickness at the pinch is strongly underestimated by the model, for every capillary number and independently on the initial conditions. The minimum film thickness in the lateral meniscus, $h_{\min}$, does not seem to follow the predicted scaling

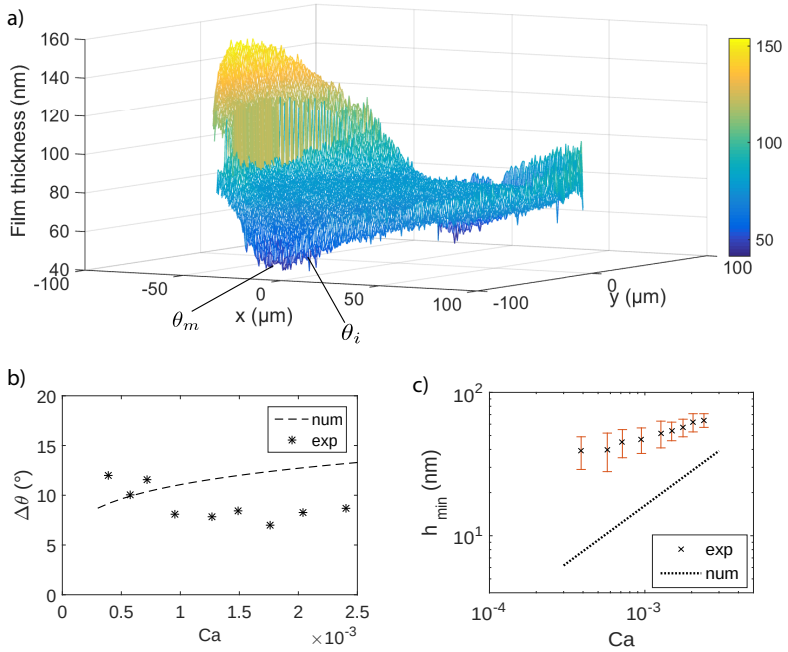

FIGURE 13. **(a)** Experimental topography for $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$. **(b)** Angular extent of the lateral meniscus as a function of Ca. The dashed line is $\Delta\theta$ given by the numerical calculation. **(c)** Minimal film thickness in the lateral region, $h_{\min}$, as a function of Ca. The dotted line is $h_{\min}$ obtained from the numerical calculation.

$\propto Ca^{4/5}$ (Fig. 13.c). As for $h_p(\theta)$, or equivalently H^m, the angular range $|\theta| \in [\theta_i, \theta_m]$ over which the scaling from Eq. (5.6) can be compared to the experimental profile (Fig. 12.b), and predicts a decrease with θ, is too small to allow us to measure a power law exponent. Then, for $|\theta| > \theta_m \simeq \pi/2 + \pi/16$, $h_p(\theta)$ increases with $|\theta|$ due to the rear meniscus, which could not be captured by the analogy with a 2D soap film.

To sum things up in the lateral region, the hydrodynamical model manages to predict accurately the appearance of the pinch and the related characteristic angles, but fails to capture quantitatively the height of the lubrication film, which is underestimated even in the outer edges of the central region. The disjoining pressure cannot be responsible for that thickening of the film: as mentioned above, the Debye length is two orders of magnitude smaller than the typical film thickness. Moreover, the signature of disjoining pressure effects would be a saturation of the film height at a constant value as $|\theta|$ increases, which we do not observe. The discrepancy between the numerical and experimental profiles is more likely due to the omission of a physical ingredient in the model than to one of its approximations. Similarly to what we observe at the rear meniscus, we expect Marangoni effects to account for this thickening: the pinching of the film by capillary suction could be slowed down by a stiffening of the interface. Modeling the lateral sides of the film topography would then require to determine the surfactant distribution at the interface, and calculate the resulting additional Marangoni stresses affecting the flow in the film. This is a much more complex endeavour than at the rear meniscus, where the uniaxial flow allowed us to neglect the pressure gradients at the bump, and thus estimate the interfacial velocity. In the lateral region, the loss of uniaxiality does not allow to estimate the 2D interfacial velocity and is beyond the scope of this paper. The numerical topography obtained from this model is actually more likely to reproduce the lubrication film developing in non surfactant laded systems or slower droplets, for which Marangoni effects are less prone to appear. In this case, the friction in the dynamical meniscii can

be determined, and balancing it with the external driving pressure force should allow to predict the droplet velocity.

6. Conclusion

We report on the first quantitative experimental study analyzing the whole topography of the lubrication film under a moving, confined droplet. A purely hydrodynamical model allows us to qualitatively recover its main features, such as a thickening of the lubrication film as the velocity increases, with the development of ravines along the sides and an oscillation at the rear. Importantly, we find that the complete topography cannot be well-described by assuming a single general boundary condition along the whole interface. Bretherton's model captures quantitatively the behavior at the front meniscus and in the central, flat region. However, variations in surfactant distribution and interface velocity lead to local thickening of the lubrication film, compared to the theoretical predictions. We can account for such a thickening at the rear meniscus, by assuming the interface to be locally incompressible, due to a higher concentration of surfactant around a stagnation point. Another film thickening occuring on the sides is more challenging to model, as it would require to write the surfactant distribution in a region where the interfacial velocity is 2D.

To our knowledge, we provide the first experimental evidence of a non-homogeneous surfactant concentration between the front and rear meniscus of a moving droplet, and a first measurement of such surface tension variations. To take this analysis further, similar experiments could be conducted at higher velocities, *i.e.* shorter convective times, to investigate the appearance of Marangoni effects at the front meniscus: this would provide an estimation for the adsorption time of C_{10}TAB. Oppositely, at lower velocities, the disappearance of Marangoni effects at the rear meniscus may give access to its desorption time. In short, our experimental approach proves very well-adapted to the study of confined traveling droplets. Several interfacial properties have been extracted and it is conceivable to access the adsorption/desorption kinetics of surfactants. We believe it could provide insight into more complex systems, such as viscous droplets, non-soluble surfactants, or complex fluids.

Appendix A. Determination of the film thickness at the rear oscillation

The relation between light intensity and film thickness is shown in Fig. 14.g: a given gray level can correspond to different heights. This appendix details our method to discriminate between the possible thicknesses. First, we determine the thickness of the film at the center of the droplet. There, the correct branch of the intensity-thickness relation can be identified by following the variation of the intensity with Ca, starting from a slow droplet for which the center sits on branch (1), see the picture in Fig. 14.a. Then, from pictures a to c, the intensity decreases as the film thickness increases along branch (1). Once the first minimum is reached, the intensity increases from pictures d to f, corresponding to a film thickening along branch (2). Then, as we move towards the front of the droplet, *i.e.* along the positive x axis ($y = 0$), the intensity decreases in Fig. 14.a. This corresponds to a decrease along the right side of branch (1), and a film thickness increase. A similar analysis is made for each picture. Oppositely, along the positive y axis ($x = 0$), the intensity increase means a shift towards the left side of branch (1) and a decrease in film thickness.

In contrast with the monotonous behavior at the front end, a crescent-like pattern is visible at the rear in Fig.14.a, where the light intensity varies over the whole range of gray levels. This makes the identification of the thickness *a priori* ambiguous. Moreover, the topography involves a local extremum (the middle of the crescent), so that the line

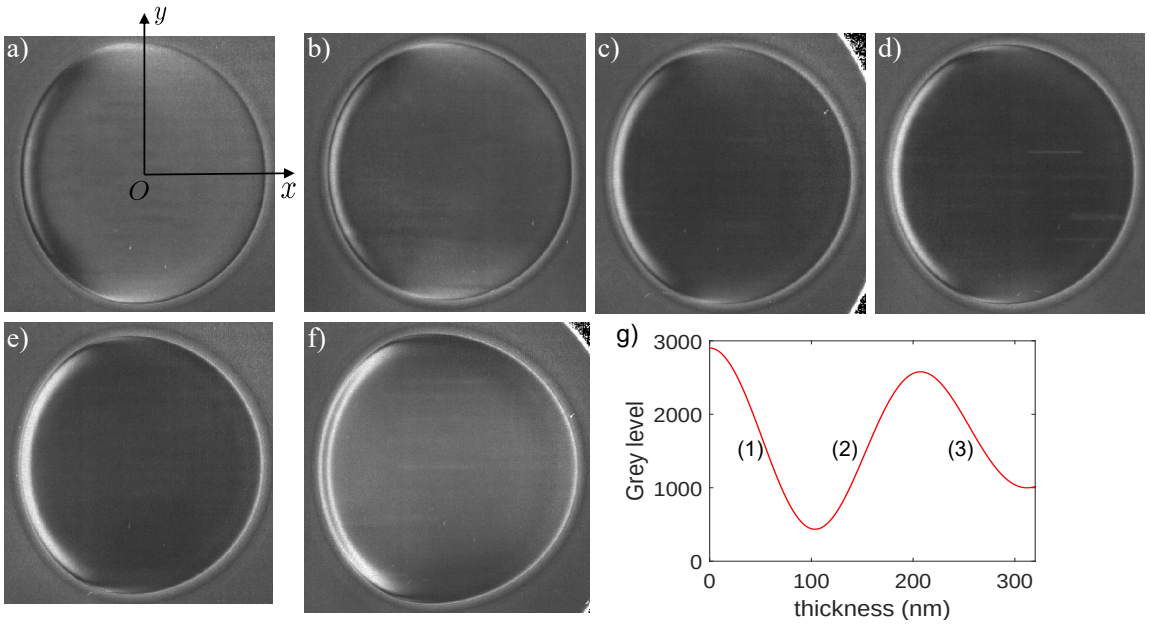

FIGURE 14. Raw pictures of droplets for **(a)** $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$ (diameter 170 μm), **(b)** $Ca = 9.5 \times 10^{-4}$ (diameter 173 μm), **(c)** $Ca = 1.3 \times 10^{-3}$ (diameter 180 μm), **(d)** $Ca = 1.5 \times 10^{-3}$ (diameter 176 μm), **(e)** $Ca = 1.8 \times 10^{-3}$ (diameter 174 μm), **(f)** $Ca = 2 \times 10^{-3}$ (diameter 195 μm). **(g)** Light intensity as a function of the film thickness, deduced from the optical model detailed in Huerre et al. (2016).

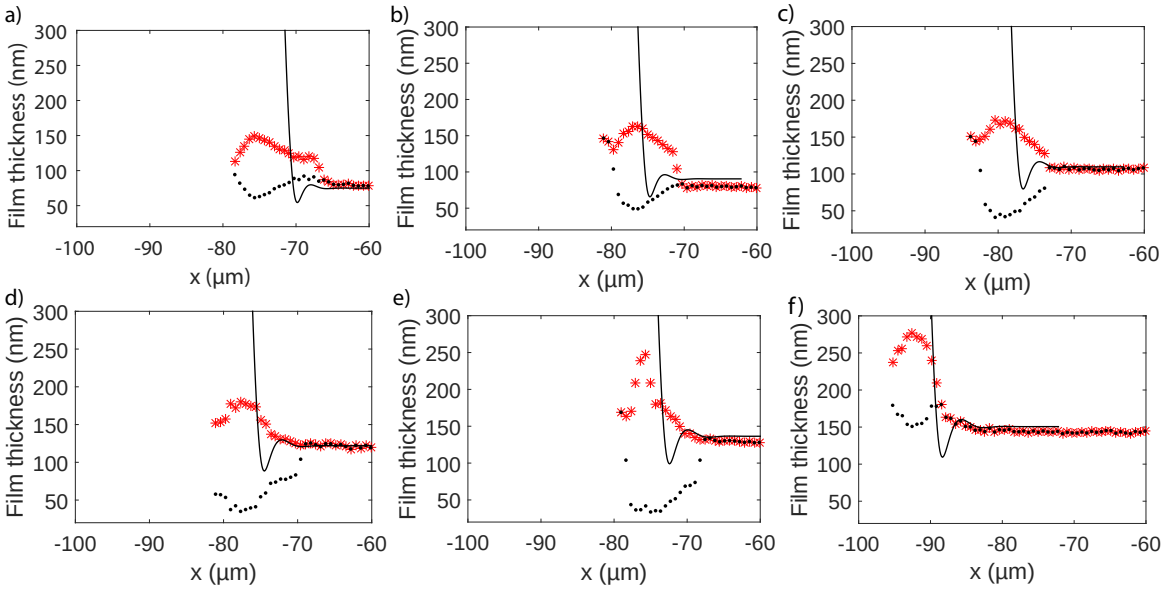

FIGURE 15. Two possible profiles (black dot :ravine, red star: bump) at the back of the droplet for **(a)** $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$, **(b)** $Ca = 9.5 \times 10^{-4}$; **(c)** $Ca = 1.3 \times 10^{-3}$; **(d)** $Ca = 1.5 \times 10^{-3}$; **(e)** $Ca = 1.8 \times 10^{-3}$; **(f)** $Ca = 2 \times 10^{-3}$

level continuity can not be used to remove the ambiguity. In Fig. 14.a for instance, the isolated bright crescent surrounded by dark pixels can either be a ravine branch (1)) or a bump (branch (2). To remove uncertainty, the two possible thickness profiles are shown in Fig. 15 for different Ca. Since the thickness is expected to vary monotonously for increasing capillary numbers, we can screen for the correct film profiles. In these examples, only the red stars correspond to a physical trend of film thickness evolution, and we can rule out the black dots that show a non monotonous evolution of the film thickness with increasing Ca.

The discarded profile, showing a deep ravine (black dots), is closer to Bretherton's theoretical prediction than the profile we selected. However, Bretherton's solution does not recover the right radial length-scale for the profile variation, and thus cannot in any case be an accurate fit to model the oscillation at the rear meniscus.

Appendix B. Lubrication equations for a circular droplet

The lubrication equation is $\nabla^{2D} p = \eta \partial^2 \mathbf{u}/\partial z^2$, with the velocity $\mathbf{u} = u_\rho \mathbf{e}_\rho + u_\theta \mathbf{e}_\theta$. Using the boundary condition $\mathbf{u}(0) = -U_d \mathbf{e}_x$ and $\partial \mathbf{u}/\partial z(h) = 0$ we get:

$$\frac{1}{\eta_o}\frac{\partial p}{\partial \rho} = \frac{\partial^2 u_\rho}{\partial z^2} = A \implies u_\rho = \frac{A}{2}\left(z^2 - 2\,z\,h\right) - U_d \cos\theta \tag{B 1}$$

$$\frac{1}{\eta_o \rho}\frac{\partial p}{\partial \theta} = \frac{\partial^2 u_\theta}{\partial z^2} = A' \implies u_\theta = \frac{A'}{2}\left(z^2 - 2\,z\,h\right) + U_d \sin\theta \tag{B 2}$$

The flux $\mathbf{Q} = \int_0^h \mathbf{u} dz$ is given by

$$\mathbf{Q} = \left(-\frac{A}{3}h^3 - U_d h \cos\theta\right)\mathbf{e}_\rho + \left(-\frac{A'}{3}h^3 + U_d h \sin\theta\right)\mathbf{e}_\theta \tag{B 3}$$

$$\mathrm{div}(\mathbf{Q}) = 0 = \frac{1}{\rho}\frac{\partial(\rho Q_\rho)}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho}\frac{\partial Q_\theta}{\partial \theta} \tag{B 4}$$

$$= -\frac{Ah^3}{3\rho} - \frac{1}{3}\frac{\partial(Ah^3)}{\partial \rho} - \frac{U_d h \cos\theta}{\rho} - U_d \cos\theta \frac{\partial h}{\partial \rho} - \frac{1}{3\rho}\frac{\partial(A'h^3)}{\partial \theta} + \frac{U_d \sin\theta}{\rho}\frac{\partial h}{\partial \theta} + \frac{U_d h \cos\theta}{\rho} \tag{B 5}$$

Assuming $Ah^3/\rho \ll \partial(Ah^3)/\partial\rho$ and $(1/\rho)\,\partial(A'h^3)/\partial\theta \ll \partial(Ah^3)/\partial\rho$ we get

$$U_d \cos\theta \frac{\partial h}{\partial \rho} - \frac{U_d \sin\theta}{\rho}\frac{\partial h}{\partial \theta} + \frac{1}{3}\frac{\partial A h^3}{\partial \rho} = 0 \tag{B 6}$$

Acknowledgements

We thank Dr. Michel Stchakovsky for performing the ellipsometric measurements of the refractive indices used in the optical model. This work was funded by The Agence Nationale de la Recherche, through the TRAM grant.

REFERENCES

Aradian, Achod, Raphael, Elie & De Gennes, P-G 2001 Marginal pinching in soap films. *EPL (Europhysics Letters)* **55** (6), 834.

Bretherton, F. P. 1961 The motion of long bubbles in tubes. *J. Fluid Mech.* **10**, 166–188.

Burgess, D & Foster, MR 1990 Analysis of the boundary conditions for a hele–shaw bubble. *Physics of Fluids A: Fluid Dynamics* **2** (7), 1105–1117.

Cantat, I. 2013 Liquid meniscus friction on a wet wall: bubbles, lamellae and foams. *Phys. Fluids* **25**, 031303.

Cantat, I. & Dollet, B. 2012 Liquid films with high surface modulus moving in tubes: dynamic wetting film and jumpy motion. *Soft Matt.* **8**, 7790.

Champougny, Lorène, Scheid, Benoit, Restagno, Frédéric, Vermant, Jan & Rio, Emmanuelle 2015 Surfactant-induced rigidity of interfaces: a unified approach to free and dip-coated films. *Soft Matter* **11** (14), 2758–2770.

Delacotte, J., Montel, L., Restagno, F., Scheid, B., Dollet, B., Stone, H. A., Langevin, D. & Rio, E. 2012 Plate coating: Influence of concentrated surfactants on the film thickness. *Langmuir* **28** (8), 3821–3830.

Denkov, N. D., Tcholakova, S., Golemanov, K., Subramanian, V. & Lips, A. 2006 Foam-wall friction: Effect of air volume fraction for tangentially immobile bubble surface. *Colloids Surf. A* **282**, 329–347.

ANNEXE A

Résolution de l'équation de Bretherton [2]

Pour résoudre l'équation du profil

$$(h - h_\infty) = \frac{1}{3Ca}\frac{\partial^3 h}{\partial x^3}h^3 \tag{A.1}$$

cette dernière est adimensionnée en utilisant les changements de variables

$$h = r\bar{\delta}_z\bar{h} \quad \text{et} \quad x = \pm\left[(R-r) + r\bar{\delta}_x\bar{x}\right]$$

où $r\,\bar{\delta}_z$ et $r\,\bar{\delta}_x$ sont les échelles caractéristiques de variation de l'épaisseur du film et de x dans le ménisque dynamique. Dans le changement de variable de x, le symbole $+$ fait référence au ménisque avant et le $-$ au ménisque arrière. L'équation du profil devient :

$$(\bar{h} - \bar{h}_\infty) = \pm\frac{1}{3Ca}\frac{\partial^3 \bar{h}}{\partial \bar{x}^3}\bar{h}^3\left(\frac{\bar{\delta}_z}{\bar{\delta}_x}\right)^3$$

La condition $(\bar{\delta}_z/\bar{\delta}_x)^3 \sim Ca$ assure donc que les deux termes de l'équation du profil soient du même ordre. La relation supplémentaire entre $\bar{\delta}_x$ et $\bar{\delta}_z$, issue de la continuité des courbures entre le ménisque dynamique et le ménisque statique, $r\bar{\delta}_z/(r\bar{\delta}_x)^2 \sim 1/r$ permet alors de déterminer $\bar{\delta}_x$ et $\bar{\delta}_z$:

$$\bar{\delta}_x = Ca^{1/3} \text{ et } \bar{\delta}_z = Ca^{2/3}$$

L'équation adimensionnée du profil s'écrit :

$$3(\bar{h} - \bar{h}_\infty) = \pm\frac{\partial^3 \bar{h}}{\partial \bar{x}^3}\bar{h}^3$$

Pour la résolution numérique, on introduit les changements de variables $H = \bar{h}/\bar{h}_\infty$ et $\xi = \bar{x}/\bar{h}_\infty$, qui permettent de réécrire l'équation du profil sous la forme

$$3\frac{[H-1]}{H^3} = \pm\frac{\partial^3 H}{\partial \xi^3} \tag{A.2}$$

Les conditions limites sont $H(-\infty) = 1$, $H'(-\infty) = 0$, et $H''(-\infty) = 0$. Le problème est fermé avec la condition d'un raccord à un ménisque statique de courbure $1/r$ (r le rayon du capillaire), $\lim_{x\to\pm R} \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} = \frac{1}{H_o \bar{h}_\infty}\frac{\partial^2 H}{\partial \xi^2}(\infty) = \frac{1}{H_o}$. Cette condition est équivalente à

$$h_\infty = r\, Ca^{2/3}\frac{\partial^2 H}{\partial \xi^2}(\infty) \tag{A.3}$$

La résolution numérique nécessite la détermination de conditions limites à des distances finies, et ces dernières sont obtenues en linéarisant l'équation (A.2). Pour une valeur de ξ faible, notée $\xi_{\min}$, H est proche de 1 et le problème peut être linéarisé en utilisant le petit paramètre $\epsilon_1(\xi) = H(\xi) - 1$. L'équation (A.2) devient $3\epsilon_1 = \pm\epsilon_1'''$, qui a pour solution $\epsilon_1 = e^{K\xi}$, avec $K^3 = \pm 3$. Pour le ménisque avant $K = 3^{1/3}$ est la seule racine ayant une partie réelle positive et la solution $H(\xi) = 1 + \epsilon_0\, e^{3^{1/3}\xi}$ peut être utlisée pour déterminer les valeurs $H(\xi_{\min})$, $H'(\xi_{\min})$ et $H''(\xi_{\min})$ nécessaires pour résoudre l'équation (A.2) numériquement. Changer la valeur de ϵ_0 a pour seul effet de translater la solution suivant la direction ξ. En résolvant numériquement l'équation (A.2) dans le ménisque avant, on trouve $H''(\infty) = 1.337$, ce qui permet de retrouver le résultat pour l'épaisseur de film de Bretherton :

$$h_\infty = 1.337\, r\, Ca^{2/3} \tag{A.4}$$

Dans le ménisque arrière, l'équation linéarisée $3\epsilon_1 = -\epsilon_1'''$ admet deux racines avec une partie réelle positive $K = 3^{1/3}(1/2 \pm i\sqrt{3}/2)$. La solution générale de l'équation linéarisée est alors

$$\epsilon_1 = \epsilon_0\, e^{\frac{3^{1/3}\xi}{2}} \cos(3^{5/6}\xi/2 + \phi) \tag{A.5}$$

Changer la valeur de ϵ_0 a pour seul effet de translater la solution, en revanche faire varier la valeur de ϕ engendre des solutions différentes puisque $\frac{\partial^2 H}{\partial \xi^2}$ converge alors vers des valeurs différentes en $\xi \to \infty$. Ceci implique que dans le ménisque arrière, pour une valeur donnée du rayon du ménisque statique, une solution existe pour n'importe quelle épaisseur de film initiallement déposée sur la paroi. On choisit alors ϕ telle que $H''(\infty)$ =1.337 comme à l'avant, de façon à obtenir le profil d'un ménisque arrière se déplaçant sur un film de lubrification déposé par un ménisque avant de même rayon et se déplaçant à la même vitesse.

ANNEXE B

Équation du film de lubrification d'une bulle pancake en géométrie de Hele-Shaw [3]

L'équation de lubrification s'écrit $\boldsymbol{\nabla}^{2D} p_o = \eta_o \partial^2 \mathbf{u}_o / \partial z^2$, avec le champ des vitesses $\mathbf{u}_o = u_\rho\, \mathbf{e}_\rho + u_\theta\, \mathbf{e}_\theta$. Avec les conditions aux limites suivantes $\mathbf{u}(0) = -U_d\, \mathbf{e}_x$ et $\partial \mathbf{u}/\partial z(h) = 0$, on obtient :

$$\frac{1}{\eta_o}\frac{\partial p}{\partial \rho} = \frac{\partial^2 u_\rho}{\partial z^2} = A \implies u_\rho = \frac{A}{2}\left(z^2 - 2\,z\,h\right) - U_d \cos\theta \tag{B.1}$$

$$\frac{1}{\eta_o \rho}\frac{\partial p}{\partial \theta} = \frac{\partial^2 u_\theta}{\partial z^2} = A' \implies u_\theta = \frac{A'}{2}\left(z^2 - 2\,z\,h\right) + U_d \sin\theta \tag{B.2}$$

où la condition $H_o \ll R$ et l'approximation de lubrification permettent d'exprimer A et A' sous la forme :

$$A = -\frac{\gamma}{\eta_o}\frac{\partial^3 h}{\partial \rho^3} \qquad A' = -\frac{\gamma}{\eta_o \rho}\frac{\partial^3 h}{\partial \theta \partial \rho^2} \tag{B.3}$$

Le flux du champ des vitesses $\mathbf{Q} = \int_0^h \mathbf{u}\, dz$ est donné par

$$\mathbf{Q} = \left(-\frac{A}{3}h^3 - U_d h \cos\theta\right)\mathbf{e}_\rho + \left(-\frac{A'}{3}h^3 + U_d h \sin\theta\right)\mathbf{e}_\theta \tag{B.4}$$

$$\mathrm{div}(\mathbf{Q}) = 0 = \frac{1}{\rho}\frac{\partial(\rho Q_\rho)}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho}\frac{\partial Q_\theta}{\partial \theta} \tag{B.5}$$

$$= -\frac{Ah^3}{3\rho} - \frac{1}{3}\frac{\partial(Ah^3)}{\partial \rho} - \frac{U_d h \cos\theta}{\rho} - U_d \cos\theta \frac{\partial h}{\partial \rho} - \frac{1}{3\rho}\frac{\partial(A'h^3)}{\partial \theta} + \frac{U_d \sin\theta}{\rho}\frac{\partial h}{\partial \theta} + \frac{U_d h \cos\theta}{\rho} \tag{B.6}$$

La condition $H_o \ll R$ implique que $Ah^3/\rho \ll \partial(Ah^3)/\partial\rho$ et $(1/\rho)\,\partial(A'h^3)/\partial\theta \ll \partial(Ah^3)/\partial\rho$, ce qui permet d'approcher l'équation du film de lubrification par

$$U_d \cos\theta \frac{\partial h}{\partial \rho} - \frac{U \sin\theta}{\rho} \frac{\partial h}{\partial \theta} + \frac{1}{3} \frac{(\partial A h^3)}{\partial \rho} = 0 \tag{B.7}$$

ANNEXE C

Résolution de l'équation du film dans les ménisques dynamiques avant/arrière d'une bulle pancake [3]

Pour résoudre l'équation du profil dans les ménisques avant/arrière

$$[h - h_f(\theta)] = \frac{1}{3Ca\cos(\theta)} \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} h^3 \tag{C.1}$$

cette dernière est adimensionnée en utilisant les changements de variables

$$h = H_o \bar{\delta}_z \bar{h} \quad \text{et} \quad \rho = (R - H_o) + H_o \bar{\delta}_r^{\pm} \bar{r}$$

où $H_o\bar{\delta}_z$ et $H_o\bar{\delta}_r^{\pm}$ sont les échelles caractéristiques de variation de l'épaisseur du film et de ρ dans les ménisques dynamiques avant/arrière. Dans $H_o\bar{\delta}_r^{\pm}$, le symbole $(+)$ fait référence au ménisque avant et le symbole $(-)$ au ménisque arrière.

L'équation du profil devient :

$$(\bar{h} - \bar{h}_f) = \frac{1}{3Ca\cos(\theta)} \frac{\partial^3 \bar{h}}{\partial \bar{r}^3} \bar{h}^3 \left(\frac{\bar{\delta}_z}{\pm\bar{\delta}_r^{\pm}} \right)^3$$

Dans le ménisque avant $\cos(\theta) > 0$, et la condition $(\bar{\delta}_z/\bar{\delta}_r^{+})^3 \sim Ca\cos(\theta)$ assure que les deux termes de l'équation du profil soient du même ordre. La relation supplémentaire entre $\bar{\delta}_r^{+}$ et $\bar{\delta}_z$, issue de la continuité des courbures entre le ménisque dynamique et le ménisque statique, $H_o\bar{\delta}_z/(H_o\bar{\delta}_r^{+})^2 \sim 1/H_o$ permet alors de déterminer $\bar{\delta}_r^{+}$ et $\bar{\delta}_z$:

$$\bar{\delta}_r^{+} = [Ca\cos(\theta)]^{1/3} \text{ et } \bar{\delta}_z = [Ca\cos(\theta)]^{2/3}$$

L'équation adimensionnée du profil dans le ménisque avant s'écrit :

$$3(\bar{h}-\bar{h}_f)=\frac{\partial^3\bar{h}}{\partial\bar{r}^3}\bar{h}^3$$

En introduisant ensuite les changements de variables $H=\bar{h}/\bar{h}_f$ et $\xi=\bar{r}/\bar{h}_f$, on retrouve la même équation adimenssionée que pour un bulle se déplaçant dans un capillaire axisymétrique (cf. éq. (A.2))

$$3\frac{[H-1]}{H^3}=\frac{\partial^3 H}{\partial\xi^3}$$

La résolution de cette équation est présentée en Annexe A.

Dans le ménisque arrière $\cos(\theta)<0$, et la condition $\left(\bar{\delta}_z/\bar{\delta}_r^-\right)^3\sim -Ca\cos(\theta)$ assure que les deux termes de l'équation du profil soient du même ordre. La relation supplémentaire entre $\bar{\delta}_r^-$ et $\bar{\delta}_z$ issue de la continuité des courbures entre le ménisque dynamique et le ménisque statique, $H_o\bar{\delta}_z/(H_o\bar{\delta}_r^-)^2\sim 1/H_o$ permet alors de déterminer $\bar{\delta}_r^-$ et $\bar{\delta}_z$:

$$\bar{\delta}_r^-=[-Ca\cos(\theta)]^{1/3}\text{ et }\bar{\delta}_z=[-Ca\cos(\theta)]^{2/3}$$

L'équation adimensionnée du profil dans le ménisque avant s'écrit :

$$3(\bar{h}-\bar{h}_f)=-\frac{\partial^3\bar{h}}{\partial\bar{r}^3}\bar{h}^3$$

En introduisant ensuite les changements de variables $H=\bar{h}/\bar{h}_f$ et $\xi=\bar{r}/\bar{h}_f$, on retrouve la même équation adimensionnée que pour une bulle se déplaçant dans un capillaire axisymétrique (cf. éq. (A.2)) :

$$3\frac{[H-1]}{H^3}=-\frac{\partial^3 H}{\partial\xi^3}$$

La résolution de cette équation est présentée en Annexe A.

ANNEXE D

Détermination du champ des vitesses dans la région I : géométrie axisymétrique

Dans cette annexe, les champs des vitesses dans la région centrale I, comprenant le corps de la goutte (région I_i) et le film plat (région I_o) sont déterminés. La condition $R \gg r$ permet d'approcher l'écoulement dans le corps de la goutte par un écoulement de Poiseuille dans la direction x dans le référentiel de la paroi.

Dans le film plat, la petitesse de l'ordre de grandeur de l'épaisseur du film de lubrification par rapport aux autres longueurs du problème ($h_\infty \ll r \ll R$), permet de considérer l'écoulement dans cette région comme un écoulement de Couette unidirectionnel suivant l'axe x.

On attache le repère cylindrique $(O, \mathbf{e}_\rho, \mathbf{e}_\theta, \mathbf{e}_x)$ à la goutte et on étudie les écoulements dans le référentiel de la paroi (voir Fig. D.1).

En notant (u_i, p_i) et (u_o, p_o) la composante suivant x du champ des vitesses et le champ de pression dans chaque région I_i et I_o, on résout les équations de Stokes suivant x dans le corps de la goutte et le film de lubrification :

$$\frac{1}{\rho}\left[\frac{\partial}{\partial\rho}\left(\rho\frac{\partial u_i}{\partial\rho}\right)\right] = \frac{1}{\lambda\eta_o}\frac{\partial p_i}{\partial x} \quad \text{et} \quad \frac{\partial^2 u_o}{\partial\rho^2} = 0$$

avec les conditions

$$\frac{\partial u_i}{\partial\rho}(\rho = 0) = 0$$

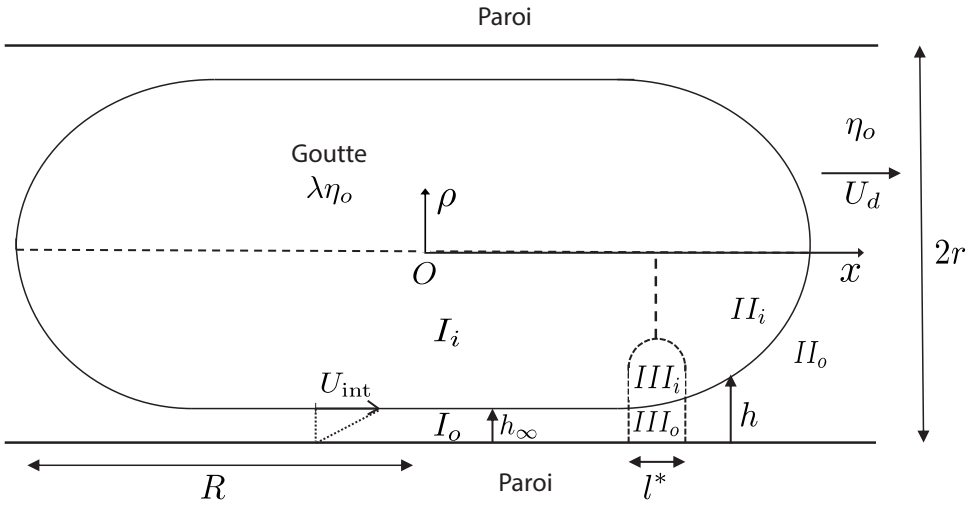

FIGURE D.1: Coupe dans le plan $(O\rho x)$ d'une goutte en géométrie axisymétrique.

$$\frac{1}{\pi(r-h_\infty)^2}\int_0^{(r-h_\infty)}\int_0^{2\pi} u_i\,\rho\,\mathrm{d}\rho\,\mathrm{d}\theta = U_d$$

$$\lambda\eta_o\frac{\partial u_i}{\partial\rho}(\rho = r-h_\infty) = \eta_o\frac{\partial u_o}{\partial\rho}(\rho = r-h_\infty)$$

$$u_i(\rho = r-h_\infty) = u_o(\rho = r-h_\infty) = U_{\text{int}}$$

où U_{int} est la vitesse interfaciale dans la région I dans le référentiel de la paroi.

Les champs des vitesses dans les régions I_i et I_o s'écrivent alors à l'ordre dominant en h_∞/r :

$$u_i = 2\,(U_d - U_{\text{int}})\left[1-\frac{\rho^2}{r^2}\right] + U_{\text{int}}$$

$$u_o = \frac{U_{\text{int}}}{h_\infty}(r-\rho)$$

où $U_{\text{int}} = \frac{4\lambda U_d}{4\lambda + r/h_\infty}$.

Dans le référentiel de la goutte la vitesse interfaciale dans la région I s'écrit donc :

$$U_I\mathbf{e}_x = (U_{\text{int}} - U_d)\mathbf{e}_x = -\frac{U_d}{1+4\lambda h_\infty/r}\mathbf{e}_x$$

On retrouve bien le résultat (2.4).

ANNEXE E

Taux de dissipation visqueuse dans un écoulement

L'expression générale du taux de dissipation visqueuse au sein de l'écoulement d'un fluide de viscosité μ dans un volume V et de champ des vitesses $\mathbf{v} = \sum_{i=1}^{3} v_i \, \mathbf{e}_i$, s'écrit [52] :

$$D = \frac{\mu}{2} \iiint_V \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right)^2 \mathrm{d}V$$

ANNEXE F

Détermination du champ des vitesses dans la région I : géométrie de Hele-Shaw

Dans cette annexe, les champs des vitesses dans la région centrale I, comprenant l'intérieur de la goutte (région I_i) et le film plat (région I_o) sont déterminés. La condition $R \gg H_o$ permet d'approcher le champ des vitesses dans le corps de la goutte par un champ contenu dans le plan (Oxy) dont la variation est lente suivant x et y par rapport à sa variation selon z (cf. approximation de Hele-Shaw). D'autre part, il a été montré expérimentalement [25] que pour $R \gg H_o$, l'écoulement au sein de la goutte est quasiment unidirectionnel (selon l'axe x) avec une vitesse moyennée sur l'épaisseur de la cellule quasiment uniforme. On peut donc considérer l'écoulement à l'intérieur de la goutte comme un écoulement de Poiseuille dans la direction x, dont la moyenne sur l'épaisseur de la cellule est uniforme et égale à U_d. Dans le film plat, la petitesse de l'ordre de grandeur de l'épaisseur du film de lubrification par rapport aux autres longueurs du problème ($h_\infty \ll H_o \ll R$), permet de considérer l'écoulement dans cette région comme un écoulement de Couette unidirectionnel suivant l'axe x.

On attache le repère $(O, \mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z)$ à la goutte et on étudie les écoulements dans le référentiel de la paroi.

En notant (u_i, p_i) et (u_o, p_o) la composante suivant x du champ des vitesses et le champ de pression dans chaque région I_i et I_o, on résout les équations de Stokes suivant x dans le corps de la goutte et le film de lubrification :

$$\frac{\partial^2 u_i}{\partial z^2} = \frac{1}{\lambda \eta_o} \frac{\partial p_i}{\partial x} \quad \text{et} \quad \frac{\partial^2 u_o}{\partial z^2} = 0$$

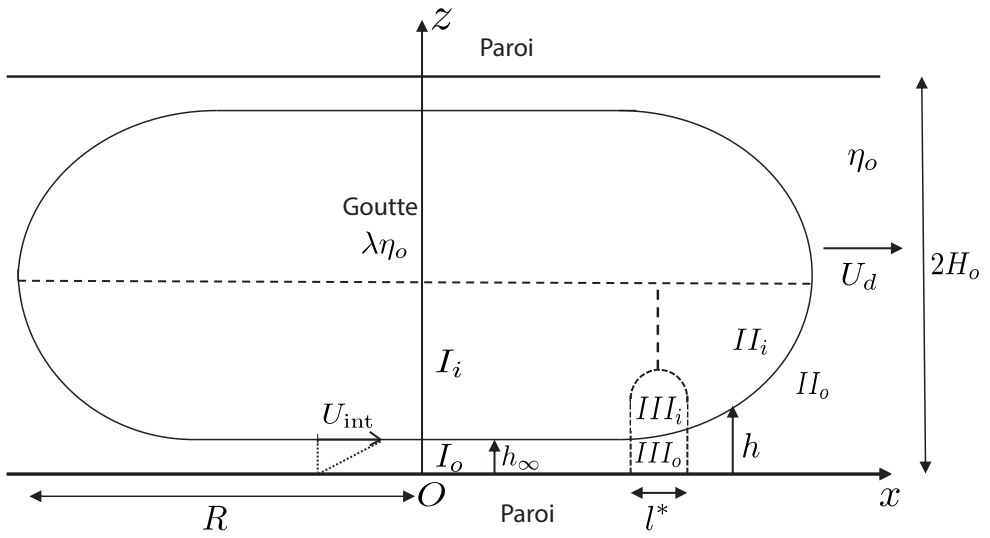

FIGURE F.1: Coupe dans le plan (Oxz) d'une goutte pancake dans une cellule de Hele-Shaw

avec les conditions

$$\frac{\partial u_i}{\partial z}(z = H_o) = 0$$
$$\frac{1}{2(H_o - h_\infty)} \int_{h_\infty}^{(2H_o - h_\infty)} u_i \, \mathrm{d}z = U_d$$
$$\lambda\eta_o \frac{\partial u_i}{\partial z}(z = h_\infty) = \eta_o \frac{\partial u_o}{\partial z}(z = h_\infty)$$
$$u_i(z = h_\infty) = u_o(z = h_\infty) = U_{\text{int}}$$

où U_{int} est la vitesse interfaciale dans la région I dans le référentiel de la paroi.

Les champs des vitesses dans les régions I_i et I_o s'écrivent alors à l'ordre dominant en h_∞/h_o :

$$u_i = \frac{3}{2}\left(U_d - U_{int}\right)\left[1 - \left(\frac{z - H_o}{H_o}\right)^2\right] + U_{\text{int}}$$

$$u_o = \frac{U_{\text{int}}}{h_\infty} z$$

où $U_{\text{int}}(y) = \frac{3\lambda U_d}{3\lambda + H_o/h_\infty(y)}$.

Dans le référentiel de la goutte la vitesse interfaciale dans la région I s'écrit donc :

$$U_I \mathbf{e}_x = (U_{int} - U_d)\mathbf{e}_x = -\frac{U_d}{1 + 3\lambda h_\infty/H_o}\mathbf{e}_x$$

On retrouve bien le résultat (2.14) en projettant $U_I \mathbf{e}_x$ suivant $\mathbf{e}_\rho$ et $\mathbf{e}_\theta$

ANNEXE G

Détermination de l'épaisseur du film au niveau de l'oscillation arrière

La courbe théorique de l'intensité en niveau de gris en fonction de l'épaisseur du film est présentée en Fig. G.1.g : elle montre qu'un niveau de gris donné peut correspondre à plusieurs épaisseurs différentes. Cette annexe détaille la méthode de sélection de l'épaisseur pour un niveau de gris donné. En premier lieu, nous déterminons l'épaisseur du film au centre de la goutte. A cet endroit, la branche d'interférence de la courbe intensité-épaisseur peut être identifiée en suivant la variation de l'intensité avec le nombre capillaire Ca, puisque pour une goutte lente, le centre du film appartient à la branche (1) de la courbe intensité-épaisseur (voir Fig. G.1.a). Ensuite, entre les images a et c (Fig. G.1), l'intensité décroît le long de la branche (1) à mesure que l'épaisseur du film croît. Une fois que le premier minimum est atteint, l'intensité croît alors des images d à f le long de la branche d'interférence (2), ce qui correspond à un épaississement du film. Puis, à mesure que l'on se déplace en direction du ménisque avant (*i.e.* le long de l'axe x pour $y = 0$), l'intensité décroît en Fig. G.1.a. Cette variation correspond à une décroissance de l'intensité en direction du côté droit de la branche (1), caractérisant une augmentation de l'épaisseur du film. Une analyse similaire est effectuée pour chaque image. Par ailleurs, le long de l'axe y positif (en $x = 0$), l'accroissement de l'intensité correspond à un déplacement en direction du côté gauche de la branche (1) et donc à une décroissance de l'épaisseur du film.

Contrairement à la variation monotone de l'intensité dans le ménisque avant, un motif en forme de croissant est présent à l'arrière de la goutte (voir Fig. G.1.a), où l'intensité lumineuse varie sur toute la gamme de niveaux de gris. Ceci rend l'identification de l'épaisseur, *a priori* ambiguë. De plus, la topographie présente un extremum local d'intensité (*i.e.* le centre du

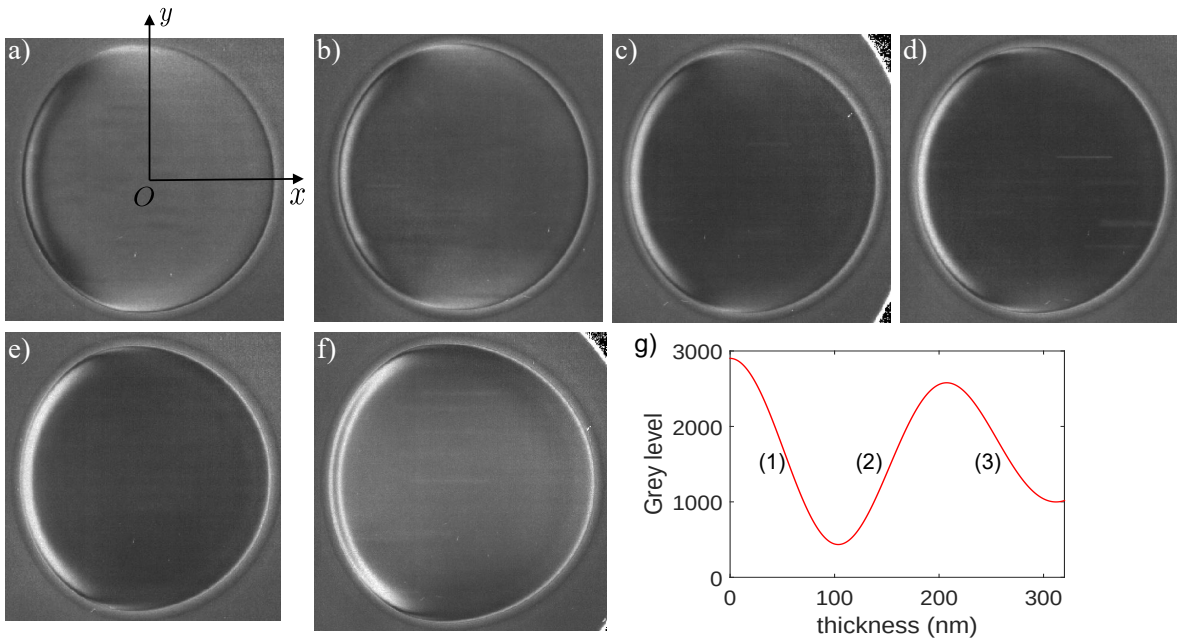

FIGURE G.1: Images de gouttes pour **(a)** $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$ (diamètre 170 μm), **(b)** $Ca = 9.5 \times 10^{-4}$ (diamètre 173 μm), **(c)** $Ca = 1.3 \times 10^{-3}$ (diamètre 180 μm), **(d)** $Ca = 1.5 \times 10^{-3}$ (diamètre 176 μm), **(e)** $Ca = 1.8 \times 10^{-3}$ (diamètre 174 μm), **(f)** $Ca = 2 \times 10^{-3}$ (diamètre 195 μm). **(g)** Courbe théorique de l'intensité en niveau de gris en fonction de l'épaisseur du film, déduite du modèle optique détaillé en [23].

croissant), ce qui empêche d'utiliser la continuité des lignes de niveau pour lever l'ambiguïté. En Fig. G.1.a par exemple, le croissant lumineux isolé, entouré de pixels sombres, peut être un creux s'il appartient à la branche (1) ou une bosse s'il appartient à la branche (2). Afin de lever l'incertitude, les deux profils d'épaisseurs possibles sont tracés pour différents nombres capillaires en Fig. G.2. Etant donné que l'épaisseur du film doit varier de façon monotone avec le nombre capillaire, le profil physiquement acceptable peut être détecté à partir de la Fig. G.2. Au sein des profils présentés en Fig. G.2, seul les profils rouges (étoiles rouges) correspondent à une évolution physique de l'épaisseur du film et les profils noirs (points noirs), présentant une évolution non monotone de l'épaisseur du film avec Ca, peuvent être écartés. Le profil non retenu présente un creux profond (points noirs) et est plus proche de la prédiction de Bretherton (trait plein noir) que le profil que nous avons sélectionné (étoiles rouges). Cependant, la solution de Bretherton ne permet pas de retrouver l'ordre de grandeur correcte pour la distance caractéristique radiale de variation du profil, et ne peut donc, dans aucun cas, reproduire l'oscillation à l'arrière de la goutte.

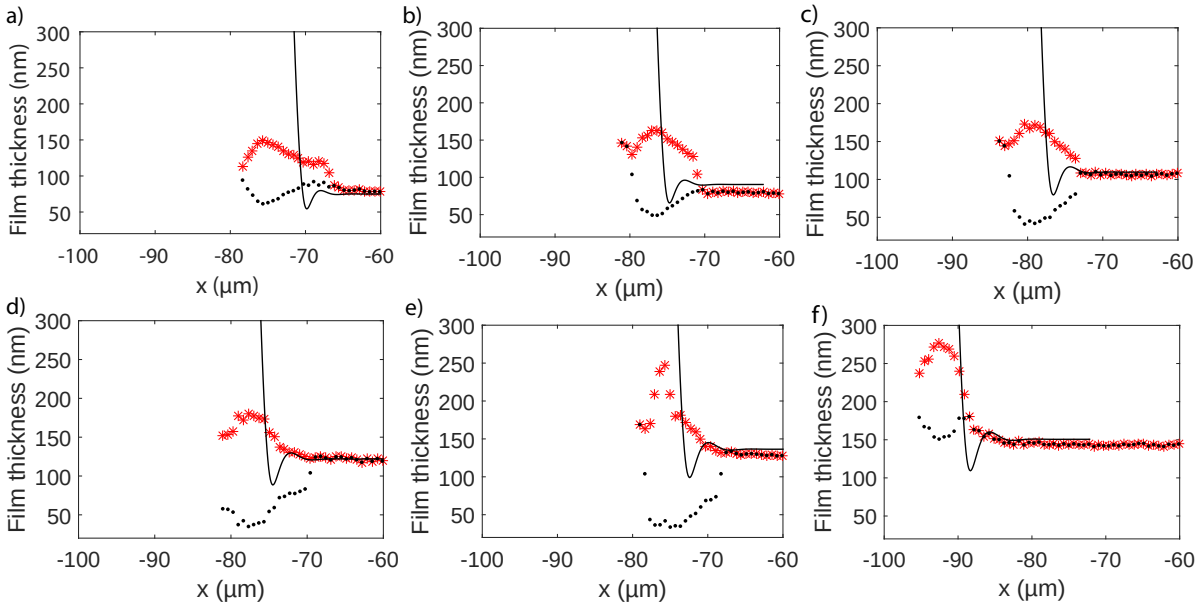

FIGURE G.2: Deux profils possibles (points noirs : creux, étoile rouge : bosse) à l'arrière de la goutte pour **(a)** $Ca = 7.2 \times 10^{-4}$, **(b)** $Ca = 9.5 \times 10^{-4}$; **(c)** $Ca = 1.3 \times 10^{-3}$; **(d)** $Ca = 1.5 \times 10^{-3}$; **(e)** $Ca = 1.8 \times 10^{-3}$; **(f)** $Ca = 2 \times 10^{-3}$

Bibliographie

[1] S. R. Hodges, O. E. Jensen, and J. M. Rallison. The motion of a viscous drop trhough a cylindrical tube. *J. Fluid Mech.*, 501 :279, 2004.

[2] F. P. Bretherton. The motion of long bubbles in tubes. *J. Fluid Mech.*, 10 :166–188, 1961.

[3] D Burgess and MR Foster. Analysis of the boundary conditions for a hele–shaw bubble. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, 2(7) :1105–1117, 1990.

[4] Geoffrey Taylor and PG Saffman. A note on the motion of bubbles in a hele-shaw cell and porous medium. *The Quarterly Journal of Mechanics and Applied Mathematics*, 12(3) :265–279, 1959.

[5] Saleh Tanveer. The effect of surface tension on the shape of a hele–shaw cell bubble. *The Physics of fluids*, 29(11) :3537–3548, 1986.

[6] Rémi Dangla. *2D droplet microfluidics driven by confinement gradients*. PhD thesis, Ecole Polytechnique X, 2012.

[7] A. R. Kopf-Sill and G. M. Homsy. Bubble motion in a hele shaw cell. *Phys. Fluids*, 31 :18–26, 1988.

[8] C.-W. Park, S. R. K. Maruvada, and D.-Y. Yoon. The influence of surfactant on the bubble motion in hele-shaw cells. *Phys. Fluids*, 6 :3267–3275, 1994.

[9] SRK Maruvada and C-W Park. Retarded motion of bubbles in hele–shaw cells. *Physics of fluids*, 8(12) :3229–3233, 1996.

[10] P-G. de Gennes, F. Brochard-Wyart, and D. Quéré. *Gouttes, bulles, perles et ondes*. BELIN, Paris, 2002.

[11] Walter Wick. *A drop of water : A book of science and wonder*. Scholastic New York, 1997.

[12] Pierre Simon de Laplace. *Traité de mécanique céleste : Théorie de l'action capillaire. Suppl.* Courcier, 1806.

[13] Lailai Zhu and François Gallaire. A pancake droplet translating in a hele-shaw cell : lubrication film and flow field. *Journal of Fluid Mechanics*, 798 :955–969, 2016.

[14] J. Ratulowski and H.-C. Chang. Marangoni effects of trace of impurities on the motion of long gas bubbles in capillaries. *J. Fluid Mech.*, 210 :303–328, 1990.

[15] K. J. Stebe and D. Barthès-Biesel. Marangoni effects of adsorption/desorption controlled surfactants on the leading end of an infinitely long bubble in a capillary. *J. Fluid Mech.*, 286 :25–48, 1995.

[16] Amy Q. Shen, Blake Gleason, Gareth H. McKinley, and Howard A. Stone. Fiber coating with surfactant solutions. *Phys. Fluids*, 14 :4055, 2002.

[17] I. Cantat. Liquid meniscus friction on a wet wall : bubbles, lamellae and foams. *Phys. Fluids*, 25 :031303, 2013.

[18] Axel Huerre. *Migration de gouttes en microfluidique : caractérisation et applications.* PhD thesis, Paris 6, 2015.

[19] N. D. Denkov, S. Tcholakova, K. Golemanov, V. Subramanian, and A. Lips. Foam-wall friction : Effect of air volume fraction for tangentially immobile bubble surface. *Colloids Surf. A*, 282 :329–347, 2006.

[20] Gary F. Teletzke, H. Ted Davis, and L.E. Scriven. Wetting hydrodynamics. *Rev. Phys. Appl.*, 23(6) :989–1007, 1988.

[21] E. J. Soares and R. L. Thompson. Flow regimes for the immiscible liquidâliquid displacement in capillary tubes with complete wetting of the displaced liquid. *Journal of Fluid Mechanics*, 641 :63–84, 2009.

[22] Robert H Davis, Jeffrey A Schonberg, and John M Rallison. The lubrication force between two viscous drops. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, 1(1) :77–81, 1989.

[23] A Huerre, M-C Jullien, O Theodoly, and M-P Valignat. Absolute 3d reconstruction of thin films topography in microfluidic channels by interference reflection microscopy. *Lab on a Chip*, 16(5) :911–916, 2016.

[24] S. S. Park and D. J. Durian. Viscous and elastic fingering instabilities in foam. *Phys. Rev. Lett.*, 72 :3347, 1994.

[25] Sungyon Lee, François Gallaire, and Charles N Baroud. Interface-induced recirculation within a stationary microfluidic drop. *Soft Matter*, 8(41) :10750–10758, 2012.

[26] C.-W. Park and G. M. Homsy. Two-phase displacement in hele shaw cells : theory. *J. Fluid Mech.*, 139 :291–308, 1984.

[27] Younan Xia and George M Whitesides. Soft lithography. *Annual review of materials science*, 28(1) :153–184, 1998.

[28] B Shen, M Leman, M Reyssat, and P Tabeling. Dynamics of a small number of droplets in microfluidic hele–shaw cells. *Experiments in Fluids*, 55(5) :1728, 2014.

[29] Nicolas Taccoen. *On the long-term stability of foams : strength of an armored bubble and emergence of global disorder*. PhD thesis, Ecole Doctorale de l'Ecole Polytechnique, 2015.

[30] Milton J Rosen and Joy T Kunjappu. *Surfactants and interfacial phenomena*. John Wiley & Sons, 2012.

[31] J. Delacotte, L. Montel, F. Restagno, B. Scheid, B. Dollet, H. A. Stone, D. Langevin, and E. Rio. Plate coating : Influence of concentrated surfactants on the film thickness. *Langmuir*, 28(8) :3821–3830, 2012.

[32] ASG Curtis. The mechanism of adhesion of cells to glass. *The Journal of cell biology*, 20(2) :199–215, 1964.

[33] JS Ploem. Reflection-contrast microscopy as a tool for investigation of the attachment of living cells to a glass surface. In *Mononuclear phagocytes in immunity, infection and pathology*, pages 405–421. Blackwell, Oxford, 1975.

[34] Joachim Rädler and Erich Sackmann. Imaging optical thicknesses and separation distances of phospholipid vesicles at solid surfaces. *Journal de Physique II*, 3(5) :727–748, 1993.

[35] Axel Huerre, Olivier Theodoly, Alexander M Leshansky, Marie-Pierre Valignat, Isabelle Cantat, and Marie-Caroline Jullien. Droplets in microchannels : dynamical properties of the lubrication film. *Physical review letters*, 115(6) :064501, 2015.

[36] GHJN Findenegg. Israelachvili : Intermolecular and surface forces (with applications to colloidal and biological systems). *Academic Press*, 296 :1241–1242, 1985.

[37] D. Quéré and A. de Ryck. Le mouillage dynamique des fibres. *Ann. Phys.*, 23 :1–151, 1998.

[38] B. Scheid, J. Delacotte, B. Dollet, E. Rio, F. Restagno, E. A. van Nierop, I. Cantat, D. Langevin, and H. A. Stone. The role of surface force rheology in liquid film formation. *EPL*, 90 :24002, 2010.

[39] Lorène Champougny, Benoit Scheid, Frédéric Restagno, Jan Vermant, and Emmanuelle Rio. Surfactant-induced rigidity of interfaces : a unified approach to free and dip-coated films. *Soft Matter*, 11(14) :2758–2770, 2015.

[40] I. Cantat and B. Dollet. Liquid films with high surface modulus moving in tubes : dynamic wetting film and jumpy motion. *Soft Matt.*, 8 :7790, 2012.

[41] Chang-Won Park. Influence of soluble surfactants on the motion of a finite bubble in a capillary tube. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, 4(11) :2335–2347, 1992.

[42] RJ Williams, JN Phillips, and KJ Mysels. The critical micelle concentration of sodium lauryl sulphate at 25 c. *Transactions of the Faraday Society*, 51 :728–737, 1955.

[43] V. Bergeron and C. J. Radke. Equilibrium measurements of oscillatory disjoining pressures in aqueous foam films. *Langmuir*, 8 :3020, 1992.

[44] V. Bergeron. Forces and structure in thin liquid soap films. *J. Phys. : Condens. Matter*, 11 :R215, 1999.

[45] AD Nikolov and DT Wasan. Ordered micelle structuring in thin films formed from anionic surfactant solutions : I. experimental. *Journal of colloid and interface science*, 133(1) :1–12, 1989.

[46] Norman A Mazer, George B Benedek, and Martin C Carey. An investigation of the micellar phase of sodium dodecyl sulfate in aqueous sodium chloride solutions using quasielastic light scattering spectroscopy. *The Journal of Physical Chemistry*, 80(10) :1075–1085, 1976.

[47] R. Krechetnikov and G. M. Homsy. Experimental study of substrate roughness and surfactant effects on the landau-levich law. *Phys. Fluids*, 17 :102108, 2005.

[48] A Bonfillon, F Sicoli, and D Langevin. Dynamic surface tension of ionic surfactant solutions. *Journal of colloid and interface science*, 168(2) :497–504, 1994.

[49] G. M. Ginley and C. J. Radke. *Influence of Soluble Surfactants on the Flow of Long Bubbles Through a Cylindrical Capillary*, chapter 27, pages 480–501.

[50] O. Ou Ramdane and D. Quéré. Thickening factor in marangoni coating. *Langmuir*, 13(11) :2911–2916, 1997.

[51] Henry Selby Hele-Shaw. The flow of water. *Nature*, 58(1489) :33–36, 1898.

[52] E. Guyon, J.-P. Hulin, , and L. Petit. *Hydrodynamique physique*. EDP science, Paris, 2001.

Résumé

La microfluidique à goutte a connu un essor remarquable ces dix dernières années. Pourtant, la dynamique de ces objets reste largement incomprise. En effet, une question aussi fondamentale que de prédire la vitesse d'une goutte poussée par une phase porteuse à vitesse imposée, est restée jusqu'à ce jour, sans réponse. Comprendre la dynamique d'une goutte suppose de caractériser les dissipations visqueuses (friction) au sein de la goutte et dans le film de lubrification. Ces dissipations visqueuses sont liées à la forme et aux propriétés physico-chimiques de l'interface de la goutte. Ce manuscrit présente une caractérisation de la dynamique d'une goutte 2D en cellule de Hele-Shaw, exploitant la double mesure du film de lubrification par microscopie interférentielle et de la vitesse de la goutte. Dans un premier temps, nous étudions expérimentalement la forme adoptée par l'interface en fonction de la viscosité de la goutte et de la concentration en tensioactifs. La comparaison des topographies expérimentales avec des modèles théoriques existant et développés dans ce manuscrit, révèle que l'utilisation d'une approche purement hydrodynamique (sans effet Marangoni) pour déterminer la topographie théorique n'est en mesure de reproduire la topographie expérimentale que lorsque le système ne présente pas de tensioactif ou bien lorsque la viscosité de la goutte est suffisamment importante pour prendre le pas sur d'éventuels effets Marangoni. Dans les autres cas, la forme de l'interface évolue en fonction de la contrainte de Marangoni. Dans un deuxième temps, l'établissement d'un modèle théorique pour la vitesse de la goutte, basé sur la modélisation des topographies de films expérimentales mesurées, permet de retrouver quantitativement, et sans paramètre d'ajustement, les vitesses de gouttes mesurées expérimentalement.

Mots Clés

goutte, cellule de Hele-Shaw, film de lubrification, interface, microfluidique

Abstract

Droplet microfluidics is a growing field of research. However, the dynamics of these objects remain misunderstood. Indeed, a question as fundamental as predicting the droplet velocity while pushed by an external fluid at a given velocity is still not answered. Understanding the dynamics of a droplet requires to characterize the viscous dissipation mechanisms (friction) within the droplet and in the lubrication film. This dissipation is related to the shape and to the physicochemical properties of the interface separating the inner phase of the droplet from the outer phase. This thesis presents a characterization of the dynamics of 2D droplets in a Hele-Shaw cell, by taking advantage of the double measurement of the lubrication film by interference microscopy and of the droplet velocity. Firstly, we study experimentally the influence of the droplet viscosity and surfactant concentration on the shape of the interface. The comparison between the topographies measured experimentally with the theoretical models already existing and the new one developed in this thesis, reveals that the use of a purely hydrodynamical approach in order to derive the theoretical topography only allows to recover the experimental topography if the system is surfactant free or if the droplet viscosity is high enough to overcome the Marangoni effect at the interface. In the other cases, the shape of the interface depends on the Marangoni stress. In a second part, the derivation of a theoretical model for the droplet velocity, based on the modeling of the lubrication film topographies measured experimentally, allows to recover quantitatively, and without any fitting parameter, the experimental data on droplet velocities.

Keywords

droplet, Hele-Shaw cell, lubrication film, interface, microfluidic