



**HAL**  
open science

## Création, stabilité et rupture d'interfaces fluides

Louis Salkin

► **To cite this version:**

| Louis Salkin. Création, stabilité et rupture d'interfaces fluides. Dynamique des Fluides [physics.flu-  
dyn]. Université de Rennes, 2014. Français. NNT : 2014REN1S036 . tel-01070794

**HAL Id: tel-01070794**

**<https://theses.hal.science/tel-01070794>**

Submitted on 2 Oct 2014

**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 / UNIVERSITÉ DE RENNES 1  
*sous le sceau de l'Université Européenne de Bretagne*

pour le grade de  
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE RENNES 1

*Mention : Physique*

École doctorale Sciences de la Matière

présentée par

**Louis SALKIN**

préparée à l'unité de recherche UMR 6251  
Institut de Physique de Rennes (IPR)  
UFR Sciences et Propriétés de la Matière (SPM)

---

Création, stabilité  
et rupture  
d'interfaces fluides

**Thèse soutenue à Rennes  
le 10 juillet 2014**

devant le jury composé de :

**Hamid KELLAY**

Professeur - Université Bordeaux 1 / *rapporteur*

**Laurence RAMOS**

Directeur de recherche CNRS – Université Montpel-  
lier 2 / *rapporteur*

**José BICO**

Maître de conférences - ESPCI / *examineur*

**Anne RENAULT**

Directeur de recherche CNRS – Université Rennes 1  
/ *examineur*

**Laurent COURBIN**

Chargé de recherche CNRS – Université Rennes 1 /  
*codirecteur de thèse*

**Pascal PANIZZA**

Professeur - Université Rennes 1 / *directeur de thèse*

# Résumé

Nous présentons plusieurs expériences d'hydrodynamique interfaciale illustrant des procédés de création, stabilité et rupture d'interfaces fluides, liquide/liquide ou liquide/gaz. Dans un premier temps, nous étudions le processus de fragmentation d'objets déformables, gouttes et bulles, par un obstacle rectangulaire ou une boucle asymétrique placés dans un canal microfluidique. La deuxième partie de ce travail se consacre à des expériences menées avec des bulles et films liquides minces formés à l'aide d'eau savonneuse ou de liquides très visqueux. Après avoir revisité quelques surfaces minimales adoptées par un film de savon à l'équilibre, nous étudions divers mécanismes de formation de bulles et de bulles interfaciales. Dans ces deux parties, nos études sont menées en faisant varier de façon systématique les paramètres hydrodynamiques, physicochimiques et géométriques contrôlant chaque expérience. Nous interprétons les résultats obtenus en microfluidique à l'aide d'arguments simples basés notamment sur l'analogie électro-hydraulique aux bas nombres de Reynolds, tandis que l'analyse dimensionnelle et des lois d'échelle permettent de décrire la plupart des comportements expérimentaux des bulles et films liquides minces.

# Abstract

We report hydrodynamic experiments illustrating the creation, stability and rupture of either liquid/liquid or liquid/gas interfaces. First, we investigate the fragmentation of deformable objects, such as drops and bubbles, against a rectangular obstacle or at the entry node of an asymmetric loop placed in a microfluidic channel. In the second part of this work, we report experiments conducted with bubbles and thin-liquid films either made with soapy water or highly viscous fluids. After having described a few minimal surfaces sought by a soap film at equilibrium, we study a variety of mechanisms that yield the formation of bubbles and interfacial bubbles. In both parts, our investigations are conducted by systematically varying the parameters (hydrodynamic, physicochemical and geometric) controlling each experiment. We interpret microfluidic results with simple physical arguments based on the electro-hydraulic analogy at low Reynolds numbers. Experimental findings on bubbles are rationalized mostly using dimensional analysis and scaling laws.

# Remerciements

Dans une chanson entendue un jour par hasard sur France Culture, Simon Berjeaut fredonnait :

*Et ne vous en déplaie et tant pis si j'ai tort  
Mais il me semble plus aisé  
De poursuivre une thèse plutôt qu'un Minotaure  
Tout le monde ne peut pas être Thésée.*

Plus aisé, dur de le contredire! Mais une thèse, telle une quête du savoir par la recherche, « marathon de mille jours » comme Laurent (Courbin) aime à la définir, n'a-t-elle vraiment rien de commun avec les épopées mythologiques d'Ulysse et consorts?! Bien sûr, qui veut voyager loin ménage sa monture : il faut s'armer d'abnégation, de patience et d'imagination, d'audace et de passion, mais aussi être bien accompagné. Qu'il me soit donc permis ici de remercier toutes les personnes sans qui cette thèse n'aurait pu s'effectuer dans de si belles conditions.

Merci à Anne Renault et Jean-Pierre Landesman, ayant successivement dirigé l'Institut de Physique de Rennes au cours de ma thèse. Merci de m'avoir ouvert les portes du laboratoire et donné l'opportunité d'y effectuer cette thèse.

Merci à mon établissement d'origine, l'ENS Cachan pour m'avoir accordé une allocation spécifique de recherche pour normalien dans le cadre de cette thèse.

Merci à Hamid Kellay et Laurence Ramos d'avoir accepté de rapporter mon travail de thèse. Mes remerciements vont également à José Bico pour avoir accepté de prendre part à ce jury, ainsi qu'à Anne Renault pour l'avoir présidé lors de ma soutenance. Merci à tous les membres du jury de ne pas avoir trop fait état des quelques longueurs ou digressions qui jalonnent ce manuscrit!

Merci Pascal (Panizza), merci Laurent, c'était un véritable plaisir de travailler avec vous. J'ai beaucoup appris à vos côtés dans de nombreux domaines, nul doute que les compétences acquises et développées pendant cette thèse me seront utiles dans le futur. J'ai également eu l'impression d'acquiescer sous votre égide un certain recul sur la physique, une façon de mieux me l'approprier en quelque sorte. Sur le plan humain, comment ne pas évoquer la sympathique ambiance que vous avez instaurée au quotidien dans notre petite équipe, rejointe par Alex en cours de route? Binôme aux multiples facettes et aux qualités complémentaires, vous réussissez à composer ce savant mélange de bonne humeur et d'exigence, de « main verte » et d'intuition, toujours au service du travail bien fait en expérience comme en modélisation.

Merci également de m'avoir laissé m'épanouir dans d'autres projets en parallèle de la thèse : je pense en particulier à la Fête de la Science, à la rédaction de corrigés de concours, à la réalisation d'un court-métrage de vulgarisation scientifique et à la préparation de lycéens aux Olympiades de Physique.

Merci aux établissements m'ayant offert le privilège d'enseigner pendant ces quatre ans : l'Université de Rennes 1, pour laquelle Marc Brunel, Philippe Nouet, Marina Servol et Véronique Vié m'ont proposé des missions d'enseignement ; l'École de Chimie de Rennes où j'ai eu l'occasion d'être encadré par Chrystel Hérigault, Julien Géandrot et Jimmy Roussel ; les lycées Chateaubriand et Joliot Curie où j'ai eu l'opportunité de donner des khôlles et conférence dans les classes de Josiane Manasses, Marc Cavelier et Annie Le Calvez.

Merci à tous les membres de l'IPR, chercheurs et enseignants-chercheurs, techniciens, gestionnaires. Bien qu'il soit trop long de tous les citer, j'aimerais tout de même remercier Éric Gicquel pour son aide lors de la prise en main et de l'interfaçage du rail de translation, Arnaud Saint-Jalmes pour sa disponibilité lors des mesures effectuées en rhéométrie et tensiométrie, ainsi qu'Hervé Tabuteau pour ses coups de pouce et mesures au profilomètre en microfluidique. Je remercie également Patrick Richard pour m'avoir fait découvrir la recherche à l'IPR pendant mon stage de M1, ainsi que Jérôme Lambert pour m'avoir introduit auprès de la maison d'édition H&K.

Merci au Département Matière Molle et à son responsable Arnaud, c'était un plaisir d'en faire partie, dans le cadre formel - échanges scientifiques, collaboration avec Axelle Amon sur des travaux réalisés en microfluidique - mais aussi informel, à la faveur de l'excellente ambiance qui y règne depuis sa création.

Merci à tous les non-permanents que j'ai eu la chance de rencontrer et grâce à qui une véritable bande d'amis s'est formée au fil de l'eau, du Oan's au festival Sciences en Cour[t]s en passant par un France-Honduras, de nombreuses parties de tennis, une session karting, quelques apéros improvisés ou autres innombrables pauses-café et déjeuners. La liste exhaustive étant encore bien trop longue à énumérer ici, je tiens néanmoins à en citer quelques-uns : Marie, amie physicienne et violoncelliste de longue date grâce à qui, par une improbable rencontre sur un quai de RER B, j'ai pu nouer contact avec Pascal et Laurent ; Alex, mon épatant petit frère de thèse à qui je souhaite une très bonne dernière année avec Pascal et Laurent ; Martin, mon acolyte avec qui j'ai notamment eu l'honneur de coorganiser les séminaires non-permanents et partager quelques émotions musicales à nos heures perdues ; Seb, cher collègue magistérien et agrégé, avec qui j'ai partagé le goût de l'enseignement en corrigeant des leçons et montages en prépa agreg et en encadrant des étudiants en projet TIPE.

De façon plus large, merci à tous les amis rencontrés et côtoyés pendant ces quatre ans à Rennes. J'aimerais en particulier citer le chœur de chambre Vibrations, les personnes qui m'ont suivi dans l'aventure Sciences en Cour[t]s, ceux qui m'ont accompagné à Poznan dans le cadre du programme Erasmus SoftMat Control, organisé notamment par Ronan Lefort. Sur un tout autre registre, merci également à mes

convives et amis du dîner presque parfait ;).

Enfin, un merci tout particulier à mon épouse Sarah et nos deux enfants Hélène et Octave pour m'avoir supporté pendant ces quelques années. Merci également à ma famille et ma belle famille d'être venues m'écouter en ce jeudi 10 juillet 2014, j'étais véritablement heureux de vous faire découvrir les thématiques scientifiques qui me sont chères. Pour clore ces remerciements, j'ai une pensée émue pour Daniel. Parti trop tôt et trop vite, il aurait tant aimé venir à ma soutenance. Ce manuscrit lui est dédié.



# Table des matières

Résumé . . . . .	i
Abstract . . . . .	ii
Remerciements . . . . .	iii
Table des matières . . . . .	vii
<b>Avant-propos</b>	<b>1</b>
<b>I Fragmentation d'objets déformables et confinés</b>	<b>3</b>
<b>1 La microfluidique : fondements et contexte généraux</b>	<b>5</b>
1 Écoulements aux « petites » tailles . . . . .	5
1.1 Hypothèse de milieu continu, notion de particule fluide . . . . .	5
1.2 Équation de Navier-Stokes . . . . .	7
1.3 Capillarité, notion de tension de surface . . . . .	9
1.4 Nombres adimensionnés, ordres de grandeur . . . . .	14
1.5 Écoulements de Stokes . . . . .	16
2 Microfluidique digitale : génération contrôlée d'émulsions et/ou mousses monodisperses . . . . .	21
2.1 Géométrie en T . . . . .	21
2.2 Géométrie de pincement hydrodynamique . . . . .	24
3 Opérations élémentaires en microfluidique digitale . . . . .	28
3.1 Émulsification en microfluidique : synthèse <i>bottom-up</i> . . . . .	29
3.2 Deux exemples d'applications haut-débit . . . . .	31
4 Une opération élémentaire d'intérêt : la fragmentation . . . . .	34
4.1 État de l'art . . . . .	34
4.2 Questions soulevées . . . . .	40
<b>2 Matériel et méthodes</b>	<b>43</b>
1 Protocole de fabrication d'une puce microfluidique . . . . .	43
1.1 Conception du masque . . . . .	43
1.2 Gravure du <i>wafers</i> par photolithographie . . . . .	43
1.3 Moulage de la puce par lithographie douce . . . . .	45
2 Dispositif expérimental . . . . .	46
2.1 Schéma de principe du canal microfluidique . . . . .	46
2.2 Mise en œuvre et caractéristiques de l'écoulement . . . . .	48
2.3 Acquisition des données . . . . .	49
2.4 Traitement des données . . . . .	50

<b>3</b>	<b>Fragmentation d'objets déformables et isolés sur un micro-obstacle linéaire</b>	<b>51</b>
1	Paramètres expérimentaux . . . . .	52
1.1	Géométrie . . . . .	52
1.2	Physico-chimie . . . . .	53
1.3	Hydrodynamique . . . . .	53
2	Résultats expérimentaux . . . . .	56
2.1	Quatre régimes hydrodynamiques de fragmentation . . . . .	56
2.2	Diagrammes comportementaux : influence du contraste de viscosité . . . . .	57
3	Interprétation . . . . .	58
3.1	Arguments physiques, mise en équation . . . . .	58
3.2	Résolution . . . . .	62
4	Comparaison avec l'expérience . . . . .	70
4.1	Diagrammes comportementaux . . . . .	70
4.2	Nombre capillaire minimal de fragmentation . . . . .	73
4.3	Cas $\Delta\eta > 0$ : taille de <i>slug</i> optimale . . . . .	74
4.4	Fractions volumiques . . . . .	74
5	Conclusion et perspectives . . . . .	79
<b>4</b>	<b>Fragmentation d'objets déformables sur des boucles et obstacles « longs »</b>	<b>81</b>
1	Expériences . . . . .	82
1.1	Géométries exploitées . . . . .	82
1.2	Fractions volumiques des <i>slugs</i> fils : comparaison des résultats entre obstacle court et long . . . . .	84
1.3	Évolution des fractions volumiques avec l'asymétrie du dispositif . . . . .	86
2	Un modèle de type « champ moyen » . . . . .	87
3	Comparaison avec l'expérience . . . . .	91
3.1	Fractions volumiques des <i>slugs</i> créés . . . . .	91
3.2	Nombres de <i>slugs</i> générés . . . . .	92
4	Conditions de validité de l'approche « champ moyen » . . . . .	92
4.1	Cas $\Delta\eta \geq 0$ . . . . .	94
4.2	Cas $\Delta\eta < 0$ . . . . .	95
5	Conclusion . . . . .	95
<b>5</b>	<b>Travaux collaboratifs en cours ou publiés : émergence de dynamiques complexes en microfluidique</b>	<b>97</b>
1	Dynamiques de fragmentation complexes induites par des effets coopératifs . . . . .	97
2	Dynamiques de répartition dans des réseaux complexes . . . . .	98
<b>II</b>	<b>Films liquides et bulles de savon</b>	<b>103</b>
	<b>Préambule</b>	<b>105</b>

<b>6</b>	<b>Description de quelques surfaces minimales : influence des conditions aux limites et de symétrie</b>	<b>111</b>
1	Introduction . . . . .	112
2	Dispositif expérimental . . . . .	115
2.1	Matériel utilisé . . . . .	115
2.2	Acquisition des données . . . . .	115
2.3	Traitement des données . . . . .	115
3	La caténoïde . . . . .	115
3.1	La caténoïde symétrique . . . . .	116
3.2	La caténoïde asymétrique . . . . .	124
3.3	La demi-caténoïde symétrique . . . . .	130
4	La diabloïde . . . . .	139
4.1	La diabloïde symétrique . . . . .	139
4.2	La diabloïde asymétrique . . . . .	145
4.3	La diabloïde rotatoire . . . . .	157
5	Analogies de comportement au voisinage du seuil d'existence . . . . .	160
6	Conclusion et perspectives . . . . .	162
<b>7</b>	<b>Étude dynamique d'une demi-caténoïde symétrique en montée</b>	<b>165</b>
1	Montage expérimental . . . . .	166
2	Effondrement quasi-statique : temps de pincement . . . . .	167
2.1	Cas inviscide . . . . .	168
2.2	Cas visqueux . . . . .	171
3	Formation d'une bulle interfaciale à la surface du bain . . . . .	175
3.1	Régime quasi-statique . . . . .	175
3.2	Régime dynamique . . . . .	177
4	Formation d'un film plan sur le cadre . . . . .	185
4.1	Oscillations du film aux temps courts . . . . .	185
4.2	Amincissement du film aux temps longs . . . . .	197
5	Conclusion . . . . .	204
<b>8</b>	<b>Formation d'une bulle interfaciale par immersion d'un film plan dans un bain liquide</b>	<b>205</b>
1	Analyse dimensionnelle préliminaire . . . . .	206
2	Mécanisme inertio-capillaire . . . . .	207
3	Mécanisme visco-capillaire . . . . .	211
4	Transition entre les deux mécanismes . . . . .	214
5	Existence d'une vitesse de coupure . . . . .	215
6	Effets d'épaisseur finie du cadre . . . . .	216
7	Conclusion . . . . .	217
<b>9</b>	<b>L'instabilité du souffleur de bulles</b>	<b>219</b>
1	Introduction . . . . .	220
2	Dispositif expérimental . . . . .	222
2.1	Montage préliminaire : films sur cadres circulaires . . . . .	222
2.2	Montage amélioré : film géant auto-entretenu . . . . .	222
2.3	Caractérisation du film de savon . . . . .	224
3	Comportements observés . . . . .	225

4	Seuil de formation d'un train de bulles : un modèle simple . . . . .	227
4.1	Débit gazeux critique . . . . .	227
4.2	Rayon du cylindre de savon . . . . .	230
4.3	Dynamique de gonflement du film . . . . .	231
4.4	Taille des bulles, fréquence de production . . . . .	233
4.5	Une instabilité « de type Rayleigh-Plateau » . . . . .	237
5	Prise en compte de la dissipation . . . . .	240
6	Prise en compte du confinement . . . . .	246
7	Régime confiné et dissipatif . . . . .	247
8	Perspectives . . . . .	251
<b>10</b>	<b>Dynamique d'étalement d'une bulle sur une surface</b>	<b>255</b>
1	Analyse préliminaire . . . . .	256
2	Interprétation . . . . .	258
2.1	Calcul de la contribution interfaciale $dE_{\Sigma}$ . . . . .	258
2.2	Calcul de la contribution cinétique $dE_c$ . . . . .	260
2.3	1 <sup>ère</sup> dynamique : compétition capillarité-inertie du liquide . . .	261
2.4	2 <sup>ème</sup> dynamique : compétition capillarité-inertie de l'air . . . .	261
3	Comparaison avec l'expérience . . . . .	262
4	Éventualité d'une 3 <sup>ème</sup> dynamique dissipative . . . . .	264
5	Temps de détachement . . . . .	266
6	Perspectives . . . . .	268
<b>11</b>	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>271</b>
	<b>Annexe 1 : Tensiométrie et rhéométrie, principes de mesure</b>	<b>273</b>
1	Tensiométrie : méthode de la goutte pendante (ou bulle montante) . .	273
2	Rhéométrie en géométrie cône/plan . . . . .	275
	<b>Annexe 2 : Publications</b>	<b>277</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>323</b>

# Avant-propos

Le présent manuscrit réunit les travaux de ma thèse, codirigée par Pascal Panizza (Professeur à l'Université de Rennes 1 depuis 2006) et Laurent Courbin (Chargé de recherche CNRS depuis 2009). Cette thèse a été effectuée entre septembre 2011 et août 2014 à l'Institut de Physique de Rennes (IPR), Unité Mixte de Recherche Université de Rennes 1 - CNRS dirigée successivement par Anne Renault et Jean-Pierre Landesman pendant ma thèse. Elle a été précédée d'un stage de Master 2 qui s'est déroulé d'octobre 2010 à août 2011, également codirigé par Pascal Panizza et Laurent Courbin. Pendant ce stage, nous avons étudié le phénomène de *tip streaming* en microfluidique.

La diversité des travaux présentés s'appuie sur les expertises conjuguées de mes codirecteurs dans des domaines variés : citons notamment la microfluidique, la physique du mouillage, et de façon plus générale l'hydrodynamique aux interfaces, appliquée sur différentes échelles d'espace et de temps. La notion d'interface fluide apparaît comme le fil conducteur de ce travail. Comment créer une interface fluide ? Comment la stabiliser ? Comment la rompre ? Nous avons essayé d'apporter des éléments de réponse à ces questions en abordant des problèmes éclectiques et en tentant de les résoudre par différentes approches expérimentales et théoriques, adaptées à chaque situation.

Cette thèse est en conséquence structurée en deux grandes parties.

- La première partie est relative à des études réalisées dans le cadre de la microfluidique digitale à base de gouttes et de bulles. Pour faciliter la lecture, celle-ci propose un chapitre introductif permettant de rappeler quelques aspects fondamentaux d'hydrodynamique nécessaires à la compréhension de ce manuscrit, suivi d'un état de l'art des différents problèmes abordés en microfluidique. Nous présentons ensuite les résultats obtenus.
- La seconde partie traite de diverses expériences ayant trait aux films liquides et bulles de savon. Nous présentons brièvement en préambule de cette partie les enjeux et contexte des problèmes étudiés. J'ai pris le parti de rédiger les chapitres de cette seconde partie indépendamment les uns des autres, afin que le lecteur puisse les parcourir de façon clairesmée ou dans l'ordre qui lui conviendra.

Bonne lecture !



# Première partie

## Fragmentation d'objets déformables et confinés



# Chapitre 1

## La microfluidique : fondements et contexte généraux

Dans ce chapitre introductif, nous commençons par rappeler quelques concepts et aspects fondamentaux d'hydrodynamique utiles pour ce manuscrit en les appliquant au cas particulier des écoulements aux échelles de la microfluidique (typiquement 10 à 100 microns), mise en lumière dans cette première partie. Par la suite, nous discutons des techniques récentes de microfluidique digitale, permettant de produire des gouttelettes monodisperses de manière contrôlée et de les manipuler individuellement, à l'origine de nouvelles méthodes d'émulsification et de synthèse *bottom-up*. Utilisées comme microréacteurs, ces gouttelettes sont également l'élément de base d'applications digitales haut-débit permettant d'analyser un processus cinétique très rapidement, de manière fiable et en utilisant très peu d'échantillon. Le développement de telles applications nécessite de pouvoir réaliser et combiner diverses opérations élémentaires sur ces gouttes, telles que la dilution, la concentration, la fusion ou encore la fragmentation. Cette dernière opération élémentaire se trouve au cœur de cette première partie dédiée à la microfluidique : nous en dressons un état de l'art, et posons les questions auxquelles nous nous sommes intéressés. Nous tenterons d'y répondre dans les chapitres suivants.

### 1 Écoulements aux « petites » tailles

#### 1.1 Hypothèse de milieu continu, notion de particule fluide

En comparaison avec la mécanique du point ou du solide, la description de l'écoulement d'un fluide peut paraître extrêmement ardue, au vu du grand nombre de molécules impliquées généralement dans le mouvement (écoulement d'un torrent par exemple). Une difficulté de taille réside également dans le fait que, contrairement à un solide rigide, un fluide peut par définition se déformer, ce qui implique que les paramètres du fluide (vitesse, température, pression, masse volumique par exemple) deviennent, en plus d'être des variables temporelles, des champs scalaires et vectoriels de l'espace, et dont la structure dépend fortement de l'échelle à laquelle on sonde l'écoulement (Fig. 1.1). Analysons les deux cas extrêmes ci-dessous.

- À l'échelle atomique, le caractère granulaire de la matière engendre de très grandes discontinuités des propriétés du fluide. La masse volumique, par exemple,

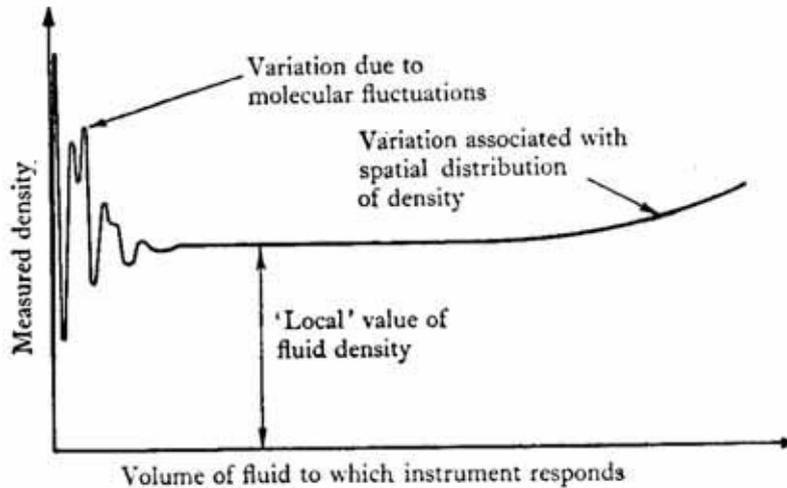


FIGURE 1.1: Influence de l'échelle de taille choisie pour sonder le système sur la masse volumique mesurée par un instrument adéquat. Figure tirée de [1].

est quasiment nulle en dehors du noyau, du fait de la structure lacunaire de la matière, et atteint des valeurs gigantesques au niveau du noyau, typiquement  $200\,000 \text{ tonnes} \cdot \text{mm}^{-3}$  ! *De facto*, les champs ne sont pas des fonctions continues et dérivables de l'espace à cette échelle, et le concept de mesure perd alors tout son sens.

- À notre échelle, il semble difficile de sonder localement et avec précision les propriétés d'un fluide. La variation des quantités physiques intrinsèques aux fluides, le champ de température dans une pièce par exemple, peuvent éventuellement être « noyées » par un processus de moyennage trop grossier, et la valeur mesurée dépend alors de la taille de la sonde utilisée, démontrant le caractère arbitraire de la mesure.

De fait, il existe une échelle intermédiaire entre les tailles microscopique et macroscopique, dite échelle mésoscopique, pour laquelle il est possible de suivre avec précision l'évolution des propriétés locales du fluide tout en conservant des champs continus et dérivables spatialement. Ce postulat constitue l'hypothèse de milieu continu, ceci s'avérant en particulier intéressant pour l'utilisation des outils classiques issus de la théorie des champs. L'échelle mésoscopique définit la taille  $\ell$  d'une particule fluide, son ordre de grandeur dépend de la nature du fluide utilisé, liquide ou gazeux, du fait des propriétés de cohésion extrêmement différentes entre ces deux états de la matière.

### 1.1.1 Cas liquide

En notant  $a$  la taille moléculaire (également de l'ordre de la distance intermoléculaire) et  $L$  la longueur typique de l'écoulement (la largeur du canal par exemple), la taille mésoscopique doit, d'après la discussion précédente, vérifier l'encadrement suivant :

$$a \ll \ell \ll L. \quad (1.1)$$

En prenant  $a \simeq 3 \text{ \AA}$  pour un liquide simple et  $L \simeq 30 \text{ \mu m}$  en microfluidique,  $\ell$  peut généralement valoir quelques nanomètres. Notons que dans le cas des fluides complexes, la distance intermoléculaire peut être beaucoup plus grande, obligeant à prendre parfois  $\ell \simeq 1 \text{ \mu m}$ . Remarquons par ailleurs que le domaine récent de la nanofluidique restreint considérablement l'intervalle d'encadrement imposé à  $\ell$  : l'hypothèse de milieu continu tombe généralement en défaut à ces échelles de taille, l'écoulement est alors décrit par le biais de la dynamique moléculaire.

### 1.1.2 Cas gazeux

Dans le cas des gaz, l'échelle pertinente de la particule fluide est désormais le libre parcours moyen  $l$ . Dans le cas d'un gaz parfait vérifiant une distribution de probabilité de vitesse de Maxwell, celui-ci s'exprime :

$$l = \frac{1}{\sqrt{2\pi}na^2}, \quad (1.2)$$

avec  $n$  le nombre d'atomes par unité de volume et  $a$  le diamètre atomique. L'équation d'état des gaz parfaits  $p = nk_B T$  permet de réécrire  $l$  sous la forme :

$$l = \frac{k_B T}{\sqrt{2\pi}pa^2}, \quad (1.3)$$

avec  $T$  la température absolue mesurée en Kelvin, et  $p$  la pression. Cette quantité  $l$  doit donc rester petite devant la taille typique  $L$  de l'écoulement. Ce critère s'exprime usuellement à l'aide du nombre de Knudsen  $\mathcal{K}n = l/L$  comme :

$$\mathcal{K}n < 0.1. \quad (1.4)$$

Lorsque la pression diminue, le libre parcours moyen augmente, le nombre de Knudsen également, ce dernier pouvant éventuellement dépasser le seuil autorisé par l'hypothèse de milieu continu. Dans le cas des gaz raréfiés (système d'air en altitude par exemple), cette hypothèse est ainsi rejetée au profit d'autres moyens de description, passant notamment par la résolution de l'équation de Boltzmann.

## 1.2 Équation de Navier-Stokes

Dans le cadre de l'hypothèse de milieu continu, il est possible de concevoir l'écoulement d'un fluide de deux manières différentes. La description lagrangienne consiste à suivre une seule et même particule fluide au cours de son mouvement, et observer les modifications des paramètres (la vitesse par exemple) qu'elle endure au cours de son mouvement. La description eulérienne se situe à l'opposé, puisqu'elle consiste à observer un point fixe de l'espace par lequel transitent de multiples particules fluides, et étudier l'évolution des propriétés du fluide en ce point<sup>1</sup>. En dépit de

---

1. Nous devons ces descriptions à Leonhard Euler (1707-1783) et Joseph-Louis Lagrange (1736-1813), physiciens (entre autres) respectivement suisse et italien. Pour fixer les idées, imaginons un pêcheur en train de garder les yeux fixés sur son hameçon en attendant d'attraper l'anguille : il se place d'emblée dans une description eulérienne. Si, las de ne rien attraper au bout de quelques heures, il se met à rêvasser, ses yeux suivant inconsciemment le mouvement d'une brindille emportée par le courant de la rivière, il se place alors dans une description lagrangienne.

leurs différences, ces conceptions sont toutes deux équivalentes. L'équation locale de conservation de la masse appliquée à une particule fluide impose la relation suivante entre les champs de vitesse  $\vec{v}$  et de masse volumique  $\rho$  :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v}) = 0. \quad (1.5)$$

Cette équation peut être simplifiée en considérant l'écoulement incompressible. Les conditions de validité de cette hypothèse reposent sur l'évaluation du nombre de Mach  $Ma$  défini comme :

$$Ma = \frac{v}{c_s}, \quad (1.6)$$

avec  $v$  la vitesse typique de l'écoulement et  $c_s$  la célérité du son dans le milieu considéré.  $c_s$  valant typiquement  $1000 \text{ m.s}^{-1}$  dans les liquides,  $340 \text{ m.s}^{-1}$  dans l'air à température ambiante, cette hypothèse d'incompressibilité est satisfaite dans tous les résultats présentés dans ce manuscrit. De fait,  $\rho$  ne dépend plus des coordonnées d'espace et du temps, et l'équation 1.5 devient simplement :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0. \quad (1.7)$$

L'équation locale de conservation de la quantité de mouvement appliquée à une particule fluide, revenant à la généralisation du principe fondamental de la dynamique pour un milieu continu incompressible, peut se mettre sous la forme :

$$\rho \frac{D\vec{v}}{Dt} = -\vec{\nabla} p + \eta \Delta \vec{v} + \vec{f}, \quad (1.8)$$

avec  $\eta$  la viscosité dynamique du fluide : cette équation est connue sous le nom d'équation de Navier-Stokes<sup>2, 3</sup>. Sa résolution, assortie des conditions aux limites et des conditions initiales, permet alors d'avoir accès au champ de vitesse de l'écoulement en tout point et à tout instant. Détaillons plus avant chacun des termes apparaissant dans cette équation. La dérivée particulaire<sup>4</sup> de la vitesse apparaissant dans le membre de gauche est définie comme :

$$\frac{D\vec{v}}{Dt} = \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v}, \quad (1.10)$$

---

2. Sans l'hypothèse d'incompressibilité, il faudrait adjoindre au membre de droite de l'équation de Navier-Stokes un terme supplémentaire de viscosité de volume, l'hypothèse de Stokes permettant de l'écrire sous la forme  $\eta \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{v})/3$ .

3. Encore à l'heure actuelle, la résolution de cette équation, établie par Claude Louis Marie Henri Navier [2] (1785-1836) et George Gabriel Stokes [3] (1819-1903), fait partie des fameux problèmes du prix du millénaire. Quiconque arrivera à déterminer une solution générale à cette équation, si tant est qu'elle existe, se verra remettre un prix de un million de dollars par le *Clay Mathematical Institute*...

4. Cette notion est fondamentalement attachée à l'idée de milieu continu, et peut s'étendre à un champ scalaire, la température par exemple :

$$\frac{DT}{Dt} = \frac{\partial T}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) T. \quad (1.9)$$

Pour mieux comprendre le rôle des deux termes du membre de droite, imaginons un parachutiste sautant d'un avion en matinée, et atterrissant en début d'après-midi. Ce parachutiste va directement venir sonder le champ de température de l'air, et manifestement ressentir une augmentation de celle-ci. Cette augmentation est d'une part temporelle puisque le Soleil se rapproche du zénith à mesure de sa descente (terme instationnaire), d'autre part spatiale puisque le parachutiste, en diminuant son altitude, va ressentir une température de plus en plus agréable au fur et à mesure qu'il se rapproche du sol (terme convectif).

où le premier terme est qualifié d'accélération instationnaire, le second terme d'accélération convective. En comparaison avec le principal fondamental de la dynamique appliqué à un point matériel, c'est ce nouveau terme convectif, variant de façon non linéaire avec la vitesse, qui apporte toute l'originalité, la richesse et la complexité au domaine de la dynamique des fluides. L'accélération de la particule fluide est engendrée par la présence de différentes forces volumiques apparaissant dans le membre de droite de l'équation 1.8. Le terme  $-\vec{\nabla}p$  désigne les forces volumiques de pression. Le terme  $\eta\Delta\vec{v}$  désigne les forces volumiques de dissipation visqueuse. En écrivant l'équation de Navier-Stokes, nous avons fait l'hypothèse implicite que la viscosité  $\eta$  était une quantité scalaire et intrinsèque au fluide, indépendante de la sollicitation qui lui est appliquée : ceci constitue la définition d'un fluide newtonien<sup>5</sup>. Dans la limite inviscide ( $\eta = 0$ ), la simplification de l'équation de Navier-Stokes aboutit à l'équation d'Euler [4] décrivant l'écoulement d'un fluide « parfait » sans dissipation :

$$\rho \frac{D\vec{v}}{Dt} = -\vec{\nabla}p + \vec{f}. \quad (1.11)$$

Enfin, le terme  $\vec{f}$  désigne d'éventuelles autres forces volumiques pouvant intervenir dans le problème. Citons à titre d'exemple :

- la gravité :  $\vec{f} = \rho\vec{g}$ ,
- la force de Lorentz :  $\vec{f} = \rho_e(\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B})$ , avec  $\rho_e$  la densité volumique de charge et  $(\vec{E}, \vec{B})$  le champ électromagnétique (dans le domaine de la magnétohydrodynamique en particulier).

Dans le cas d'un écoulement parfait, notons qu'en l'absence de forces volumiques ( $\vec{f} = \vec{0}$ ) et en supposant par ailleurs un régime permanent établi ( $\partial\vec{v}/\partial t = \vec{0}$ ), il est possible de démontrer à partir de l'équation d'Euler (Éq. 1.11) l'identité suivante :

$$\frac{\rho v^2}{2} + p = [\text{const}], \quad (1.12)$$

le long d'une ligne de courant. Cette identité, assimilable à une équation de conservation de l'énergie résultant de l'absence de dissipation, est connue sous le nom de théorème de Bernoulli<sup>6</sup> [5]. Ce résultat se révélera utile dans la seconde partie de ce manuscrit.

### 1.3 Capillarité, notion de tension de surface

Nous avons jusque-là considéré le cas d'un écoulement monophasique. En présence de deux phases liquide/liquide ou liquide/gaz immiscibles, il importe de décrire avec précision les mécanismes physiques mis en jeu à l'interface. Bien que nous nous soyons pour l'instant placés dans l'approximation d'un milieu continu, la notion même d'interface entre deux fluides justifie que l'on regarde de plus près le comportement des molécules situées de part et d'autre d'une interface, ne serait-ce que pour justifier certains faits, dans la nature ou la vie quotidienne, que l'équation de Navier-Stokes ne parvient pas à décrire et à expliquer (Fig. 1.2) : entre autres, comment un gerris<sup>7</sup> ou une petite pièce de monnaie peuvent arriver à flotter sur

---

5. Du nom du savant britannique Isaac Newton (1642-1727).

6. Daniel Bernoulli (1700-1782), médecin, physicien et mathématicien suisse.

7. Petit insecte couramment surnommé « patineur des étangs ».



FIGURE 1.2: Divers phénomènes capillaires inspirés de la nature et de la vie quotidienne. La photo représentant le scarabée est adaptée de [6].

l'eau, malgré une poussée d'Archimède généralement inférieure à leur poids ? Quelle force défiant la pesanteur permet au café d'imbiber le morceau de sucre, ou à un liquide de remonter dans un capillaire très fin, de même que l'eau dans les plantes ? Comment un scarabée de 13 mg arrive à supporter une masse de 2 g [6] ?

### 1.3.1 Explication à l'échelle moléculaire

Considérons pour l'exemple un verre d'eau surmonté par l'air ambiant, ou par une couche d'huile déposée à sa surface. Chaque molécule d'eau est soumise aux interactions exercées de la part de ses consœurs. L'allure typique de l'énergie potentielle  $E_p$  en fonction de la distance  $r$  séparant deux molécules est illustrée sur la figure 1.3. Celle-ci comprend deux tendances principales :

- un caractère violemment répulsif à courte distance, heuristiquement en  $1/r^{12}$ , notamment dû au principe de Pauli empêchant les électrons de se rapprocher indéfiniment,
- un caractère attractif à longue distance, typiquement en  $-1/r^6$ , responsable de la cohésion générale du liquide.

En comparant le cas d'une molécule dans le volume et une molécule au niveau de la surface, nous remarquons que celle située en surface possède environ une moitié de voisines en moins. En supposant que les interactions avec la seconde phase soient moindres que celles au sein du même liquide, ces molécules vont donc ressentir une résultante des forces non nulle et dirigée vers l'intérieur du liquide. Le système est ainsi animé d'une volonté de minimiser l'interface qu'il partage avec l'autre phase en présence, l'air ou l'huile, l'état le plus favorable d'un point de vue énergétique correspondant, par la déformation du liquide, à la minimisation de l'aire de cette in-

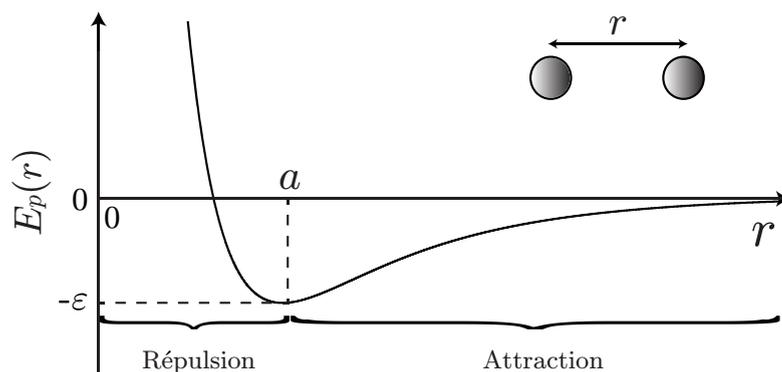


FIGURE 1.3: Allure schématique du potentiel d'interaction entre deux molécules identiques dans un liquide.

terface<sup>8</sup>. En prenant l'exemple d'une bulle de savon dans l'air, l'interface liquide/air fermée entourant un volume d'air fixé est minimale lorsque sa forme est sphérique : ce point, loin d'être trivial mathématiquement, est en heureux accord avec notre expérience quotidienne en lavant la vaisselle ou en prenant un bain. Nous définissons alors la tension de surface<sup>9</sup>  $\gamma$  comme le prix énergétique à payer pour augmenter l'aire de l'interface d'une unité<sup>10</sup> :

$$\gamma = \frac{dE}{dS}. \quad (1.13)$$

Cette quantité, intrinsèque à toute interface fluide, est la conséquence macroscopique d'effets moléculaires<sup>11</sup>, et se révélera au fil des chapitres comme le véritable fil rouge de ce manuscrit. Son ordre de grandeur peut être directement évalué à l'échelle moléculaire, à l'aide des ordres de grandeur typiques d'énergie de cohésion dans un liquide  $\varepsilon$  et de taille moléculaire  $a$  (Fig. 1.3). Pour  $a \simeq 3\text{\AA}$ , et une énergie de cohésion valant environ  $k_B T$  avec une température  $T = 300\text{ K}$ , il vient :

$$\gamma \sim \frac{k_B T}{a^2} \simeq 50 \text{ mJ.m}^{-2}. \quad (1.15)$$

8. Ce point fait également écho aux diverses formes prises par un film de savon dans l'air [7], exhibant des surfaces minimales au sens le plus mathématique du terme ; nous aurons l'occasion d'y revenir dans la seconde partie.

9. Historiquement, ce principe a été postulé pour la première fois par von Segner [8] en 1751, en lien avec ses observations et celles de ses prédécesseurs Hauksbee [9] (1709) et Jurin [10] (1719).

10. Cet apport d'énergie est par exemple d'origine mécanique lorsque l'on bat des blancs en neige. L'air incorporé dans les blancs d'œufs leur apporte une texture mousseuse et aérienne, faisant clairement apparaître l'accroissement de surface liquide/air engendré. Ce procédé intervient dans la confection de nombreuses recettes salées et sucrées.

11. Toujours en lien avec les propriétés de cohésion des liquides, la tension de surface peut également être reliée à la chaleur latente de vaporisation, grandeur thermodynamique quantifiant l'énergie par unité de masse à fournir au liquide pour lui permettre de passer à l'état gazeux. De fait, pour extraire une molécule d'eau de la phase liquide, il faut, en plus de l'amener à la surface, lui retirer la seconde moitié de ses semblables, et ainsi lui fournir une énergie de l'ordre de :

$$2\gamma a^2 \sim \rho a^3 L_v, \quad (1.14)$$

avec  $L_v$  la chaleur latente de vaporisation. Malgré la simplicité de cette approche, les ordres de grandeur sont relativement satisfaisants.

Cet ordre de grandeur est en bon accord avec les valeurs tabulées de la littérature [11] à température ambiante :  $\gamma(\text{huile/air}) \sim 20 \text{ mJ.m}^{-2}$ ,  $\gamma(\text{eau/air}) = 72 \text{ mJ.m}^{-2}$  (cohésion plus forte due notamment à la présence de liaisons hydrogène). Citons tout de même une valeur bien supérieure pour le mercure :  $\gamma(\text{Hg/air}) = 436 \text{ mJ.m}^{-2}$ , du fait d'une cohésion encore plus forte assurée par la présence de liaisons métalliques. Par analyse dimensionnelle, et en notant  $\ell$  une taille caractéristique du système, la tension de surface peut aussi bien s'interpréter en termes d'énergie  $\gamma\ell^2$ , de force  $\gamma\ell$  ou de pression  $\gamma/\ell$ ; nous utiliserons tour à tour l'une ou l'autre de ces interprétations lorsque nous en aurons besoin dans la suite de ce manuscrit. Souvenons-nous seulement que les effets capillaires deviennent prédominants à mesure que les dimensions du système sont réduites. Cet effet peut se comprendre en remarquant que l'énergie de surface, variant comme  $\ell^2$ , excède automatiquement toute énergie en  $\ell^4$  associée à une force « dans le volume » en-dessous d'une certaine taille. En considérant par exemple la pesanteur, les effets commenceront à devenir du même ordre pour une taille  $\kappa^{-1}$  définie par comparaison des énergies :

$$\gamma\kappa^{-2} \sim \rho g \kappa^{-4}, \quad (1.16)$$

$$\kappa^{-1} \sim \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}}. \quad (1.17)$$

$\kappa^{-1}$  est la longueur capillaire, et vaut 2.7 mm pour une interface eau/air à température ambiante. Voici pourquoi tous les phénomènes capillaires observés sur la figure 1.2 mettent en jeu des échelles de longueur inférieures, ou tout au plus de l'ordre du millimètre. De façon remarquable, ceci se généralise à une interface liquide/air quelconque, la quantité  $\sqrt{\gamma/\rho}$  variant peu d'un liquide à l'autre. Discutons à présent les dépendances de la tension de surface avec la température et la présence de surfactants.

### 1.3.2 Influence de la température $T$

De façon générale, la tension de surface  $\gamma$  est une fonction décroissante de la température<sup>12</sup>. En raisonnant de façon simple, l'agitation thermique a tendance à augmenter le mouvement des molécules, venant ainsi diminuer l'effet d'attraction sur les molécules en surface, l'état énergétique de ces dernières est de fait moins défavorable. Lorsque la température caractéristique du point critique  $T_c$  est atteinte ( $T_c = 374^\circ\text{C}$  pour l'eau par exemple), les états liquide et gazeux se confondent en une seule et même phase, qualifiée de « fluide hypercritique » : de fait, la chaleur latente de vaporisation s'annule, la tension de surface également, comme intuité par la relation 1.14.

### 1.3.3 Influence de la présence de surfactants

Il est connu expérimentalement que la présence d'impuretés a une grande influence sur la mesure d'une tension de surface liquide/air. Ceci se justifie de nou-

---

12. Remarquons que cette variation peut paraître contradictoire avec l'équation 1.15. Retenons que l'estimation faite au paragraphe précédent permet de tirer une valeur typique de la tension de surface, mais n'est pas indicatrice de son sens de variation avec la température, ceci nécessitant une approche thermodynamique beaucoup plus fine. En ce sens, il existe dans la littérature plusieurs modèles différents, dépendant notamment du système étudié, afin de décrire la décroissance de  $\gamma(T)$  [12, 7].

veau au niveau moléculaire : la migration des impuretés à la surface peut changer de façon notable l'énergie d'interaction ressentie par les molécules en surface, et a tendance à stabiliser ces molécules, correspondant encore à un abaissement de la tension de surface<sup>13</sup>. Certaines molécules, connues pour diminuer de façon drastique la tension de surface (parfois jusqu'à un facteur 3–4), sont à ce titre qualifiées de tensioactifs, ou surfactants. C'est notamment le cas des produits moussants de la vie quotidienne (savons, produits vaisselle), mais aussi des molécules biologiques présentes dans le corps humain (lipides, phospholipides, protéines). Ces molécules

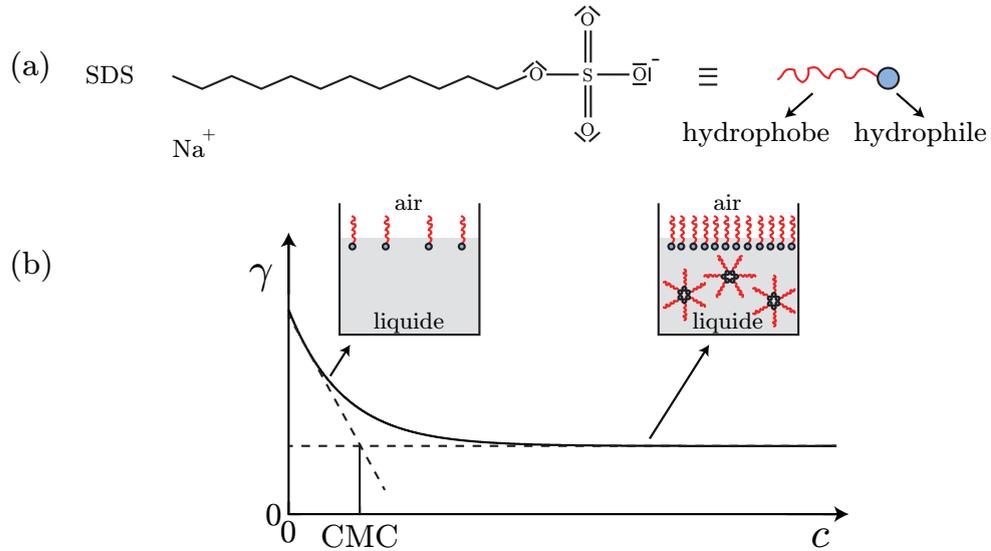


FIGURE 1.4: (a) Formule topologique du dodécylsulfate de sodium (SDS), surfactant utilisé dans la suite du manuscrit. La représentation schématique fait apparaître une longue chaîne aliphatique hydrophobe et une tête polaire hydrophile. (b) Évolution typique de la tension de surface  $\gamma$  en fonction de la concentration  $c$  en surfactant. Aux faibles concentrations devant la concentration micellaire critique (CMC), les surfactants se retrouvent uniquement à l'interface, la tension de surface décroît avec la concentration. Aux fortes concentrations devant la CMC, l'interface est saturée en tensioactifs, les surfactants en excès se regroupent en micelles sphériques dans le volume liquide,  $\gamma$  ne varie plus avec  $c$ .

détiennent un caractère amphiphile (Fig. 1.4 (a)), puisqu'elles contiennent à la fois une longue chaîne constituée d'un squelette carboné hydrophobe, ainsi qu'une tête constituée d'un groupement carbonyle hydrophile. Une fois mis en solution, les tensioactifs ont naturellement tendance à rejoindre l'interface liquide/air, la tête située dans le liquide, leur chaîne hydrophobe située dans l'air, de façon à satisfaire leurs « tendances bipolaires » (Fig. 1.4 (b)). Ces molécules viennent donc « tapisser » l'interface et côtoyer les molécules d'eau situées en surface : la position de ces dernières ne devient alors plus si défavorable, et la tension de surface diminue. Comme ce mécanisme de peuplement est un phénomène de surface, il arrive un moment où le rajout de surfactant ne modifie plus la tension de surface. Lorsque la solution est

13. Nous nous limitons à l'étude de l'état d'équilibre du système, et négligeons en conséquence les dynamiques d'adsorption/désorption des tensioactifs à l'interface [13, 14, 15, 16].

trop concentrée en surfactants, il devient impossible de placer davantage de molécules de tensioactifs en surface, celles-ci n'ont alors d'autre choix que de rester dans le volume liquide et se regrouper en micelles sphériques, encore afin de favoriser leurs interactions mutuelles. La concentration à partir de laquelle la tension de surface atteint sa limite inférieure est dénommée concentration micellaire critique, et notée CMC dans la suite de ce manuscrit. Elle dépend naturellement de la structure moléculaire, et donc du surfactant utilisé.

## 1.4 Nombres adimensionnés, ordres de grandeur

Comme il est d'usage en mécanique des fluides, tentons de construire et d'estimer la valeur de certains groupements adimensionnels afin de comparer l'importance des différents termes apparaissant dans l'équation de Navier-Stokes, en tenant également compte des effets capillaires. À partir du jeu de six paramètres suivants :

$$\left\{ \begin{array}{l} v : \text{vitesse typique,} \\ \ell : \text{taille typique,} \\ \rho : \text{masse volumique,} \\ g : \text{accélération de la pesanteur,} \\ \eta : \text{viscosité dynamique,} \\ \gamma : \text{tension superficielle,} \end{array} \right.$$

construits sur trois unités fondamentales du système international (longueur, masse, temps), nous pouvons donc former trois nombres sans dimension, d'après le théorème de Vaschy-Buckingham. Notre choix se porte sur trois nombres adimensionnés récurrents en hydrodynamique : le nombre de Reynolds  $\mathcal{Re}$ , le nombre de Bond  $\mathcal{Bo}$  et le nombre capillaire  $\mathcal{C}$ , nous les présentons dans la suite. Comme ce choix est arbitraire, nous aurions tout aussi bien pu remplacer par exemple  $\mathcal{C}$  par le produit  $\mathcal{Re}\mathcal{C}$ . Ce nouveau nombre adimensionné est le nombre de Weber  $\mathcal{We}$ ; nous en discutons brièvement, ce dernier se révélant particulièrement pertinent dans la seconde partie de ce manuscrit dédiée aux films de savon.

### 1.4.1 Nombre de Reynolds $\mathcal{Re}$

Le nombre de Reynolds  $\mathcal{Re}$  s'exprime :

$$\mathcal{Re} = \frac{\rho v \ell}{\eta}. \quad (1.18)$$

Ce dernier compare directement les effets convectifs et visqueux de l'équation de Navier-Stokes, respectivement de l'ordre de  $\rho v^2/\ell$  et  $\eta v/\ell^2$ . Ce nombre est crucial tant il met en opposition deux grands pans de la mécanique des fluides : les écoulements laminaires « rampants » aux petits nombres de Reynolds (circulation dans les vaisseaux sanguins par exemple) où les effets de dissipation visqueuse sont particulièrement prononcés, et les écoulements turbulents aux grands nombres de Reynolds (profil aérodynamique autour d'une aile d'avion par exemple) où le terme visqueux peut raisonnablement être oublié, l'écoulement pouvant en ce sens être considéré comme parfait. Estimons l'ordre de grandeur de  $\mathcal{Re}$  dans notre configuration. En

choisissant un écoulement d'eau ( $\rho \simeq 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ ,  $\eta \simeq 10^{-3} \text{ Pa.s}$ ) à une vitesse  $v \simeq 1 \text{ mm.s}^{-1}$  dans un canal de taille  $\ell \simeq 50 \text{ }\mu\text{m}$ , nous trouvons  $Re \simeq 5 \cdot 10^{-2}$ . Ce nombre est petit devant l'unité, ceci nous permettant de nous affranchir du terme convectif au profit du terme visqueux dans l'équation de Navier-Stokes dans la suite de cette première partie.

### 1.4.2 Nombre de Bond $\mathcal{Bo}$

Le nombre de Bond  $\mathcal{Bo}$  s'exprime quant à lui :

$$\mathcal{Bo} = \frac{\rho g \ell^2}{\gamma}. \quad (1.19)$$

Ce nombre adimensionné résulte de la comparaison des effets de gravité et de capillarité. Remarquons que ce dernier peut se mettre sous la forme :

$$\mathcal{Bo} = \left( \frac{\ell}{\kappa^{-1}} \right)^2. \quad (1.20)$$

Ainsi, lorsque  $\ell < \kappa^{-1}$ , la capillarité est prédominante devant la gravité. À l'inverse, lorsque  $\ell > \kappa^{-1}$ , la gravité prédomine sur les effets capillaires. Comme nous l'avons vu, la longueur capillaire  $\kappa^{-1}$  est d'ordre millimétrique. Ceci justifie par exemple la forme d'une goutte d'eau déposée sur une lame de verre enduite de suie : lorsque la goutte est petite devant le millimètre, l'interface de celle-ci adopte la forme d'une portion de sphère afin de minimiser son énergie interfaciale avec l'air. Lorsque la goutte est grande devant le millimètre, celle-ci s'aplatit et prend la forme d'une flaque, moins coûteuse en énergie de pesanteur [11]. En microfluidique, nous obtenons pour une longueur typique  $\ell \simeq 50 \text{ }\mu\text{m}$  un nombre de Bond  $\mathcal{Bo} \simeq 10^{-3}$ , petit devant l'unité. Nous pouvons dans ce cadre négliger la pesanteur dans la suite de cette première partie.

### 1.4.3 Nombre capillaire $\mathcal{C}$

Le nombre capillaire  $\mathcal{C}$  s'exprime :

$$\mathcal{C} = \frac{\eta v}{\gamma}. \quad (1.21)$$

Ce nombre adimensionné, comparant les effets visqueux et capillaires, intervient notamment dans le processus de fragmentation de gouttes [17, 18, 19, 20, 21]. Donnons-en ici une interprétation simple : imaginons une goutte d'huile sphérique de taille  $\ell$  cisailée au sein d'un écoulement d'eau. Le taux de cisaillement exercé sur la goutte d'huile est de l'ordre de  $v/\ell$ , avec  $v$  une échelle typique du différentiel de vitesse subi par la goutte en ses extrémités. Ce taux de cisaillement induit une contrainte visqueuse de l'ordre de  $\eta v/\ell$ , où  $\eta$  désigne la viscosité de la phase continue ; la force de cisaillement visqueux prend donc la forme d'une loi de Stokes :  $\eta \ell v$ . Alors que cette force est de nature à déformer la goutte, les effets capillaires tendent naturellement à s'y opposer par l'intermédiaire d'une force supplémentaire de l'ordre de  $\gamma \ell$ , afin de rétablir la forme sphérique de la goutte. Le nombre capillaire, exprimant de façon simple le ratio de ces deux forces, quantifie donc le degré d'élongation de la goutte et l'importance relative des deux mécanismes en compétition. Avec les mêmes paramètres que ceux pris précédemment et  $\gamma \simeq 20 \text{ mN.m}^{-1}$  pour une interface eau/huile, nous obtenons comme ordre de grandeur  $\mathcal{C} \simeq 5 \cdot 10^{-5}$ , très petit devant l'unité.

#### 1.4.4 Nombre de Weber $We$

Nous définissons également le nombre de Weber  $We$  comme :

$$We = \frac{\rho v^2 \ell}{\gamma}. \quad (1.22)$$

Ce nombre adimensionné met en comparaison les effets inertiels et capillaires, et s'exprime comme le rapport de deux énergies caractéristiques : une contribution cinétique  $\rho \ell^3 v^2$  et une contribution capillaire  $\gamma \ell^2$ . Ce nombre intervient par exemple dans le processus de fragmentation de jets liquides [22]. Comme  $We = ReC$ ,  $We$  est *a fortiori* petit devant l'unité dans cette première partie, d'après les ordres de grandeur précédents. Ce nombre sans dimension aura par contre une importance cruciale pour les phénomènes étudiés dans la seconde partie de ce manuscrit.

### 1.5 Écoulements de Stokes

D'après les ordres de grandeur obtenus précédemment, la condition  $Re \ll 1$  nous autorise à négliger le terme convectif devant le terme visqueux dans l'équation de Navier-Stokes. En supposant de plus un régime stationnaire établi<sup>14</sup> ( $\partial \vec{v} / \partial t = \vec{0}$ ) ainsi que l'absence d'autres forces volumiques ( $\vec{f} = \vec{0}$ ), nous obtenons finalement l'équation suivante :

$$\eta \Delta \vec{v} = \vec{\nabla} p, \quad (1.23)$$

dite équation de Stokes. Dressons quelques propriétés intéressantes de cette équation ci-après [23], puis résolvons-la analytiquement dans une géométrie simple.

#### 1.5.1 Linéarité

L'équation de Stokes a le bong goût de ne plus contenir la non-linéarité du terme convectif présent dans l'équation de Navier-Stokes. Dans un certain sens, elle contient certaines analogies avec l'équation de Poisson, ou l'équation de Laplace si le gradient de pression est nul, en électromagnétisme<sup>15</sup>. De fait, il est possible de raisonner par superposition : si un gradient de pression noté  $\vec{\nabla} p_a$  (resp.  $\vec{\nabla} p_b$ ) induit un champ de vitesse noté  $\vec{v}_a$  (resp.  $\vec{v}_b$ ), alors le champ de pression  $\lambda \vec{\nabla} p_a + \mu \vec{\nabla} p_b$  induit le champ de vitesse  $\lambda \vec{v}_a + \mu \vec{v}_b$ . Ce principe de combinaison linéaire s'applique aussi pour les conditions aux limites imposées sur le champ de vitesse.

#### 1.5.2 Réversibilité

En prenant dans la propriété précédente les valeurs  $\lambda = -1$  et  $\mu = 0$ , nous pouvons montrer qu'en inversant le gradient de pression (ou bien les conditions aux limites dans le cas d'un gradient de pression nul), l'écoulement est également inversé. Par

---

14. Ceci est une condition suffisante mais non nécessaire. De façon moins restrictive, il suffit en fait de supposer que l'échelle temporelle  $\tau$  typique de variation du champ de vitesse soit grande devant les autres temps caractéristiques du problème, ici le temps de diffusion visqueuse :  $\rho \ell^2 / \eta$ . Ce critère peut généralement se réexprimer à l'aide d'un nouveau nombre adimensionné, le nombre de Stokes :  $St = \rho \ell^2 / \eta \tau \ll 1$ .

15. Une difficulté supplémentaire provient tout de même ici de la nature vectorielle du champ de vitesse, à la différence du potentiel scalaire électrostatique.

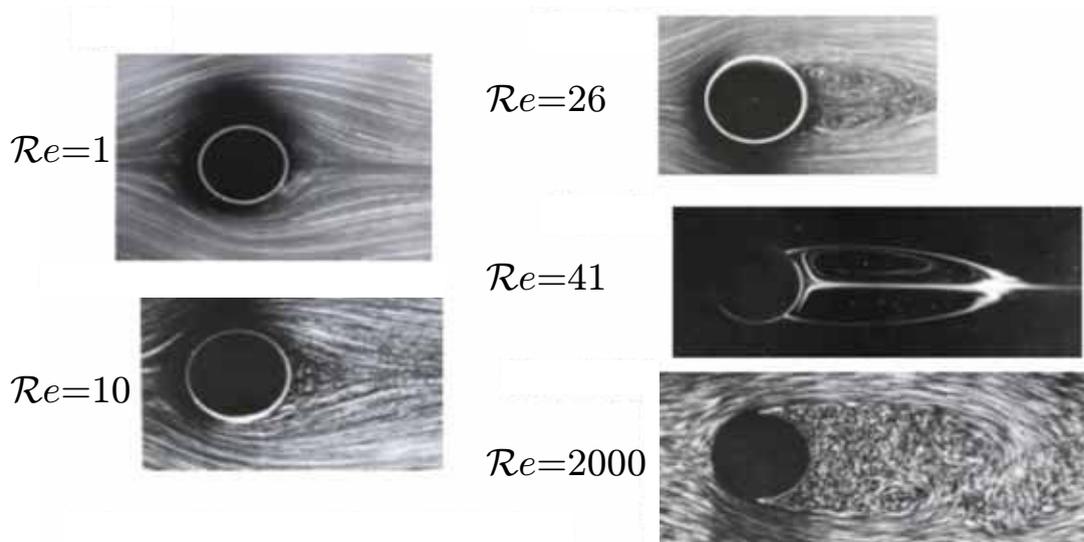


FIGURE 1.5: Divers régimes d'écoulement autour d'un cylindre dans une cellule de Hele-Shaw, en fonction de la valeur du nombre de Reynolds  $\mathcal{R}e$ . Le degré de complexité de l'écoulement croît avec le nombre de Reynolds. L'écoulement s'effectue de gauche à droite. Figure adaptée de [24].

abus de l'esprit, nous dirons que l'équation de Stokes est invariante par renversement du temps. Cette réversibilité est illustrée par un célèbre film de G. I. Taylor<sup>16</sup> [25], dans lequel une goutte d'encre est mise en rotation entre deux cylindres dans un fluide visqueux. Le cisaillement imposé par la rotation provoque la déformation de la goutte au bout d'un certain nombre de tours. En effectuant exactement le même nombre de tours dans le sens inverse, le champ de vitesse est renversé, et la goutte d'encre retrouve de façon stupéfiante sa forme initiale, aux infimes effets de diffusion moléculaire près. De façon intéressante, cette propriété ne se vérifie plus avec une vitesse de rotation trop grande : rappelons en effet que le nombre de Reynolds  $\mathcal{R}e$  est proportionnel à la vitesse typique de l'écoulement, nous quittons alors le domaine de validité de l'équation de Stokes. Cet aspect important se retrouve dans la topologie des lignes de courant d'un écoulement bidimensionnel autour d'un obstacle cylindrique fixe (Fig. 1.5). Aux petits nombres de Reynolds, la réversibilité de l'écoulement engendre une symétrie des lignes de courant entre l'amont et l'aval. Aux plus grands nombre de Reynolds, l'apparition de tourbillons en aval est la signature d'une brisure de symétrie, et donc d'une perte de cette réversibilité.

### 1.5.3 Instantanéité

L'absence de terme en  $\partial/\partial t$  dans l'équation de Stokes induit l'absence d'effet mémoire du système. Ainsi, l'unique information contenue dans le champ de vitesse est celle obtenue dans l'instant présent, elle se transmet à l'infini avec une rapidité infinie.

<sup>16</sup>. Sir Geoffrey Ingram Taylor (1886-1975), physicien et mathématicien britannique.

### 1.5.4 Dissipation minimale

Il est possible de démontrer mathématiquement qu'un écoulement vérifiant l'équation de Stokes minimise le taux de dissipation d'énergie dans un volume fixé [23].

### 1.5.5 Unicité

Sans la prise en compte des conditions aux limites, l'équation de Stokes admet *a priori* une infinité de solutions. Supposons maintenant qu'il existe deux champs de vitesse différents, solutions de l'équation de Stokes pour un gradient de pression et des conditions aux limites identiques. À l'aide de la propriété précédente, ces deux solutions correspondent toutes deux à un même taux de dissipation d'énergie. Ceci est vérifié si les taux de déformation de leurs champs de vitesse sont identiques, soit encore si ces derniers ne diffèrent que d'une constante vectorielle additive près. Or, les conditions aux limites imposent la nullité de cette constante vectorielle, les champs de vitesse sont donc identiques, conduisant à l'unicité de la solution de l'équation de Stokes.

### 1.5.6 Réciprocité

Deux champs de vitesse différents, solutions de l'équation de Stokes pour un même gradient de pression mais avec des conditions aux limites différentes, peuvent être reliées par une équation intégrale analogue au théorème de Green.

### 1.5.7 Résolution analytique dans une géométrie simple, analogie électrohydraulique

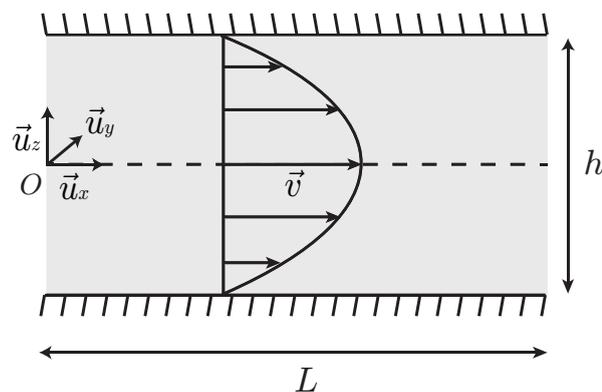


FIGURE 1.6: Allure schématique du profil de vitesse d'un écoulement confiné entre deux plaques parallèles « infinies » distantes de  $h$ . L'extension latérale  $w$  du canal suivant  $(Oy)$  n'est pas représentée.

Considérons pour l'exemple le cas d'un écoulement laminaire et stationnaire entre deux plaques parallèles [26], de dimensions respectives  $L$  et  $w$  selon les axes  $(Ox)$  et  $(Oy)$ , et distantes de  $h$  selon la direction  $(Oz)$  (Fig. 1.6). Par souci de simplicité, nous supposons les conditions  $h \ll L$  et  $h \ll w$  satisfaites, afin de pouvoir considérer les plaques comme infinies en regard de la distance qui les sépare. Dans ce cadre

d'approximation, l'invariance du problème par translation selon  $x$  et  $y$  suggère de chercher le champ de vitesse sous la forme :

$$\vec{v} = v_x(z)\vec{u}_x + v_y(z)\vec{u}_y + v_z(z)\vec{u}_z. \quad (1.24)$$

Les conditions aux limites de non-glissement <sup>17</sup> imposées par la présence des plaques s'écrivent :

$$\vec{v} \left( z = \pm \frac{h}{2} \right) = \vec{0}. \quad (1.25)$$

Par ailleurs, l'incompressibilité de l'écoulement impose la condition :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = \frac{\partial v_x}{\partial x} + \frac{\partial v_y}{\partial y} + \frac{\partial v_z}{\partial z} = 0. \quad (1.26)$$

En injectant dans cette condition d'incompressibilité le profil de vitesse donné par l'équation 1.24, il vient directement :

$$\frac{\partial v_z}{\partial z} = 0. \quad (1.27)$$

La valeur constante de  $v_z$  est alors fixée par la condition aux bords donnée par l'équation 1.25, le champ de vitesse se simplifie donc comme :

$$\vec{v} = v_x(z)\vec{u}_x + v_y(z)\vec{u}_y. \quad (1.28)$$

Projetons à présent l'équation de Stokes selon la direction  $z$  :

$$\eta \Delta v_z = \frac{\partial p}{\partial z} = 0, \quad (1.29)$$

De fait, le champ de pression ne dépend que de  $x$  et  $y$ . En supposons que le gradient de pression généré soit uniquement porté par la direction  $(Ox)$ ,  $p = p(x)$ , et la projection de l'équation de Stokes selon la direction  $y$  s'écrit :

$$\eta \Delta v_y = \eta \frac{\partial^2 v_y}{\partial z^2} = \frac{\partial p}{\partial y} = 0. \quad (1.30)$$

Cette équation conduit, après intégration et utilisation des conditions aux limites, à l'absence de composante de vitesse selon  $(Oy)$  :  $v_y = 0$ . La projection de l'équation de Stokes selon la direction  $x$  s'écrit alors :

$$\eta \Delta v_x = \eta \frac{\partial^2 v_x}{\partial z^2} = \frac{\partial p}{\partial x}. \quad (1.31)$$

Le terme visqueux ne dépend que de  $z$ , alors que le gradient de pression ne dépend que de  $x$ . L'unique façon de satisfaire cette double condition est d'imposer que les

---

17. Si l'on se plaçait à des échelles nanométriques et considérait des surfaces hydrophobes, du glissement à la paroi pourrait apparaître, induisant l'existence d'une vitesse de glissement non nulle. Une hypothèse, émise par Pierre-Gilles de Gennes au début des années 2000, consiste à présupposer la nucléation de « nano »-bulles permettant de minimiser l'énergie de surface du système. De fait, le liquide n'est plus réellement en contact avec les murs du canal, ceci induisant du glissement à la paroi. Au vu des échelles de longueur considérées, ce n'est pas le cas dans les expériences que nous présentons ici.

deux membres de l'égalité soient égaux à une seule et même constante. Le profil de pression est donc affine en la variable  $x$ , et la vitesse  $v_x$  doit finalement vérifier l'équation différentielle :

$$\eta \frac{\partial^2 v_x}{\partial z^2} = -\frac{\Delta p}{L}, \quad (1.32)$$

avec  $\Delta p = p(x=0) - p(x=L) > 0$  le saut de pression constant moteur de l'écoulement. La double intégration de cette équation, eu égard aux conditions aux limites imposées par l'équation 1.25, fournit le champ de vitesse parabolique suivant :

$$\vec{v} = \frac{\Delta p}{2\eta L} \left( \frac{h^2}{4} - z^2 \right) \vec{u}_x. \quad (1.33)$$

Calculons le débit volumique  $q$  de cet écoulement à travers la section  $S=wh$  du canal :

$$q = \iint_S \vec{v} \cdot d\vec{S} = \int_{-\frac{w}{2}}^{\frac{w}{2}} \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} v_x(z) dy dz, \quad (1.34)$$

$$q = \frac{wh^3 \Delta p}{12\eta L}, \quad (1.35)$$

$$\Delta p = \frac{12\eta L}{wh^3} q = R_h q. \quad (1.36)$$

Ce résultat, connu sous la loi de Hagen-Poiseuille [27], établit finalement une relation simple de proportionnalité entre le saut de pression  $\Delta p$  et le débit  $q$  induit par ce saut de pression. Par analogie avec la loi d'Ohm, le facteur de proportionnalité entre ces deux quantités, noté  $R_h$ , est nommé résistance hydrodynamique du canal. Cette grandeur dépend uniquement des paramètres géométriques du canal considéré et de la viscosité du fluide en écoulement. Remarquons que cette propriété peut être étendue à un canal de géométrie quelconque ; en considérant l'exemple d'un écoulement dans un tuyau cylindrique de longueur  $L$  et de rayon  $R$ , il est possible d'exprimer la résistance hydrodynamique associée sous la forme :

$$R_h = \frac{8\eta L}{\pi R^4}. \quad (1.37)$$

Nous mettons finalement en parallèle les grandeurs impliquées dans cette analogie dans le tableau ci-dessous<sup>18</sup> :

moteur de l'écoulement	saut de potentiel $U$ (tension)	saut de pression $\Delta p$
débit induit	débit de charge $I$ (intensité)	débit volumique $q$
relation constitutive	loi d'Ohm : $U = R_{el} I$	loi de Poiseuille : $\Delta p = R_h q$
facteur	résistance électrique $R_{el}$	résistance hydrodynamique $R_h$

18. Prenons garde à ne pas pousser cette analogie trop loin. En particulier, la résistance électrique  $R_{el}$  d'un tronçon de conducteur cylindrique, de longueur  $L$  et de rayon  $r_c$ , s'exprime usuellement à l'aide de la résistivité  $\rho_{el}$  intrinsèque du matériau comme :

$$R_{el} = \frac{\rho_{el} L}{\pi r_c^2}. \quad (1.38)$$

Nous remarquons ainsi que le confinement, intervenant à la puissance  $1/r_c^2$ , joue un rôle moindre en comparaison avec l'expression de la résistance hydrodynamique, variant comme  $1/R^4$  en conduite cylindrique.

Cette analogie électro-hydraulique est extrêmement puissante, puisqu'elle permet en outre d'utiliser les résultats classiques des circuits électriques : loi des mailles, loi des nœuds, diviseurs de tension et de courant... Elle nous sera particulièrement utile dans la première partie du manuscrit.

## 2 Microfluidique digitale : génération contrôlée d'émulsions et/ou mousses monodisperses

La microfluidique est la science des écoulements monophasiques ou multiphasiques dans des microsystèmes [28, 29, 30, 26]. Le confinement géométrique imposé à des échelles petites, typiquement sub-millimétriques, confère à ce genre d'écoulement des propriétés particulières que nous avons commencé à esquisser dans la partie précédente, à savoir l'importance des effets de surface, ainsi qu'un contrôle précis des phénomènes de transport impliqués (écoulements, mélange, transferts thermiques<sup>19</sup>...). Cette discipline, en plein essor depuis le début des années 2000, propose des outils originaux visant à miniaturiser un laboratoire d'analyse entier à l'échelle d'une puce de quelques centimètres carrés de surface et quelques millimètres de hauteur ! L'un des grands atouts de cette miniaturisation réside dans la réduction drastique des volumes mis en jeu. Alors que des techniques classiques d'analyse nécessitent l'utilisation de pipettes pouvant prélever avec précision jusqu'à quelques microlitres, la réduction d'échelle en microfluidique permet d'atteindre des volumes typiques de quelques nanolitres à quelques picolitres, ceci rendant le procédé bien moins onéreux. Par ailleurs, la miniaturisation permet de garder des fréquences de production élevées de l'ordre du kHz, faisant de la microfluidique un candidat de choix pour la réalisation d'applications haut-débit. Par ailleurs, les tailles mises en jeu correspondant à certaines échelles biologiques particulières, un canal microfluidique incarne en ce sens un système modèle afin de mieux comprendre certains mécanismes biophysiques : colmatage des vaisseaux sanguins par des caillots dans le corps humain, formation de bulles d'air par cavitation dans les canaux d'écoulement de la sève dans les arbres [31, 32, 33] par exemple. Dans ce manuscrit, nous étudions le cas d'écoulements de deux phases immiscibles entre elles. Deux catégories peuvent alors être distinguées, selon que les fluides s'écoulent parallèlement<sup>20</sup> (*coflow*) ou constituent une émulsion d'objets dispersés (dans le cas de gouttes, ou une mousse s'il s'agit de bulles) dans une phase continue. Ce deuxième régime d'écoulement définit le domaine de la microfluidique digitale [36] : nous abordons dans la suite deux façons de générer de façon contrôlée un train périodique d'objets monodisperses, constituant l'opération de base en microfluidique digitale.

### 2.1 Géométrie en T

Un premier mode de formation consiste à utiliser une jonction en T [37] (Fig. 1.7). Pour ce mode, la taille des gouttes résulte d'un équilibre classique entre la contrainte

---

19. À ces échelles, les rapports surface/volume importants assurent des transferts thermiques rapides.

20. Cette configuration a notamment été exploitée dans l'élaboration d'un viscosimètre sur puce afin de caractériser la rhéologie de fluides simples et complexes [34], ou d'étudier des phénomènes d'extraction de jets liquides [35].

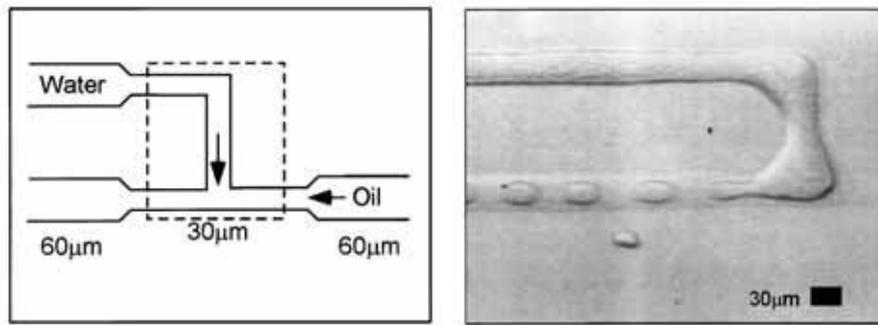


FIGURE 1.7: Formation d'un train monodisperse de gouttes d'eau dans de l'huile. Figure tirée de [37].

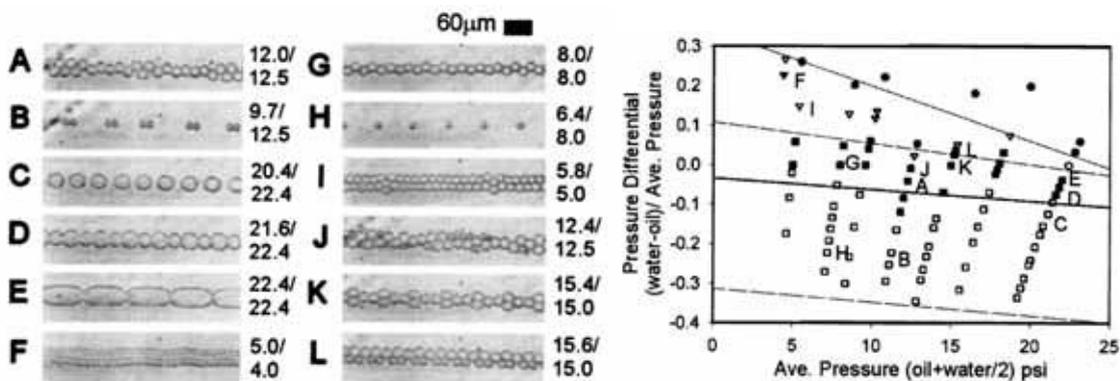


FIGURE 1.8: Diagramme de phase répertoriant les divers régimes d'écoulement observés. Figure tirée de [37].

visqueuse exercée par la phase continue sur la phase dispersée, et la pression capillaire. Ces deux termes s'expriment respectivement comme  $\eta\dot{\epsilon}$  et  $\gamma/r$ , le rayon  $r$  des gouttes varie comme  $r \sim \gamma/\eta\dot{\epsilon}$ , avec  $\dot{\epsilon}$  le taux de cisaillement, ce dernier étant de l'ordre de  $2v/y_0$ , avec  $v$  une vitesse typique de l'écoulement et  $y_0$  la demi-largeur du canal. Cette géométrie exhibe par ailleurs une grande variété de régimes d'écoulements selon les valeurs des surpressions (et donc des débits) appliquées à chacun des fluides. La figure 1.8 illustre en effet la zoologie des comportements pouvant être observés : écoulement en ruban (image F), en collier de perles (image G)... Ces modes plus complexes s'expliquent notamment par le rôle supplémentaire du confinement exercé par le canal. Ce mode de formation comporte donc certaines limitations pour la conception d'une assemblée monodisperse de gouttelettes, puisque l'apparition d'autres régimes plus complexes aux grandes pressions d'eau restreint inexorablement la gamme de taille accessible.

D'autres auteurs utilisent cette géométrie dans le but de produire une assemblée monodisperse de microsphères de polymères dans une configuration de mouillage partiel [38] (Fig. 1.9), ou encore afin de générer un train de gouttes aqueuses alternées entraînées par un perfluorocarbonate [39] (Fig. 1.10), dans le but de suivre une réaction chimique ou un processus de cristallisation de protéine par exemple [40].

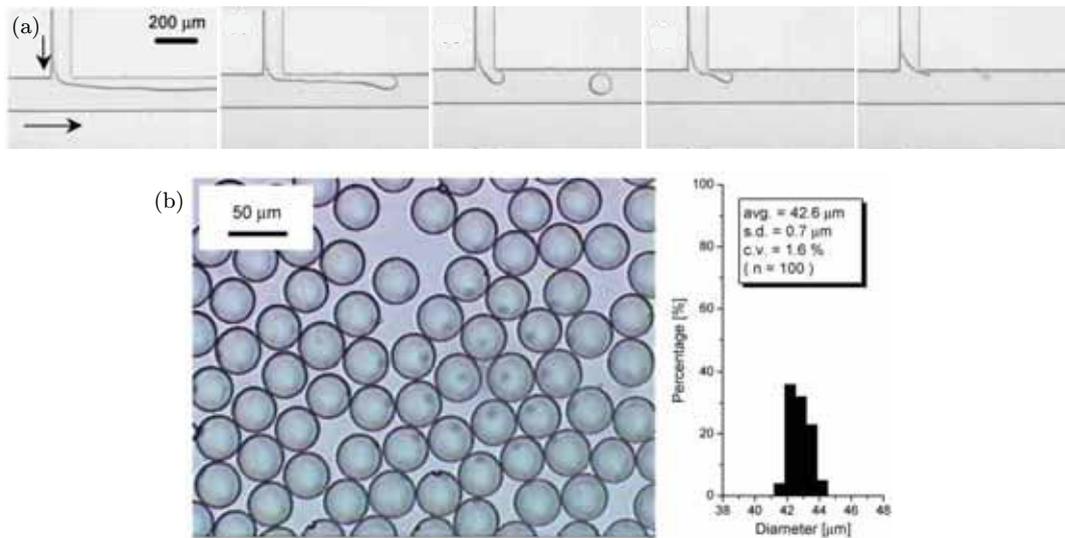


FIGURE 1.9: (a) Formation de gouttes de monomères à une jonction en T, dont la taille dépend du nombre capillaire. (b) Après polymérisation, une assemblée de billes de polymères est obtenue avec une excellente monodispersité. Figure adaptée de [38].

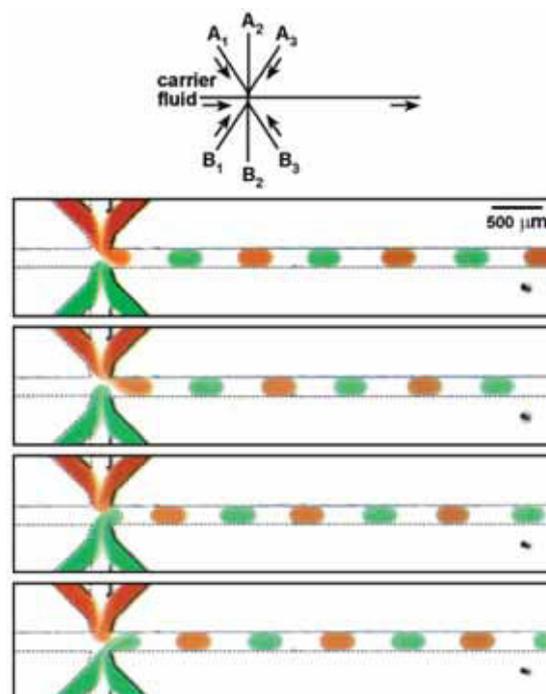


FIGURE 1.10: Formation d'un train de gouttes aqueuses alternées, transportées dans du perfluorocarbure. Figure tirée de [39].

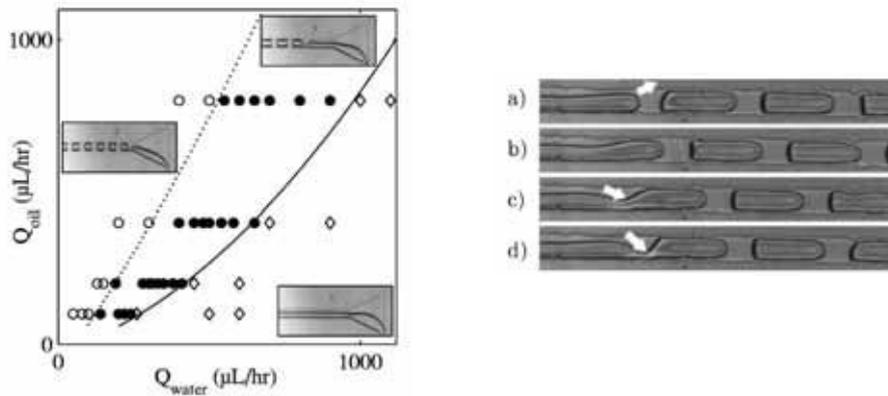


FIGURE 1.11: À gauche : diagramme comportemental dans une jonction en T « élargie ». À droite : illustration du modèle de blocage-pincement. Le jet d'eau s'étend sur la largeur du canal jusqu'à « bloquer » le passage de l'huile (images a et b) qui doit, malgré tout, continuer à s'écouler à débit imposé. L'huile vient donc « pincer » le jet d'eau (images c et d) jusqu'au moment où une goutte d'eau se forme. Figure tirée de [41].

Dans le cadre d'une géométrie légèrement différente (voir Fig. 1.11), un autre travail présente la possibilité d'observer des transitions entre différents régimes hydrodynamiques en fonction des débits appliqués [41] : formation de gouttes à la jonction, dans le canal, ou écoulement stratifié de deux jets parallèles (*coflow*). Dans les régimes de formation de gouttes, ces dernières sont suffisamment larges pour toucher les bords du canal. Par le biais d'un mécanisme simple de blocage-pincement (nous aurons l'occasion d'y revenir dans les chapitres suivants) résultant de la conservation des débits, les auteurs sont capables de déterminer un critère de transition entre les régimes de goutte et de jet. Ce mécanisme est repris par d'autres auteurs dans une étude traitant de formation de gouttes et bulles touchant les bords du canal dans une jonction en T classique [42] (Fig. 1.12). Comme les objets dispersés font office de « bouchon » à l'écoulement de la phase continue, l'utilisation du modèle de blocage-pincement dans cette configuration permet d'obtenir une prédiction simple de la taille des objets créés en fonction des débits appliqués. Plus récemment, d'autres travaux expérimentaux [43] et théoriques [44] raffinent ce modèle simpliste en proposant pour la formation de gouttes à une jonction en T un scénario en trois étapes, et non deux (Fig. 1.13). Les mêmes auteurs prolongent cette étude en prenant en compte l'influence de la dynamique des surfactants sur ce processus de formation [45].

## 2.2 Géométrie de pincement hydrodynamique

La géométrie de pincement hydrodynamique, ou *flow focusing*, est constituée de trois canaux, le canal central étant empli de phase dispersée, les canaux périphériques situés de part et d'autre du canal central étant parcourus par la phase continue (voir une telle géométrie Fig. 1.14). Lorsque ces trois canaux se rejoignent, la phase dispersée forme un jet focalisé par l'écoulement de la phase continue. Ce jet peut

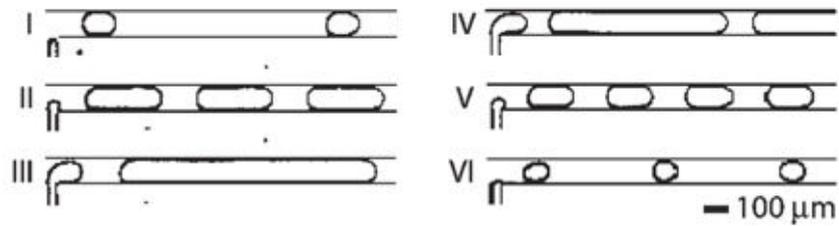


FIGURE 1.12: Lorsque les gouttes d'eau formées « touchent » les bords du canal, leur taille croît avec le débit d'eau à débit d'huile fixé (images I, II et III), et décroît avec le débit d'huile à débit d'eau fixé (images IV, V et VI). Figure tirée de [42].

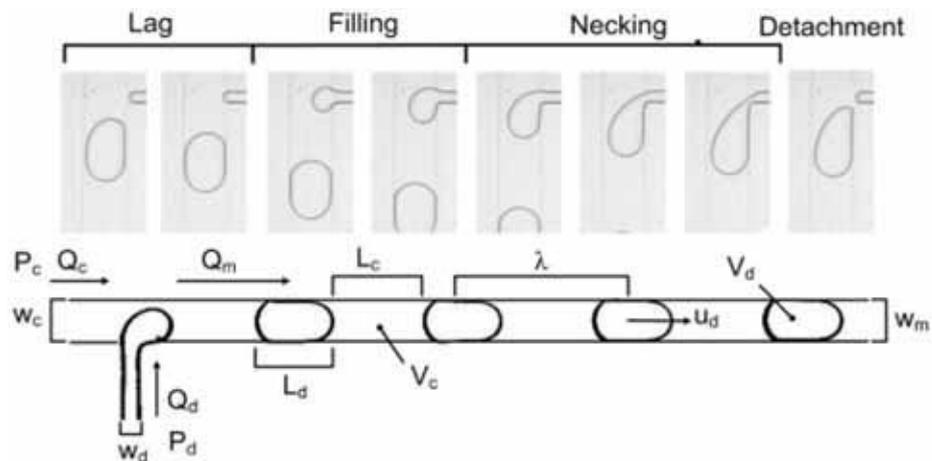


FIGURE 1.13: Décomposition du mécanisme de formation de gouttes à une jonction en T en trois étapes. Après un premier temps de latence (*lag*), la goutte voit son volume gonfler (*filling*). Cette dernière subit ensuite un processus de pincement (*necking*) jusqu'à son détachement ultime (*detachment*). Figure tirée de [44].

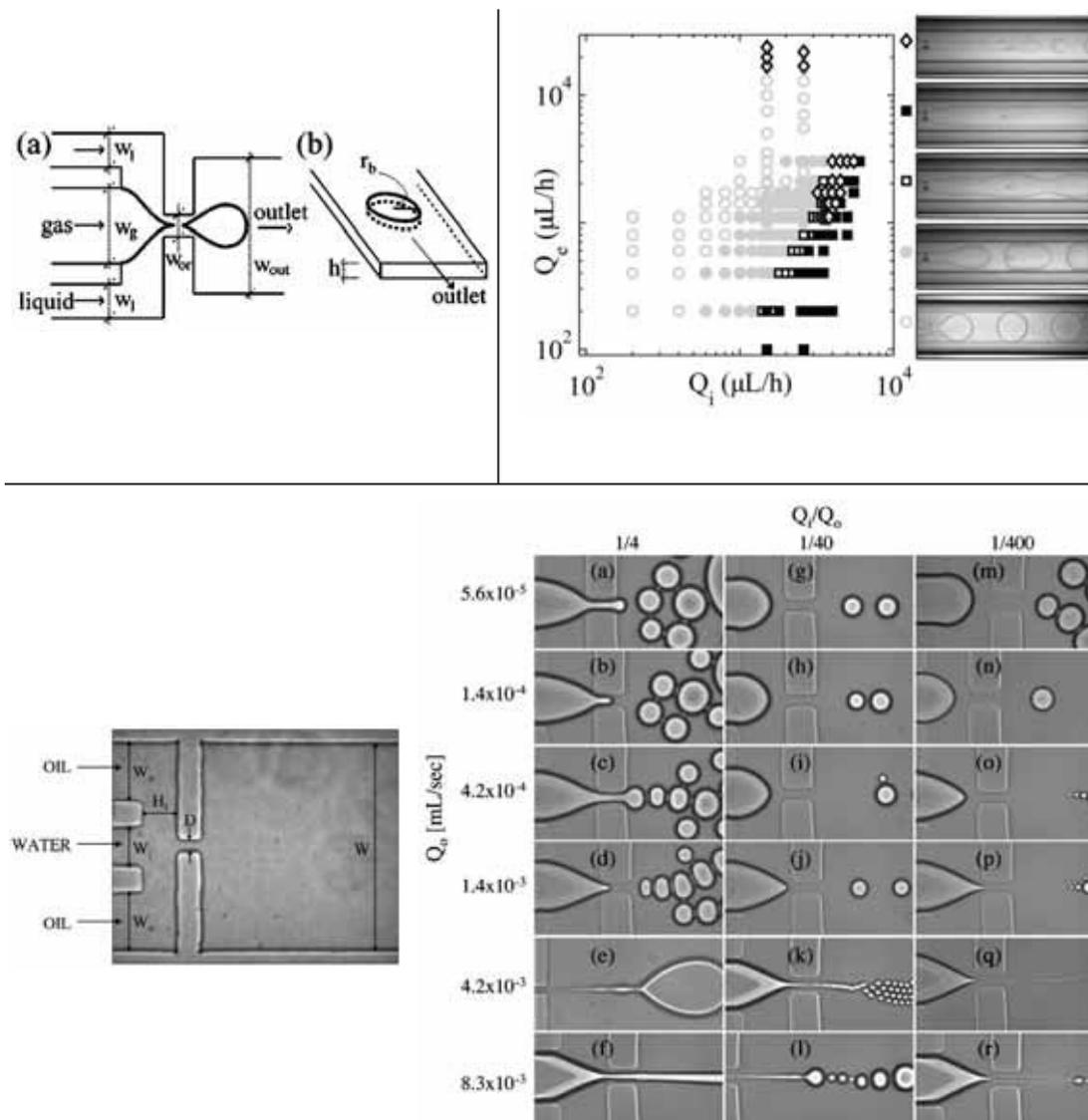


FIGURE 1.14: Le procédé de *flow focusing* mis en jeu dans la formation de bulles monodisperses (en haut à gauche, figure tirée de [46]) ou de gouttes d'eau dans l'huile, dans une géométrie cylindrique (en haut à droite, figure tirée de [47]) ou rectangulaire (en bas, figure tirée de [48]).

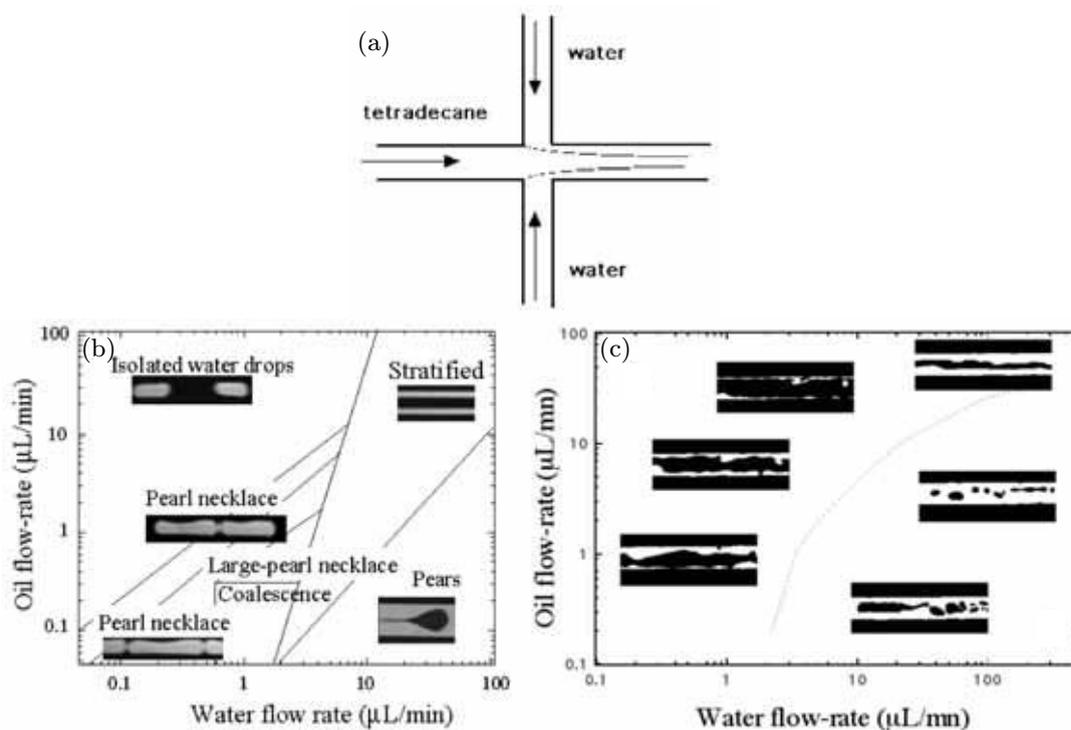


FIGURE 1.15: Comparaison des diagrammes d'écoulement obtenus en géométrie de pincement hydrodynamique (a), en présence (b) ou en l'absence (c) de surfactants. Figure tirée de [49].

éventuellement s'étendre sur une certaine distance avant de subir des perturbations conduisant à sa déstabilisation, et donnant par suite naissance à un train d'objets dispersés. Ce mode de formation *flow focusing* a été employé pour la production de gouttelettes d'eau dans l'huile [48] ou de bulles monodisperses [46] (Fig. 1.14).

Un autre travail [49], réalisé dans une géométrie similaire, démontre l'importance des propriétés de mouillage sur les motifs obtenus. Ces derniers apparaissent ordonnés lorsque la phase continue mouille complètement les murs du canal (Fig. 1.15 (b)). En situation de mouillage partiel, les motifs formés par la phase dispersés sont désordonnés et adhèrent aux parois (Fig. 1.15 (c)).

Dans une géométrie cylindrique, d'autres auteurs établissent des diagrammes de comportement expérimentaux en fonction des débits appliqués et présentent une analyse théorique de stabilité linéaire permettant de séparer les régimes de gouttes et de jet (Fig. 1.14), stabilisé par l'effet du confinement (*via* l'augmentation du débit de la phase dispersée) ou l'effet de la vitesse (*via* l'augmentation du débit de la phase porteuse) [47].

Dans le cas général, la stabilité du jet ne peut pas être décrite par les mécanismes de l'instabilité classique de Rayleigh-Plateau<sup>21</sup>, notamment à cause des effets de géo-

21. Lord John William Strutt Rayleigh (1842-1919), physicien britannique et Joseph Antoine Ferdinand Plateau (1801-1883), mathématicien et physicien belge.

métrie du canal et du degré de confinement, du mouillage des parois, de l'hydrodynamique dans chacune des phases, assortie de l'éventuelle présence de surfactants. Tous ces effets justifient d'ailleurs la richesse et la diversité des comportements observés en *flow focusing* microfluidique. Pour pallier cette difficulté, certains travaux proposent des simulations numériques et modèles analytiques intéressants en vue d'acquiescer une meilleure appréhension du mécanisme de pincement hydrodynamique en fonction des nombreux paramètres du système [47, 50, 51]. Afin de diminuer l'influence indésirable des effets de confinement et de mouillage, d'autres auteurs ont proposé un système de pincement hydrodynamique tridimensionnel [52]. L'utilisation de silicone permet en outre d'opérer avec des solvants organiques, et de travailler dans des conditions de pression et de température relativement larges. Enfin, mentionnons que des travaux antérieurs réalisés dans le département ont permis de montrer que ce procédé de formation pouvait être étendu à une échelle supérieure dans le contexte de la millifluidique tubulaire [53], présentant certains avantages : débits plus élevés, « versatilité » des motifs et des circuits, faible coût de production, bon contrôle de l'état de surface (mouillabilité, rugosité).

En résumé, pour produire une assemblée d'objets dispersés dans une phase continue, il est donc souvent nécessaire de :

- sélectionner la géométrie la plus favorable (jonction en T ou *flow focusing*) et varier le niveau de confinement,
- chercher les bonnes conditions hydrodynamiques (débits de phase porteuse et phase dispersée) pour déclencher le mécanisme de pincement,
- travailler sur la chimie de surface (fixation de groupements silane, traitement plasma) pour modifier les conditions de mouillage et faire en sorte que les parois du canal soient mouillantes vis-à-vis de la phase continue,
- adapter le rapport de viscosité entre les deux phases, ainsi que la tension de surface par ajout de molécules tensioactives.

### 3 Opérations élémentaires en microfluidique digitale

Une fois qu'un train périodique monodisperse d'objets (gouttes, bulles) de vitesse constante est créé au sein d'une phase continue, il est possible de manipuler ces objets de manière individuelle en réalisant et en combinant des opérations élémentaires<sup>22</sup> sur ceux-ci. En référence à la manière d'assembler des briques dans un jeu de Lego, il est parfois nécessaire de trier, fractionner, fusionner, diluer, concentrer, déformer, stocker ces objets selon l'application désirée (Fig. 1.16). Nous présentons ci-dessous les spécificités de l'émulsification microfluidique de type *bottom-up*, puis développons deux applications particulières de la microfluidique digitale mettant en jeu certaines de ces opérations.

---

22. Des séquences vidéo illustrant quelques opérations élémentaires peuvent être consultées à profit sur le site internet du groupe *Droplets, Membranes and Interfaces* de Göttingen, dirigé par Jean-Christophe Baret.

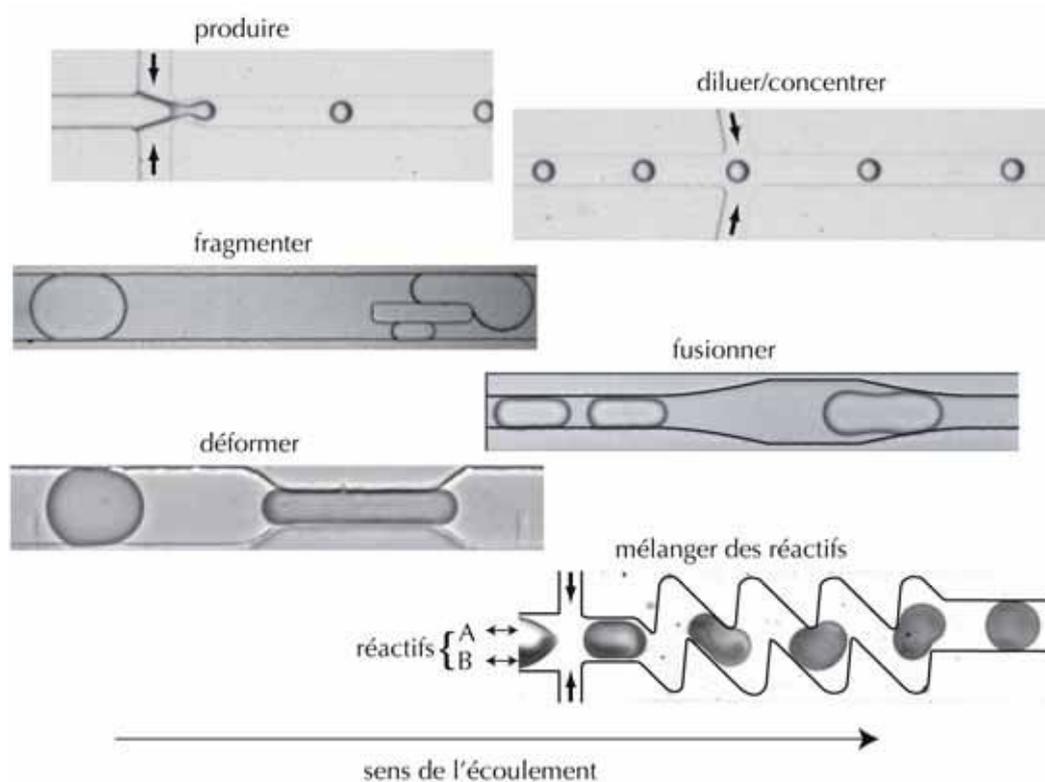


FIGURE 1.16: Quelques opérations élémentaires en microfluidique digitale. La taille des objets dispersés (gouttes d'une phase aqueuse dans une huile) est de l'ordre de  $10\text{--}100\ \mu\text{m}$ . Les flèches indiquent les canaux d'injection de l'huile dans les images « produire », « diluer/concentrer » et « mélanger des réactifs ». Figure tirée de [54].

### 3.1 Émulsification en microfluidique : synthèse *bottom-up*

Les émulsions sont des matériaux métastables généralement constitués de deux fluides immiscibles, l'un étant finement dispersé dans l'autre, en présence d'agents stabilisants comme par exemple des molécules de tensioactifs, des polymères, ou des particules solides. Ces dispersions liquides sont omniprésentes dans la vie quotidienne et sont utilisées dans l'industrie cosmétique ou alimentaire. Toutefois, la polydispersité intrinsèque des émulsions réalisés en volume, inhérente aux méthodes classiques d'émulsification de type *top-down*, et les phénomènes de ségrégation induits par la gravité rendent les processus de déstabilisation très complexes et non reproductibles.

L'émulsification microfluidique de type *bottom-up* [55, 56, 57, 58], ou goutte à goutte, permet de contourner ces difficultés et d'étudier la physique des émulsions sous un angle nouveau. Ainsi, les opérations élémentaires présentées sur la figure 1.16 peuvent être employées pour la préparation d'émulsions complexes, contrôlées en termes de taille, forme, composition et structure [59, 60]. Cette technique a rendu possible la formulation de nouveaux matériaux originaux, citons quelques exemples de synthèse :

- particules solides de formes diverses (sphères, discoïdes, bâtonnets, ellipsoïdes...)

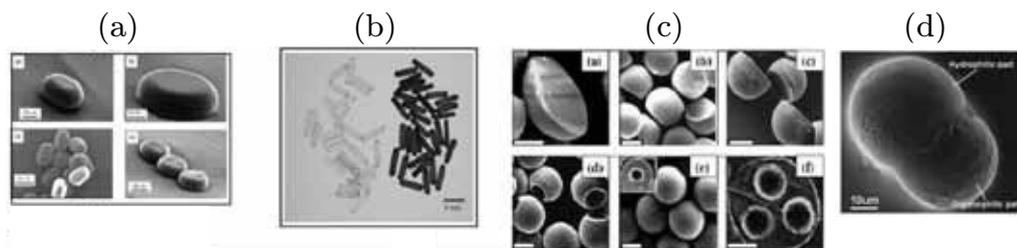


FIGURE 1.17: Synthèse de nouveaux matériaux originaux et complexes : *plugs* et disques (a), bâtonnets (b), structures cœur-coquille (c), particules de Janus (d) comportant un pôle hydrophile et un pôle lipophile. Les images sont successivement tirées de [62], [64], [61] et [69].

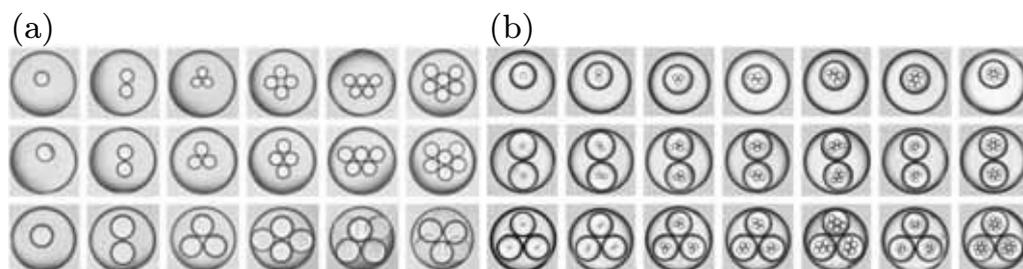


FIGURE 1.18: Production d'émulsions multiples contrôlées, doubles (a) et triples (b), par encapsulation. Figure tirée de [71].

obtenues par polymérisation UV des objets dispersés [59, 60, 61, 62, 63, 64] (Fig. 1.17) et par procédé sol-gel [65], pouvant par exemple conduire à la fabrication de micro-résonateurs 2D et 3D dans le domaine de la photonique intégrée [66],

- microcapsules à « coeur » liquide et « coquille » solide (structure *core shell*) [61, 67], ouvrant à la voie à de nouvelles techniques de dépistage de virus [67],
- particules de Janus<sup>23</sup> comportant une anisotropie ou une asymétrie dans leur structure [38, 68, 69],
- cristaux liquides composés de colloïdes optiquement anisotropes, de forme contrôlée [70],
- émulsions multiples [60, 67, 71, 72, 73] (Fig. 1.18), par procédé d'encapsulation à une jonction en T ou en *flow focusing*, en trains simples ou alternés. Ces techniques d'encapsulation comportent de nombreuses applications (cosmétique, alimentation allégée, alicaments, effets retard). La dynamique d'encapsulation au sein des émulsions doubles en microfluidique et millifluidique est actuellement à l'étude dans le département et fait l'objet du travail de thèse d'Alexandre Schmit, doctorant co-encadré par Pascal Panizza et Laurent Courbin depuis octobre 2012.

23. Ces particules font référence au dieu romain Janus, possédant une seule tête mais deux visages opposés.

## 3.2 Deux exemples d'applications haut-débit

### 3.2.1 Concevoir un tensiomètre sur puce

Un dispositif microfluidique est aujourd'hui capable de mesurer efficacement, rapidement, et de façon économique par la miniaturisation des volumes, certaines observables physiques de façon très sensible, tel un viscosimètre [34], déjà évoqué auparavant, un manomètre différentiel résolu en temps [74], ou un tensiomètre [75, 76] par exemple. Développons de manière plus approfondie le principe de mesure d'un tensiomètre sur puce.

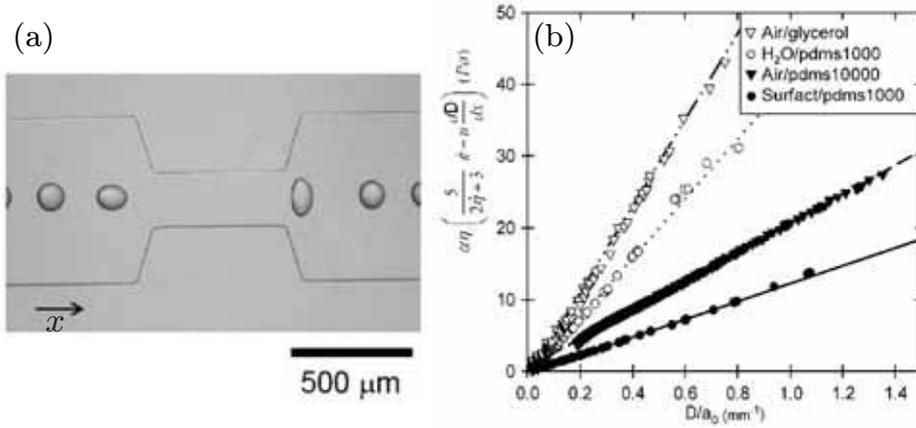


FIGURE 1.19: (a) La constriction du canal induit un écoulement élongationnel, responsable de la déformation momentanée des gouttes. Figure adaptée de [76]. (b) L'analyse du taux de déformation permet de remonter à la tension de surface. Figure tirée de [75].

La figure 1.19 (a) représente la géométrie utilisée, caractérisée par la présence d'une constriction. Celle-ci est responsable d'un écoulement élongationnel dans la direction perpendiculaire à la direction principale du canal, conduisant à déformer momentanément la goutte. Celle-ci relaxe ensuite vers sa forme sphérique initiale, l'analyse de cette relaxation permettant de remonter à la connaissance de la tension de surface  $\gamma$  entre les deux phases. De façon plus précise, le taux de déformation  $D$  de la goutte est classiquement défini comme [77] :

$$D = \frac{a - b}{a + b}, \quad (1.39)$$

avec  $a$  et  $b$  les rayons principaux de la goutte dans le plan horizontal. Pour une goutte sphérique, de rayon noté  $a_0$ , il vient donc  $D=0$ . En présence d'un taux d'élongation  $\dot{\epsilon} = \partial v / \partial x$  non nul, exprimant la diminution locale de la vitesse  $v$  avec la position  $x$  au sein de l'élargissement du canal, la variation du taux de déformation  $D$  peut se mettre sous la forme :

$$\frac{DD}{Dt} = \frac{D_{steady} - D}{\tau}, \quad (1.40)$$

avec :

$$\tau = \frac{\alpha\eta c a_0}{\gamma} \quad \text{et} \quad D_{steady} = \beta\tau\dot{\epsilon}, \quad (1.41)$$

en notant  $\eta_c$  la viscosité de la phase continue, et  $\alpha$  et  $\beta$  des paramètres sans dimension, fonctions du contraste de viscosité entre les phases dispersée et continue. La stationnarité de l'écoulement permet de simplifier la dérivée particulaire comme  $DD/Dt = v\partial D/\partial x$ , il vient alors :

$$\alpha\eta_c \left( \beta\dot{\varepsilon} - v\frac{\partial D}{\partial x} \right) = \gamma\frac{D}{a_0}. \quad (1.42)$$

Les résultats expérimentaux de la figure 1.19 (b) sont en excellent accord avec cette dernière relation : la tension de surface s'obtient alors directement par la mesure de la pente des droites d'ajustement tracés.

### 3.2.2 Suivre une cinétique de réaction chimique

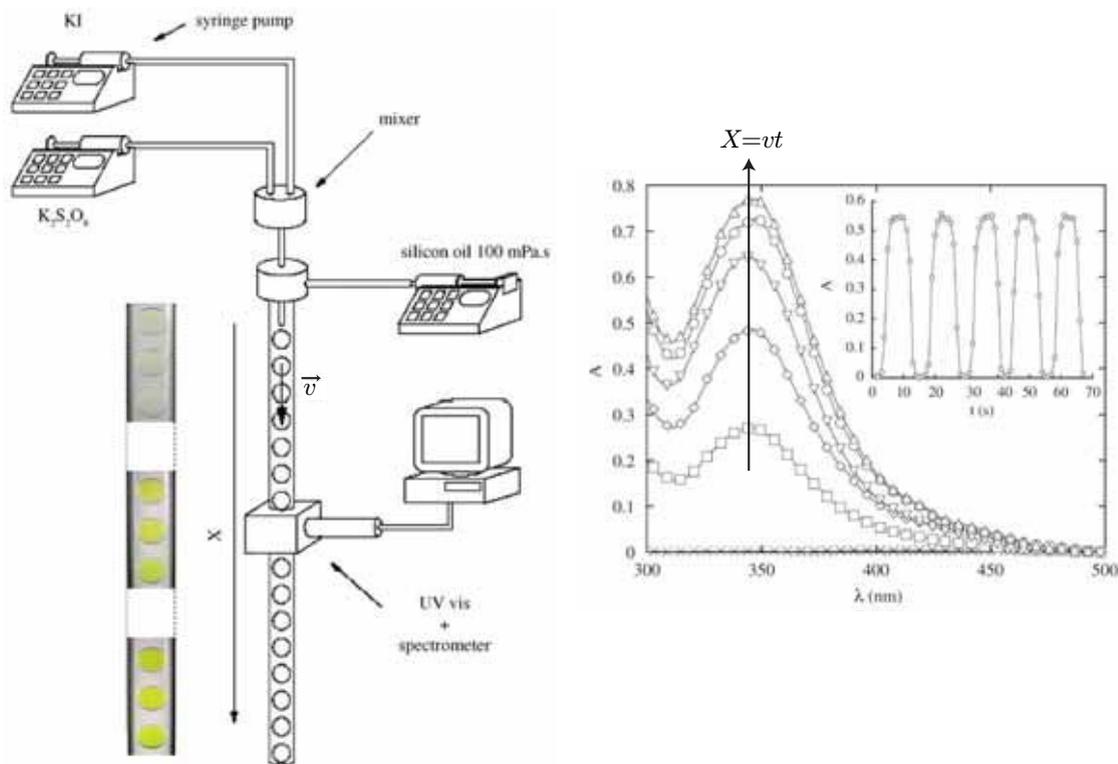


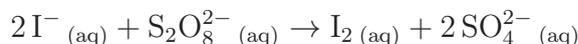
FIGURE 1.20: À gauche : montage expérimental permettant de suivre l'évolution d'une réaction chimique par spectrophotométrie, chaque gouttelette faisant office de micro-tube à essai. À droite : pour une longueur d'onde donnée, l'évolution de l'absorbance avec  $X$ , ou de façon équivalente  $t$ , permet de suivre la cinétique de la réaction entre les ions iodure et les ions peroxydisulfate. Figure adaptée de [78].

Un intérêt majeur de la microfluidique digitale réside dans l'équivalence temps-espace [79] : du fait de la conservation des débits, les objets monodispersés se déplacent à une vitesse  $v$  constante dans le temps. Il existe donc une relation directe entre le temps de résidence  $t$  de l'objet dans le canal et sa position  $X$  :  $X = vt$ . De fait, comparer l'aspect des objets en différentes positions du canal à un instant donné se ramène à étudier l'évolution temporelle d'un objet unique, ce concept se

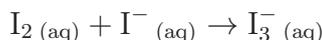
prêtant particulièrement bien à des applications en chimie [80, 53, 78] : suivis de réactions, mesures de champs de concentration, estimations de cinétiques chimiques (Fig. 1.20). L'avantage de cette méthode par rapport à l'utilisation de tubes à essai classiques est double.

- Comme déjà discuté précédemment, le volume d'un tube à essai est tout au moins de l'ordre du microlitre, celui d'un microréacteur en goutte est de l'ordre du nanolitre en microfluidique [80]. Le procédé apparaît donc nettement moins coûteux en réactifs.
- Un tube à essai ne permet généralement de sonder qu'un échantillon à la fois. À l'inverse, les microréacteurs sont formés tous à la fois sans interagir entre eux ou se disperser, du fait de l'immiscibilité des deux phases mises en jeu.

Nous en proposons ici un exemple détaillé [53] (Fig. 1.20), par l'analyse de la réaction académique d'oxydo-réduction entre les ions iodure  $I^-$  et les ions peroxodisulfate  $S_2O_8^{2-}$  :



Cette réaction, conduisant à la formation de diiode  $I_2$  et d'ions sulfate  $SO_4^{2-}$ , possède une cinétique lente (de quelques minutes à quelques dizaines de minutes), elle est donc adaptée aux échelles de temps de la millifluidique tubulaire, pour laquelle le temps de résidence d'une goutte est considérablement plus grand qu'en microfluidique<sup>24</sup>. Le diiode formé réagit ensuite rapidement avec les ions iodure, réactif en excès dans la solution, selon la réaction de complexation suivante :



Les ions triiodure  $I_3^-$  sont à l'origine de la couleur jaune de la solution. Ainsi, suivre l'évolution de l'absorbance au cours du temps permet de remonter à des informations portant sur la cinétique de la réaction d'oxydo-réduction entre les ions iodure et les ions peroxodisulfate. La vitesse  $V$  de cette dernière peut s'écrire, d'après la loi de Van't Hoff<sup>25</sup> :

$$V = k_0[I^-]^2[S_2O_8^{2-}] = -\frac{d[S_2O_8^{2-}]}{dt}. \quad (1.43)$$

Les ions iodure étant en excès par rapport aux ions peroxodisulfate, nous pouvons poser  $[I^-] \simeq c_0$ , où  $c_0$  ne dépend pas du temps, et nous notons la constante apparente de la réaction  $k = k_0c_0^2$  dans la suite. L'intégration de l'équation différentielle 1.43 donne donc :

$$[S_2O_8^{2-}](t) = c_1 \exp(-kt), \quad (1.44)$$

avec la condition initiale  $[S_2O_8^{2-}](t = 0) = c_1$ . En revenant à la concentration en complexe  $[I_3^-]$ , la stœchiométrie des deux réactions permet d'écrire :

$$\frac{d[I_3^-]}{dt} = -\frac{d[S_2O_8^{2-}]}{dt} = kc_1 \exp(-kt), \quad (1.45)$$

---

<sup>24</sup>. À vitesse identique, on pourrait penser qu'il suffit de rallonger les canaux microfluidiques pour augmenter le temps de résidence. Cependant, à débit fixé, l'augmentation de longueur entraîne l'augmentation de la perte de charge à appliquer, pouvant à l'extrême provoquer des fuites au niveau des entrées des fluides.

<sup>25</sup>. La réaction étant une réaction élémentaire, la loi de Van't Hoff implique que les ordres partiels intervenant comme exposants dans la loi de vitesse sont directement égaux aux coefficients stœchiométriques pour chacun des réactifs.

$$[I_3^-](t) = c_\infty(1 - \exp(-kt)). \quad (1.46)$$

en ayant imposé, par conservation de la quantité de matière,  $c_\infty = [I_3^-](t \rightarrow \infty) = c_1$  : le réactif limitant  $S_2O_8^{2-}$  a été entièrement consommé pour former des ions  $I_3^-$  et des ions sulfate. Tant que la concentration en ions triiodure n'est pas trop grande, la loi de Beer-Lambert permet de relier de façon linéaire  $[I_3^-]$  et l'absorbance  $A$ , d'où :

$$A(t) = A_\infty(1 - \exp(-kt)). \quad (1.47)$$

La variation temporelle de l'absorbance, analogue à l'évolution de la tension d'un condensateur en charge, est très bien vérifiée expérimentalement.

## 4 Une opération élémentaire d'intérêt : la fragmentation

### 4.1 État de l'art

Le procédé de fragmentation dans un système de deux fluides immiscibles est omniprésent<sup>26</sup>, aussi bien dans la nature (formation d'embruns) que dans l'industrie (divers procédés d'impression), et jusque dans nos vies quotidiennes dans de nombreuses publicités, mais aussi en préparant par exemple une vinaigrette par émulsification. Ce processus s'accompagne nécessairement d'une déformation de l'interface entre les deux fluides et d'une réduction des dimensions, corrélée à une création d'aire interfaciale. De fait, fragmenter nécessite un apport d'énergie afin de contre-carrer les effets de tension superficielle, particulièrement importants aux échelles de taille typiques de la microfluidique. Nous décrivons dans la suite deux moyens utilisés dans la littérature pour y arriver : la fragmentation par voie active, passant par l'application d'un champ extérieur de la part de l'opérateur, et la fragmentation par voie passive, exploitant seulement les propriétés de l'écoulement induites par la géométrie du canal.

#### 4.1.1 Voie active

Une première méthode consiste à appliquer un champ électrique extérieur  $\vec{E}$  afin de forcer la fragmentation<sup>27</sup> [82]. La figure 1.21 montre un train monodisperse de gouttes non chargées arrivant à une jonction en T. L'application d'un champ électrique entre deux électrodes situées de part et d'autre de l'embranchement de la jonction a pour effet de polariser la goutte, et donc d'établir un gradient de distribution volumique de charge dans la goutte. Pour simplifier, tout se passe comme si l'hémisphère droit portait une charge  $+q$  et l'hémisphère gauche une charge  $-q$ , afin de respecter la neutralité de la charge : la goutte est alors l'analogue d'un condensateur en électricité, initialement déchargé en amont de la jonction, puis chargé à l'embranchement de la jonction. Or, une charge dans un champ électrique est soumise

---

26. Pour plus de détails, cet aspect est particulièrement bien développé en incipit de la thèse d'Henri Lhuissier [81].

27. Notons d'ailleurs que l'application d'un champ électrique peut également permettre de forcer la coalescence de gouttes [82].

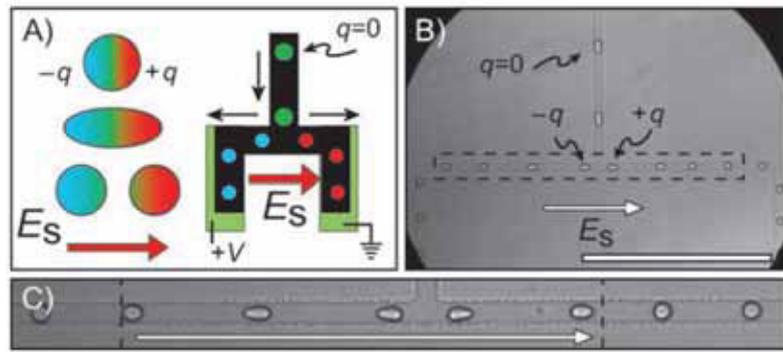


FIGURE 1.21: Illustration de la fragmentation active de gouttelettes par l'application d'un champ électrique extérieur. Figure tirée de [82].

à la force de Lorentz  $\vec{F} = q\vec{E}$ . Comme la goutte se comporte comme un condensateur, la charge  $q$  est proportionnelle à la norme  $|\vec{E}|$  du champ électrique appliqué, et la force varie donc comme  $|\vec{F}| \propto \vec{E}^2$ . Cette force est capable de déformer la goutte et étirer les deux hémisphères dont les charges sont de signes opposés, dans des conditions où les simples effets hydrodynamiques de l'écoulement ne le permettraient pas (voir paragraphe suivant). Si le champ appliqué est suffisamment intense, il est alors possible de les séparer complètement, conduisant à la fragmentation de la goutte en deux gouttelettes chargées. Bien que cette méthode soit parfaitement contrôlée, celle-ci nécessite de créer des différences de potentiel  $\Delta V$  très fortes sur de très petites distances  $w$ , soit des champs électriques très intenses. En prenant typiquement  $\Delta V \simeq 200 \text{ kV}$  et  $w \simeq 500 \text{ }\mu\text{m}$ , nous obtenons  $|\vec{E}| \sim \Delta V/w \simeq 4 \text{ kV}\cdot\text{cm}^{-1}$  ! Ceci ne s'avère pas très pratique pour la réalisation de systèmes facilement transportables. Par ailleurs, d'autres difficultés proviennent de la forte sensibilité aux propriétés physico-chimiques (pH), ainsi que de la qualité et des propriétés des murs du canal.

Une seconde méthode par voie active repose sur l'application d'un champ thermique [83] (Fig. 1.22). Reconsidérons la géométrie précédente constituée d'une jonction en T symétrique. En l'absence de gradient thermique, les gouttes sont assez rapides pour se fragmenter de façon passive (nous en discutons plus longuement dans la partie suivante), et la parfaite symétrie entre les deux « bras » de la boucle engendre un volume identique pour les deux gouttelettes créées. La présence d'une différence de température entre les deux bras engendre, par effet Marangoni, un gradient de tension de surface sur le pourtour de la goutte, et donc une force supplémentaire capable éventuellement de dissymétriser les volumes des gouttes filles. La tension de surface décroissant avec la température, les effets capillaires s'opposant à la fragmentation sont moindres du côté chaud de la boucle, et la goutte fille créée y est donc plus grande.

Enfin, mentionnons qu'il est également possible de déformer des interfaces fluides de façon active en exploitant l'action opto-capillaire d'un faisceau laser [84], ou encore par l'utilisation d'un champ acoustique [85].

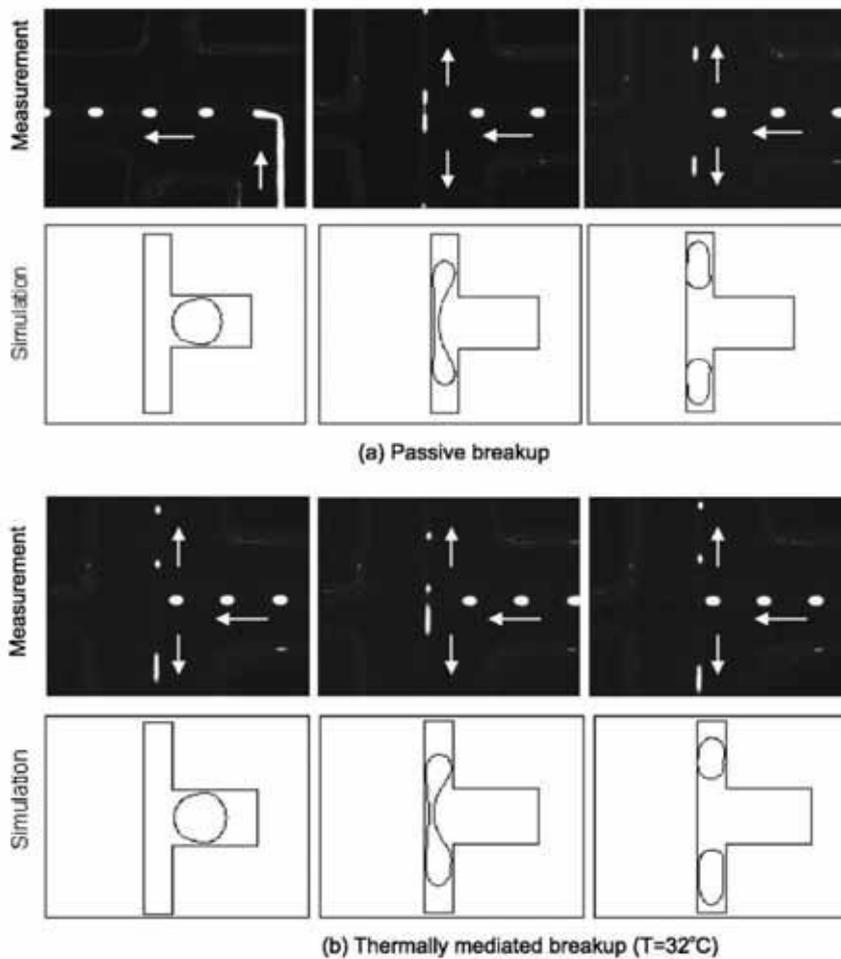


FIGURE 1.22: Illustration de la brisure de symétrie engendrée par l'effet Marangoni, créé par gradient thermique, sur la fragmentation de gouttes à une jonction en T symétrique. Figure adaptée de [83].

### 4.1.2 Voie passive

D'autres études ont démontré la possibilité de fragmenter des gouttes uniquement par des effets de géométrie du micro-canal. Un travail pionnier [18] expose deux modes de fragmentation passive possibles que nous décrivons ci-dessous.

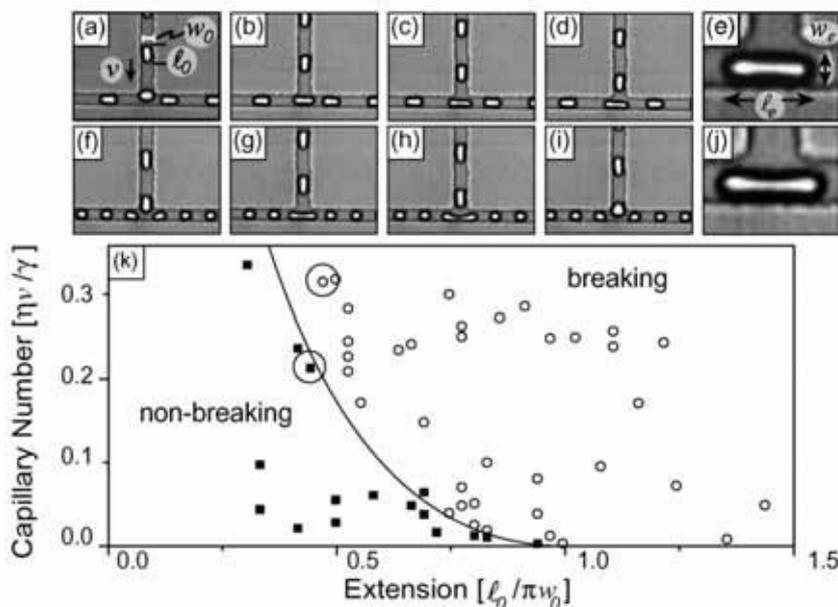


FIGURE 1.23: Fragmentation passive à une jonction en T. Si les valeurs prises par son élongation maximale et le nombre capillaire sont suffisamment grandes, la goutte se fragmente à l'embranchement de la jonction en T. Figure tirée de [18].

**Fragmentation sur une jonction** Le premier mode consiste à faire arriver les gouttes à l'embranchement d'une jonction. Nous pouvons voir sur la figure 1.23 que ce processus a soumis à certaines conditions portant sur les différents paramètres du système. Le processus de fragmentation résulte du compromis entre deux mécanismes antagonistes : d'un côté, le cisaillement visqueux imposé par la géométrie de l'écoulement a tendance à favoriser l'étirement de la goutte. D'un autre côté, les effets capillaires ont tendance à s'opposer à la déformation de l'interface de la goutte. Le nombre adimensionné pertinent de ce problème est naturellement le nombre capillaire  $\mathcal{C} = \eta v / \gamma$  comparant les deux effets mis en compétition, en notant respectivement  $\eta$ ,  $v$  et  $\gamma$  la viscosité de la phase continue, la vitesse de la goutte dispersée et la tension de surface entre les deux phases. Remarquons également que la taille de la goutte intervient comme un paramètre important, puisqu'elle fixe l'élongation maximale de la goutte pouvant être supportée par celle-ci avant son éventuelle fragmentation. Si les deux bras de la jonction en T sont identiques, les gouttes créées ont également un volume identique. Ce procédé peut être répété à l'envi en créant une arborescence de jonctions identiques, permettant ainsi de réduire séquentiellement la taille des objets formés (Fig. 1.24). Si en revanche, les bras de la jonction comportent différentes longueurs, les auteurs montrent expérimentalement que les gouttelettes créées sont plus grosses dans le bras court, et que le rapport des volumes

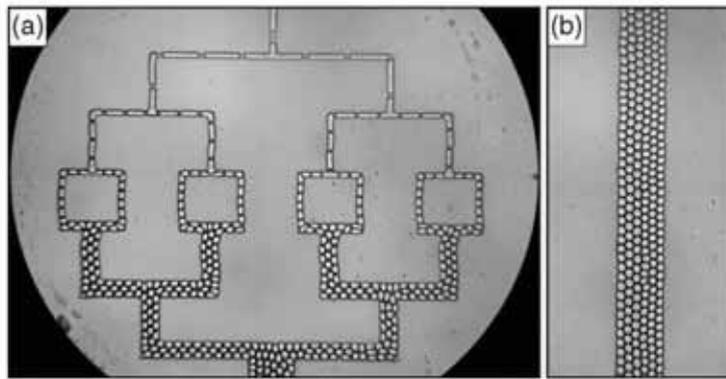


FIGURE 1.24: Fragmentation passive séquentielle de gouttes par l'utilisation de jonctions en T disposées en série et en parallèle. L'écoulement s'effectue du haut vers le bas. La surprenante non-coalescence des gouttelettes en sortie du dispositif est due à la présence d'un surfactant, le monooléate de sorbitane (ou Span 80), dans la phase continue constituée d'hexadécane. Figure tirée de [18].

des gouttelettes filles est égal au rapport des longueurs des deux bras (Fig. 1.25).

D'autres travaux plus récents ont prolongé ce procédé sur une gamme élargie de paramètres expérimentaux [19], ou encore au cas de jonctions dites « en  $\lambda$  », ouvrant sur des canaux présentant un angle  $\beta$  variable [20] (Fig. 1.26). L'apparition de divers régimes de fragmentation y est de nouveau prédite par la donnée, en particulier, du nombre capillaire.

**Fragmentation sur un obstacle** Il existe un second mode de fragmentation passive, dont le principe consiste à faire impacter les gouttes sur un obstacle placé au sein du canal, par exemple de forme carrée [18] (Fig. 1.27) ou circulaire [21]. Ces travaux mettent de nouveau en avant le rôle du nombre capillaire comme le paramètre gouvernant l'apparition du phénomène de fragmentation, et montrent la forte influence de la position de l'obstacle. Si celui-ci est légèrement décentré par rapport au centre du micro-canal, la brisure de symétrie engendre, en cas de fragmentation, des volumes de gouttelettes filles très sensibles à ce décalage (Fig. 1.27).

**Avantages et inconvénients** Chacune des deux méthodes passives décrites plus haut présente certaines avantages et inconvénients. Détaillons-les de manière comparative ci-dessous [18].

**Encombrement** À l'évidence, l'utilisation de jonctions nécessite souvent beaucoup d'espace sur une puce, au contraire des obstacles.

**Faisabilité** Généralement de grande longueur, l'ajout de jonctions dans un circuit microfluidique rajoute une perte de charge plus importante que celle induite par la présence d'un obstacle court. Ainsi, pour un même débit, les jonctions nécessitent des sauts de pression à appliquer plus élevés, pouvant parfois dépasser les capacités

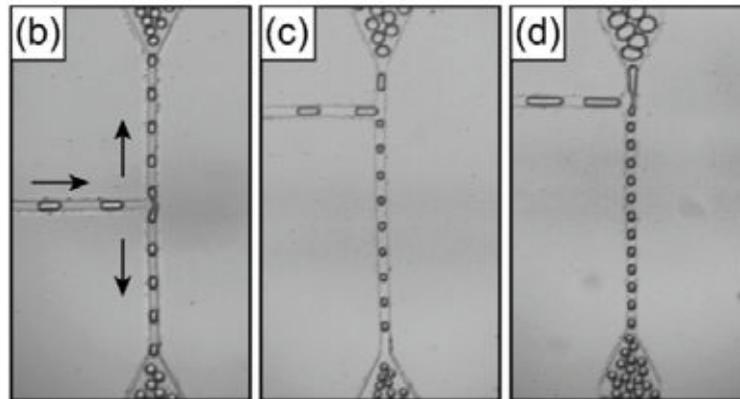


FIGURE 1.25: Le processus de fragmentation au niveau de la jonction en T asymétrique engendre la création de deux gouttelettes dans les bras de la jonction, de volumes différents. Figure adaptée de [18].

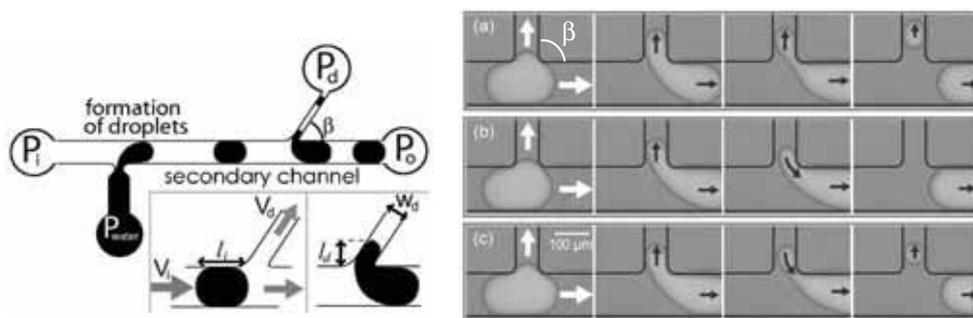


FIGURE 1.26: À gauche : schéma de la jonction inclinée utilisée. À droite : illustration des trois régimes de fragmentation passive observés à une jonction inclinée d'un angle  $\beta = \pi/2$ . Figure adaptée de [20].

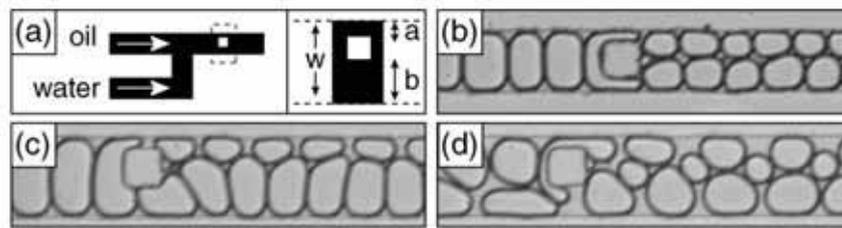


FIGURE 1.27: Fragmentation passive au niveau d'un obstacle de forme carrée. L'écoulement s'effectue de gauche à droite. Figure tirée de [18].

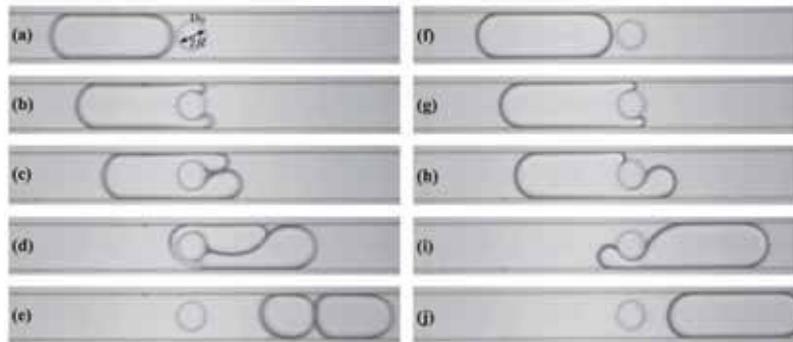


FIGURE 1.28: Fragmentation passive au niveau d'un obstacle de forme circulaire. L'écoulement s'effectue de gauche à droite. Figure tirée de [21].

autorisées sur ce genre de système, voire provoquer des fuites au niveau des entrées des différents fluides.

**Précision sur le volume des gouttes filles** Pour contrôler les volumes respectifs des gouttes filles créées, il est plus facile d'ajuster le rapport d'aspect entre les longueurs des bras de la jonction plutôt que la position de l'obstacle, pour des raisons de précision et de résolution spatiale lors de la conception du motif d'une puce microfluidique.

**Gamme offerte sur la taille de goutte initiale** Le contrôle de la fragmentation de gouttes sur un obstacle impose que ces dernières doivent toucher les bords du canal, sans quoi elles auraient tendance à passer uniquement par l'un des côtés de l'obstacle sans se fragmenter. Ceci implique l'existence d'une taille de goutte minimale en amont à respecter en ce qui concerne les obstacles. Nuançons tout de même ce propos : dans le cas des boucles, il existe probablement une taille de goutte minimale à respecter également, au vu de la divergence du nombre capillaire critique de fragmentation aux faibles taux d'élongation (Fig. 1.23).

## 4.2 Questions soulevées

En dépit de la diversité des travaux évoqués précédemment, l'établissement d'un modèle théorique général permettant de décrire intégralement le processus de frag-

mentation demeure compliqué du fait des nombreux paramètres mis en jeu dans ce problème : la vitesse et la taille des gouttes, les viscosités des deux phases, la tension de surface, ainsi que les paramètres géométriques. Par ailleurs, il est surprenant de remarquer des différences importantes de comportement selon la géométrie sélectionnée. Alors que les fractions volumiques des gouttes filles créées dépendent du nombre capillaire pour un obstacle circulaire [21], celles-ci n'en dépendent pas dans une jonction en T [18]. De façon plus paradoxale, le rapport des fractions volumiques des gouttes filles créées dans une jonction en T est égal au rapport des résistances hydrodynamiques des deux bras de la boucle en l'absence de goutte à l'intérieur. Ce rapport ne dépend donc que du rapport des longueurs entre les deux bras de la boucle pour des canaux de section identique [18], ou du rapport des largeurs pour des canaux de longueur et hauteur identiques [86]. Pourtant, il est connu que la présence d'objets dispersés et confinés dans un micro-canal dans lequel s'écoule une phase continue altère la résistance hydrodynamique de ce micro-canal [87]. D'autres travaux réalisés dans des jonctions en T asymétriques ont par ailleurs montré que si le nombre capillaire est insuffisant pour observer un processus de fragmentation, les incréments discrets de résistance hydrodynamique induites par l'entrée et la sortie d'une goutte sont à l'origine de plusieurs régimes de circulation différents de ces gouttes dans la jonction [88, 89, 90]. Le rétrocontrôle hydrodynamique ainsi exercé engendre, dans certaines conditions, des dynamiques de répartition non linéaires et complexes. Or, ces effets n'ont pas du tout été entrevus pour des obstacles.

Afin de réconcilier ces aspects parfois contradictoires, nous adoptons une démarche généralisée en choisissant une géométrie hybride, intermédiaire entre celles présentées ci-dessus. Cette dernière consiste en un obstacle linéaire, parallèle à la direction principale de l'écoulement et décentré, pouvant s'apparenter à une boucle asymétrique si cet obstacle est suffisamment long. Nous verrons plus tard que ce choix permet en outre une mise en équation simplifiée, de laquelle nous pouvons tirer une démarche analytique permettant de rendre compte des expériences. Les trois questions auxquelles nous tentons de répondre dans la suite sont les suivantes : sous quelles conditions peut-on fragmenter un objet (goutte, bulle) sur cet obstacle ? En cas de fragmentation, peut-on prédire et contrôler la distribution de taille des objets créés en sortie de l'obstacle ? Enfin, peut-on observer des dynamiques complexes de fragmentation induites par des effets collectifs entre objets ?



# Chapitre 2

## Matériel et méthodes

### 1 Protocole de fabrication d'une puce microfluidique

Comme discuté dans la partie précédente, l'un des intérêts majeurs de la microfluidique réside dans la miniaturisation des écoulements à l'échelle d'une puce, de quelques centimètres carrés de surface et quelques millimètres de hauteur. Il existe de nombreux processus de microfabrication permettant de produire ces dispositifs [91], nous décrivons ici la méthode basée sur la lithographie douce [92] que nous utilisons.

#### 1.1 Conception du masque

La première étape consiste en la conception des motifs composant le micro-canal désiré. Une fois dessinés à l'aide d'un logiciel de CAO 2D (Clewin), ils sont ensuite reproduits par phototraçage laser sur film plastique, avec une résolution typique de 25400 DPI (*dots per inch*), correspondant à une précision de  $1\ \mu\text{m}$ . Cette procédure de phototraçage est, au sein du processus de microfabrication, l'unique étape réalisée à l'extérieur du laboratoire (Selba).

#### 1.2 Gravure du *wafer* par photolithographie

La gravure du *wafer* de silicium (moule de diamètre égal à 3 pouces) à partir du masque s'effectue en salle blanche et peut se décomposer en trois étapes principales (Fig. 2.1). Outre le fait de maîtriser la concentration particulière, l'environnement de la salle blanche permet également de maintenir une température constante de  $20^\circ\text{C}$ .

##### 1.2.1 Enduction de la résine photopolymérisable

Après un lavage préliminaire à l'éthanol suivi d'un séchage à l'azote, le *wafer* est enduit d'une couche de résine photosensible négative. L'étalement de la résine s'effectue à l'aide d'une tournette (SUSS MicroTec Lithography) par enduction (*spin coating*) ; le dépôt d'épaisseur constante ainsi obtenu est contrôlé par la vitesse de rotation  $\omega$  de la tournette, ainsi que la viscosité de la résine choisie. Le contrôle en température de la salle blanche permet d'utiliser la résine dans les conditions pour lesquelles sa viscosité est celle indiquée par le fournisseur. Dans le but d'obtenir un dépôt de  $45\ \mu\text{m}$  d'épaisseur avec la résine SU8 2025 (MicroChem), le procédé

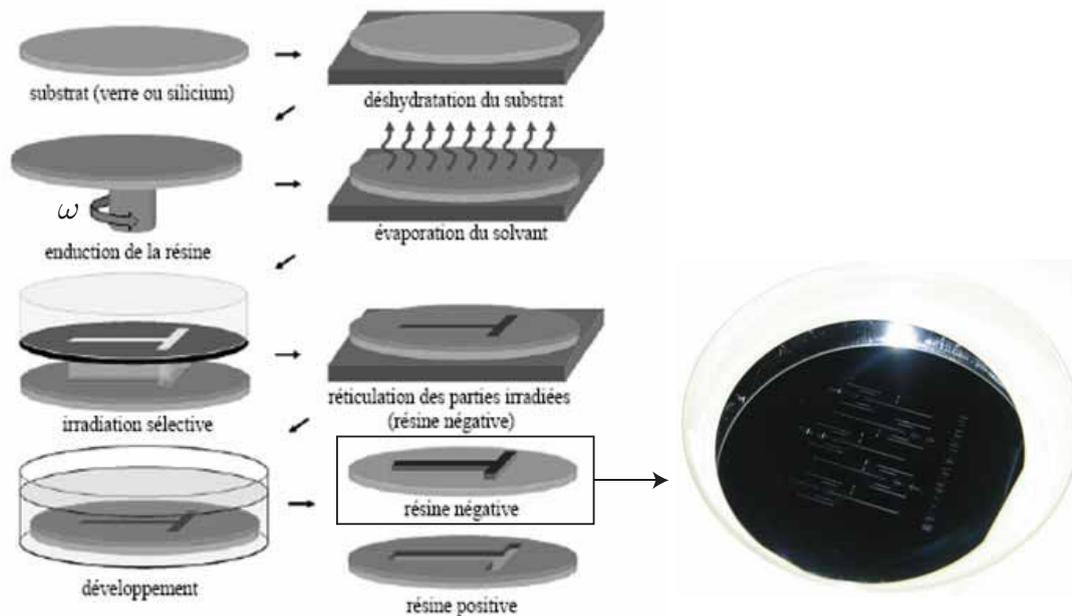


FIGURE 2.1: À gauche : les différentes étapes de photolithographie. Illustrations reproduites avec l'aimable autorisation de Galder Cristobal. À droite : un *wafer* de silicium gravé.

expérimental consiste en un pré-étalement de 10 secondes à  $\omega=500$  tours. $\text{min}^{-1}$ , suivi d'un étalement de 30 secondes à  $\omega=2000$  tours. $\text{min}^{-1}$ . Afin d'évaporer les solvants résiduels contenus dans la résine, le *wafer* est ensuite déposé sur des plaques chauffantes, à 65°C et 95°C, pendant 1 minute et 5 minutes respectivement (*pre-bake*).

### 1.2.2 Insolation UV

La résine polymère utilisée est réticulable sous rayonnement ultra-violet : nous exploitons cette propriété lors de l'étape d'insolation en utilisant une lumière collimatée UV munie d'un aligneur (MJB 3, SUSS). La longueur d'onde de la lumière utilisée vaut 365 nm, et sa puissance est mesurée avec un fluxmètre. En insolant le *wafer* enduit de résine avec le faisceau parallèle de lumière UV au travers du masque, l'irradiation s'effectue uniquement selon les motifs du masque à reproduire. De fait, la polymérisation s'avère sélective et permet de transposer en relief les micro-canaux sur la couche de résine. Connaissant les données du fournisseur de la résine reliant l'énergie par centimètre carré à injecter à l'épaisseur désirée correspondante, cette étape d'insolation UV dure 70 secondes. Comme précédemment, le *wafer* est à nouveau déposé sur des plaques chauffantes, à 65°C et 95°C, pendant 1 minute et 5 minutes respectivement (*post-bake*).

### 1.2.3 Développement du *wafer*

Le *wafer* est alors plongé dans un bain contenant un développeur chimique (SU8 *developer*), pendant 2 à 3 minutes, afin de dissoudre la résine non réticulée au cours de l'étape précédente. Cette étape de développement est facilitée en agitant légèrement le bain contenant le développeur. Enfin, le *wafer* est retiré du bain, rincé à l'éthanol et à l'isopropanol, puis séché à l'azote. Comme le montre la figure 2.1, les motifs du masque apparaissent à l'œil nu sur le *wafer* de silicium ainsi gravé. Alors que les dimensions dans le plan du *wafer* dépendent des motifs géométriques phototracés sur le masque, la dimension perpendiculaire à ce plan, soit la hauteur du micro-canal, dépend du protocole expérimental de photolithographie, et notamment de la première étape d'enduction.

## 1.3 Moulage de la puce par lithographie douce

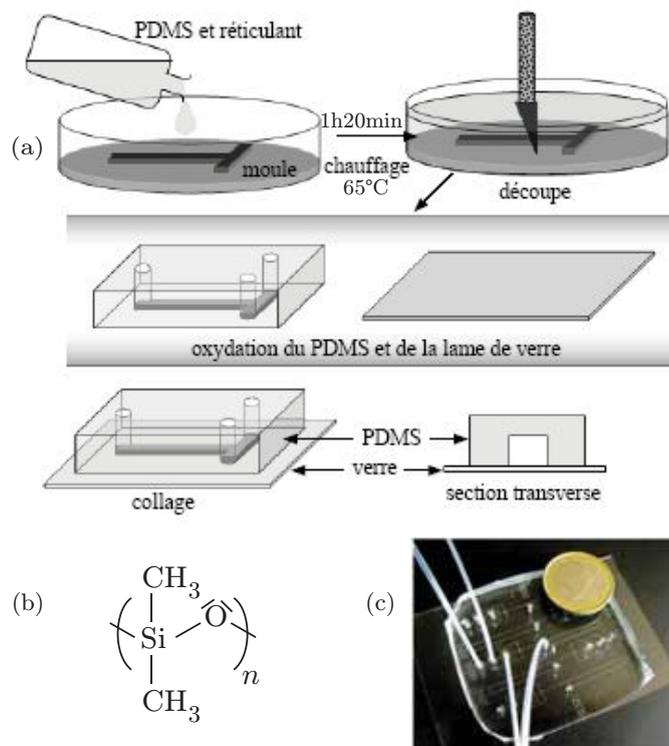


FIGURE 2.2: (a) Les différentes étapes de lithographie douce. Illustrations reproduites avec l'aimable autorisation de Galder Cristobal. (b) Formule topologique du PDMS. (c) Une puce microfluidique prête à l'emploi. La pièce de monnaie de 1€ fait office d'échelle. Figure tirée de [54].

Au cours de cette dernière étape de fabrication réalisée sous hotte à flux laminaire, le *wafer* de silicium, désormais gravé, est déposé dans une boîte de Pétri, puis moulé (Fig. 2.2) en utilisant le polydiméthylsiloxane (Sylgard 184, Dow Corning), noté PDMS dans la suite. Ce polymère silicone visqueux présente l'avantage d'être transparent et thermoréticulable, après ajout d'un agent durcissant (dans des proportions massiques 9:1). De manière à se débarrasser des bulles d'air formées, le

mélange est placé quelques instants sous une cloche à vide, puis versé sur le *wafer*, avant de placer ce dernier dans une étuve à 65°C. Après 80 minutes de cuisson environ, la matrice obtenue est solide, élastique, hydrophobe et transparente, et comporte les empreintes correspondant aux canaux gravés sur le *wafer* au cours de l'étape de photolithographie. Elle est démoulée du *wafer* à l'aide d'un cutter puis décollée avec précaution afin de ne pas endommager les micro-canaux. Les trous d'alimentation des fluides sont percés au moyen d'une aiguille calibrée d'1 mm de diamètre. L'état de surface de l'aiguille polie (contour lisse, extrémité arrondie) est déterminant pour éviter des fractures dans le PDMS, causant par la suite des fuites au sein de la puce. La fermeture des canaux est finalement assurée par une lame de verre préalablement lavée à l'éthanol et séchée sous flux d'azote. Le collage s'effectue en plaçant la matrice élastomère et la lame de verre dans une chambre à plasma (PDC-002, Harrick Plasma), mise sous vide (pression inférieure à 1 mbar) pendant environ 75 secondes. L'activation des surfaces du PDMS et du verre induite par réaction d'oxydation avec le plasma d'oxygène conduit à une modification des propriétés physico-chimiques (adhésion, mouillage), et permet notamment un collage irréversible entre les deux surfaces. Les micro-canaux ainsi reconstruits sont caractérisés par une section rectangulaire, de hauteur  $h$  et de largeur  $w$ , s'appuyant sur trois surfaces de PDMS (faces latérales et face du haut) et une surface de verre (face du bas). La puce microfluidique obtenue est à ce stade hydrophile. Un dernier passage à l'étuve à 150°C durant 12 heures environ lui reconferme des conditions de mouillage hydrophobes, favorables à la création des émulsions « eau dans huile » que nous détaillons dans la partie suivante. Les expériences microfluidiques montrent en effet qu'il est aisé de créer une émulsion d'un fluide 1 dans un fluide 2 lorsque ce dernier a une bonne mouillabilité avec les parois du canal [41].

## 2 Dispositif expérimental

### 2.1 Schéma de principe du canal microfluidique

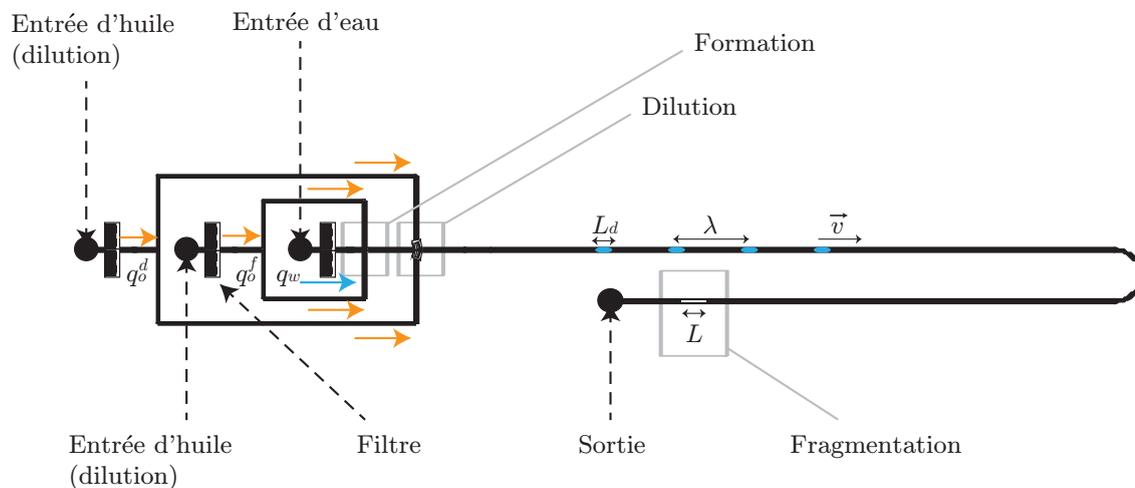


FIGURE 2.3: Schéma d'un canal microfluidique vu de dessus.

La figure 2.3 représente schématiquement un micro-canal conçu et fabriqué par les méthodes décrites précédemment. Il comporte trois trous d'injection des fluides (deux pour la phase continue, un pour la phase dispersée) et un trou de sortie. Les débits volumiques de phase continue de dilution, phase continue de formation, et phase dispersée sont respectivement notés  $q_o^d$ ,  $q_o^f$  et  $q_w$ . Le débit total est par suite défini comme  $q = q_o^d + q_o^f + q_w$ . Les filtres (Fig. 2.4), disposés aux différentes entrées des fluides, ont pour but de piéger les impuretés éventuelles et poussières de PDMS résiduelles dues au perçage des trous. En choisissant la taille des pores de l'ordre de  $20 \mu\text{m}$ , le fluide s'écoule normalement, les grosses impuretés susceptibles de boucher le micro-canal sont piégées par le filtre, alors que les petites impuretés, ne présentant pas ce risque, sont transportées par le fluide jusqu'à la sortie. Ce micro-canal typique est composé de trois organes principaux, ayant chacun une fonction intrinsèque. D'amont en aval, il apparaît successivement un module de formation, un module de dilution et un module de fragmentation, composé par exemple d'un obstacle linéaire comme celui représenté sur la figure 2.3, ou d'une boucle. En remettant la description de ces modules de fragmentation aux chapitres suivants, détaillons à présent le rôle des modules élémentaires de formation et de dilution.

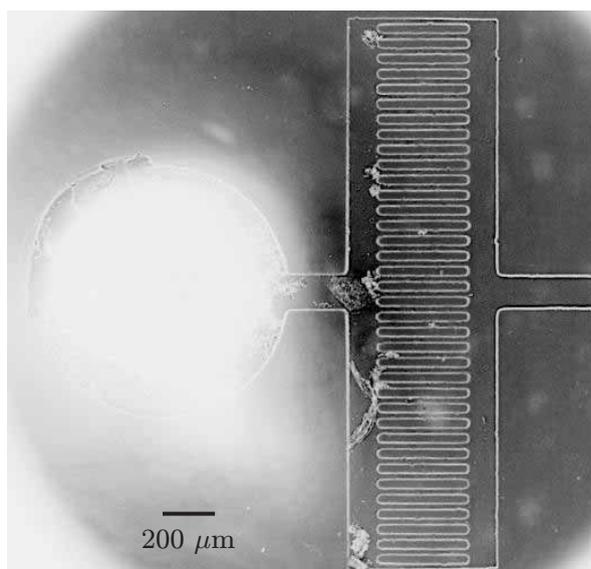


FIGURE 2.4: Filtre d'entrée.

### 2.1.1 Module de formation

Le rôle de ce premier module est de former l'émulsion à partir de l'écoulement de deux fluides immiscibles. Par la technique de *flow focusing* [48] (Fig. 2.5), la phase continue provenant de l'entrée de formation pince périodiquement la phase dispersée au travers d'une constriction (dont la largeur est de l'ordre de  $60 \mu\text{m}$ ), engendrant un train d'objets monodisperses (gouttes, bulles), de taille  $L_d$  au sein de la phase continue. Ce procédé est assez bien décrit par le modèle de blocage-pincement [41, 42] évoqué dans le chapitre précédent.

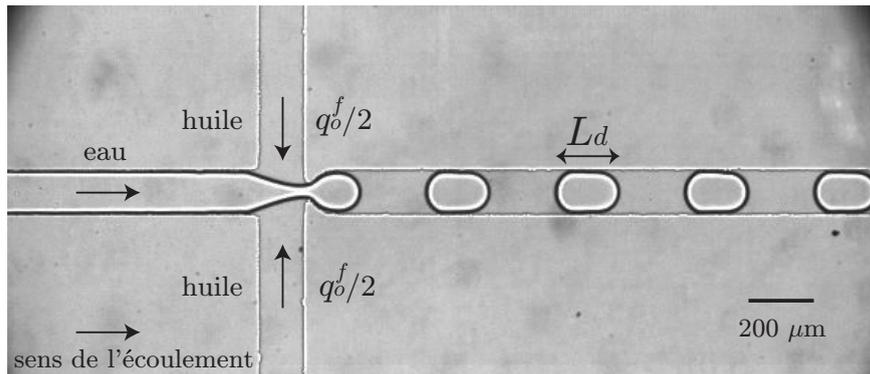


FIGURE 2.5: Module de formation.

### 2.1.2 Module de dilution

Une fois le train périodique monodisperse créé, le module de dilution permet de faire varier la vitesse  $v$  des objets en les diluant ou en les concentrant, indépendamment de leur taille [93] (Fig. 2.6). Notons cependant que cette configuration introduit nécessairement un couplage entre la vitesse  $v$  et la distance séparant deux objets consécutifs, notée  $\lambda$ . La nature périodique du train permet de définir une fréquence de production  $f$  vérifiant la relation  $v = \lambda f$ . D'un point de vue pratique, la structure en peigne à l'embranchement de la dilution permet de minimiser la déformation des objets, et ainsi de prévenir leur éventuelle coalescence ou fragmentation [94] à ce niveau du micro-canal. L'inclinaison donnée aux micro-canaux contribue de plus à orienter l'écoulement dans le bon sens.

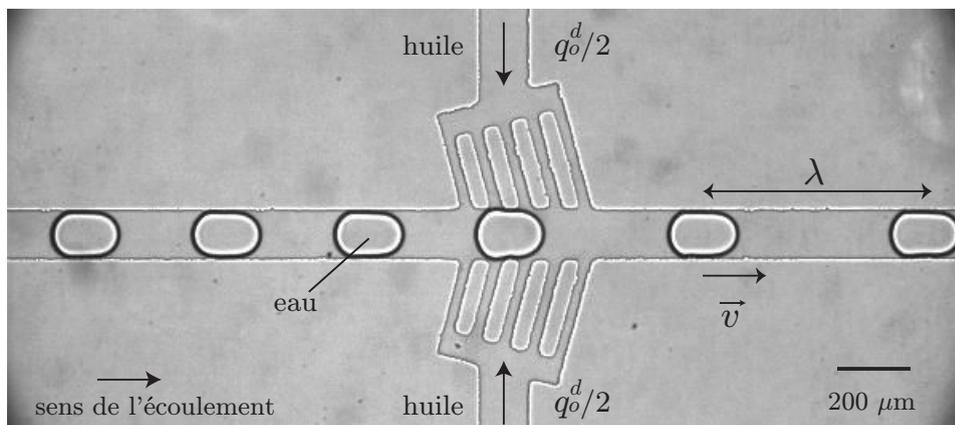


FIGURE 2.6: Module de dilution.

## 2.2 Mise en œuvre et caractéristiques de l'écoulement

### 2.2.1 Fluides utilisés

La formation d'émulsions s'accompagne du choix de deux fluides immiscibles, une phase continue et une phase dispersée. Les divers fluides sondés sont newtoniens, et deux types de systèmes de fluides ont été étudiés : des systèmes liquide/liquide

(formation d'un train de gouttes) et gaz/liquide (formation d'un train de bulles). Les viscosités des fluides choisis sont mesurées à l'aide d'un rhéomètre (Anton Paar MCR 301), en géométrie cône/plan (avec un diamètre de 70 mm et un angle de  $5^\circ$ ). Les tensions de surface sont déterminées à l'aide d'un tensiomètre (Tracker, Teclis), par la méthode de la goutte pendante (ou bulle montante). Ces procédés de rhéologie et de tensiométrie sont présentés en annexe de ce manuscrit.

**Systèmes liquide/liquide** Deux phases continues organiques ont été utilisées, l'hexadécane (Sigma-Aldrich) et une huile silicone visqueuse (Fluka). La phase dispersée liquide utilisée est une solution aqueuse (MilliPore,  $18\text{ M}\Omega\cdot\text{cm}$ .) contenant du dodécylsulfate de sodium (Sigma-Aldrich) noté SDS dans la suite, à raison de  $15\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , et du glucose, dont le pourcentage massique a été varié de 0% à 44%. L'ajout de glucose permet de faire varier la viscosité  $\eta_d$  de la phase dispersée de 1 mPa.s à 7.2 mPa.s. La viscosité  $\eta_c$  de la phase continue est de 3 mPa.s pour l'hexadécane, 50 mPa.s pour l'huile silicone. Le SDS est un surfactant ionique soluble dans la phase dispersée, stabilisant l'émulsion ainsi formée. La concentration micellaire critique (CMC) étant de l'ordre de  $2\text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$ , l'interface est saturée en surfactant, ce qui fixe la valeur de la tension superficielle  $\gamma$ . Les valeurs mesurées sont  $\gamma=6\text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$  pour le système eau/hexadécane,  $\gamma=9.7\text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$  pour le système eau/silicone.

**Systèmes gaz/liquide** La phase continue utilisée est l'hexadécane, la phase dispersée gazeuse est constituée de diazote (Air Liquide), de viscosité  $1.7 \cdot 10^{-2}\text{ mPa}\cdot\text{s}$ . La tension de surface mesurée est  $\gamma=27\text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$ .

### 2.2.2 Modes d'injection

**Systèmes liquide/liquide** Comme le montre la figure 2.7, les phases continue et dispersée sont injectées à débit contrôlé par des pousse-seringues (PHD2000, Harvard Apparatus). Pour les trois entrées de fluides, la gamme de débit appliqué s'étend typiquement de 1 à  $1000\ \mu\text{L}\cdot\text{h}^{-1}$ .

**Systèmes gaz/liquide** La phase continue est injectée à débit contrôlé par un pousse-seringue. La phase dispersée gazeuse est injectée grâce à un système d'écoulement microfluidique à pression imposée (MCF5-FLEX, Fluigent). La gamme de pression appliquée s'étend typiquement de 50 à 1000 mbar.

Les fluides sont ensuite transportés dans le micro-canal *via* des tubes capillaires souples en polyéthylène (PE20, BD Intramedic), de diamètres intérieur et extérieur respectivement égaux à 0.38 mm et 1.09 mm. L'élasticité du PDMS assure l'étanchéité de la connexion entre les tubes et la puce.

## 2.3 Acquisition des données

L'écoulement au sein de la puce microfluidique est observé au moyen d'un microscope inversé (IX-71, Olympus), le grossissement des objectifs utilisés allant de  $\times 2$  à  $\times 60$ . L'acquisition des données s'effectue par une caméra rapide (Phantom V7,

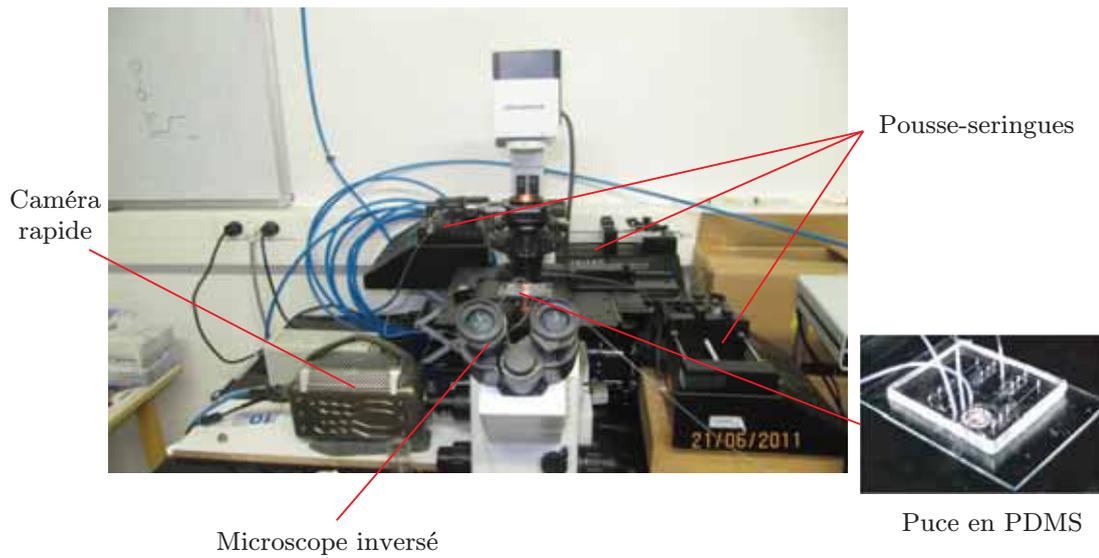


FIGURE 2.7: Montage expérimental.

Vision Research) connectée au microscope (Fig. 2.7), dont la gamme de fréquence d'acquisition s'étend de 500 à 10000 images.s<sup>-1</sup>, pour une résolution spatiale typique de 200 × 600 pixels<sup>2</sup>.

## 2.4 Traitement des données

Les images et films sont analysés *a posteriori* par traitement d'image, en utilisant les logiciels de programmation ImageJ et Matlab. Par détection de contour des objets dispersés au cours du temps, il est possible de remonter à la taille des objets, leur volume, leur vitesse et leur fréquence de production.

## Chapitre 3

# Fragmentation d'objets déformables et isolés sur un micro-obstacle linéaire

Nous proposons une étude expérimentale, théorique et numérique de la fragmentation d'objets déformables (gouttes, bulles) sur un micro-obstacle linéaire. Nous décrivons dans ce chapitre les résultats obtenus dans le cas où les objets sont suffisamment éloignés afin de pouvoir négliger toute interaction hydrodynamique entre eux, et où la longueur de l'obstacle est par conséquent très inférieure à la distance séparant deux objets consécutifs. Nous montrons l'existence de quatre régimes hydrodynamiques de fragmentation ainsi que le rôle crucial du contraste de viscosité entre les phases porteuse et dispersée. Nous décrivons un modèle simple permettant d'identifier les paramètres adimensionnés pertinents du problème et de retrouver nos observations expérimentales.

## 1 Paramètres expérimentaux

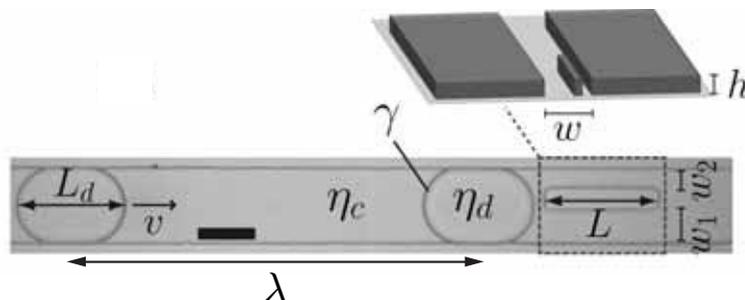


FIGURE 3.1: Photographie répertoriant les paramètres expérimentaux intervenant dans le problème. Barre d'échelle :  $100 \mu\text{m}$ .

Le problème considéré est d'apparence complexe, du fait des nombreux paramètres intervenant dans l'expérience (Fig. 3.1). Nous pouvons classer ces paramètres en trois catégories.

### 1.1 Géométrie

Après avoir présenté le rôle des modules de formation et de dilution dans le chapitre précédent, détaillons ici le module de fragmentation utilisé. Comme montré sur la figure 3.1, ce module consiste en un obstacle rectangulaire, sa longueur principale étant parallèle à la longueur principale du micro-canal. Celui-ci est placé en aval de la formation et de la dilution, suffisamment loin de façon à assurer un mouvement uniforme de l'objet dispersé juste avant d'impacter l'obstacle. Les paramètres géométriques de ce dernier sont fixés par le choix de la puce microfluidique sélectionnée *ab initio*. Notons que l'obstacle est intentionnellement décentré par rapport au canal, nous utilisons ainsi les appellations « bras large » et « bras fin » dans la suite de cette partie pour désigner les canaux situés de part et d'autre de l'obstacle. Définissons et donnons l'ordre de grandeur des paramètres géométriques sondés dans nos expériences :

- $h = 45 \mu\text{m}$  : hauteur du canal.
- $w = 130 \mu\text{m}$  : largeur principale du canal.
- $L = 200 - 800 \mu\text{m}$  : longueur de l'obstacle.
- $w_1 = 52 - 72 \mu\text{m}$  : largeur secondaire du bras large de l'obstacle.
- $w_2 = 28 - 48 \mu\text{m}$  : largeur secondaire du bras fin de l'obstacle, avec  $w_2 \leq w_1$ .

Nous avons fixé la largeur de l'obstacle à  $30 \mu\text{m}$  dans toutes les expériences présentées. Alors que les quatre derniers paramètres de la liste sont déterminés lors de la conception du motif désiré sur le logiciel Clewin, la hauteur  $h$  du micro-canal dépend du protocole opératoire de *spin coating* choisi au cours de l'étape de photolithographie. Cette grandeur est maintenue à une valeur constante,  $h = 45 \mu\text{m}$ , tout au long de cette partie.

## 1.2 Physico-chimie

Les paramètres physico-chimiques sont fixés par le choix du système diphasique utilisé<sup>1</sup> :

- $\eta_d$  : viscosité de la phase dispersée.
- $\eta_c$  : viscosité de la phase continue.
- $\gamma$  : tension de surface entre les phases dispersée et continue.

Dans le cas des systèmes liquide/liquide (gouttes), l'eau est la phase dispersée, et l'huile la phase continue. Dans le cas des systèmes gaz/liquide, le diazote constitue la phase dispersée, l'huile la phase continue. Du fait de la prédominance des effets visqueux devant les effets inertiels aux échelles spatiales typiques de la microfluidique, nous écartons d'emblée des paramètres pertinents de l'expérience les masses volumiques des deux fluides.

## 1.3 Hydrodynamique

Les paramètres hydrodynamiques caractérisent l'état du train d'objets monodisperse en amont de l'obstacle :

- $L_d = 150 - 900 \mu\text{m}$  : taille des objets.
- $v = 0.1 - 10 \text{ mm.s}^{-1}$  : vitesse des objets.
- $\lambda = 600 - 3000 \mu\text{m}$  : distance entre deux objets consécutifs.

Dans toute cette partie, nous considérons des objets suffisamment volumineux afin qu'ils touchent les bords des canaux, soit  $L_d \geq w$  ; nous nous y référons dans la suite par l'appellation *slugs*. Nous verrons l'importance de cette condition dans le paragraphe suivant. Dans le cadre particulier de ce chapitre, nous choisissons la distance  $\lambda$  très grande devant toutes les autres dimensions du système, de façon à pouvoir considérer les objets comme « isolés ».

Les paramètres hydrodynamiques peuvent être modifiés par l'expérimentateur en ajustant le débit des pousse-seringues pour les phases liquides, ou la surpression du régulateur de pression pour la phase gazeuse. Discutons le cas particulier des systèmes liquide/liquide (gouttes), permettant d'obtenir des relations simples entre débits appliqués et paramètres hydrodynamiques, exploitables en pratique.

### 1.3.1 Contrôle de la vitesse $v$

L'écoulement de gouttes confinées et transportées dans une phase continue est souvent décrit par une relation de la forme :

$$v = \frac{\beta q}{wh}, \quad (3.1)$$

reliant la vitesse  $v$  des objets dispersés au débit volumique total  $q$  et à la section  $wh$  du canal, par l'intermédiaire d'un coefficient de mobilité  $\beta$  sans dimension [95]. Certains travaux antérieurs réalisés dans des circuits cylindriques millifluidiques (Fig. 3.2 (a)) ont montré que ce coefficient vérifie généralement l'encadrement  $1 \leq \beta \leq 2$  et subit une influence prononcée du confinement, donc du ratio  $\rho$  entre la

---

1. Les ordres de grandeur de ces paramètres, ainsi que la nature des fluides utilisés, sont donnés dans le chapitre précédent.

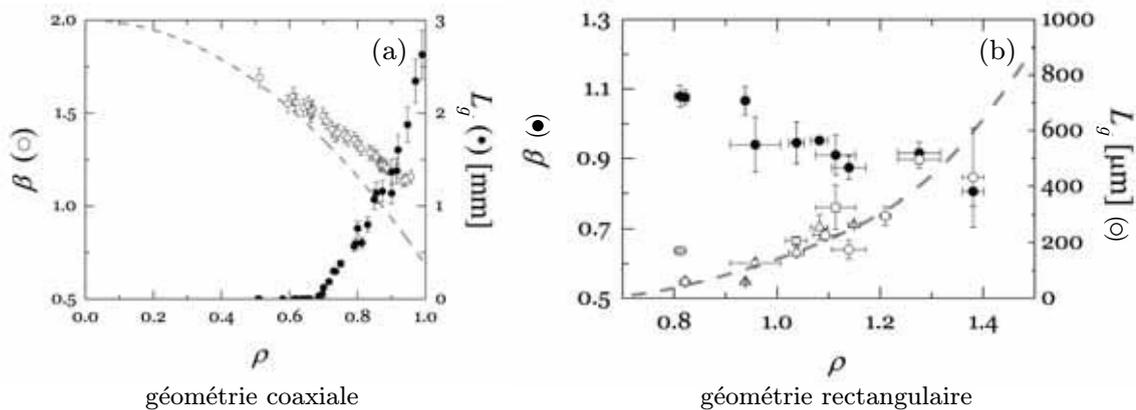


FIGURE 3.2: Évolution du coefficient de mobilité  $\beta$  en fonction du confinement adimensionné  $\rho$  imposé par le canal, en géométrie coaxiale (a) et rectangulaire (b).  $L_g$  est une longueur résistive associée à la présence d'un objet dispersé dans le canal ; cette longueur dépend également du confinement appliqué. Figure adaptée de [87].

taille de l'objet dispersé et la taille du canal [87, 88]. La limite supérieure  $\beta=2$  correspond à un confinement nul, soit un objet ponctuel s'écoulant à la vitesse centrale maximale du profil de Poiseuille vérifié par la phase continue. Cette vitesse maximale est égale au double de la vitesse moyenne, de par la nature parabolique du profil de vitesse. Le fait de travailler avec des *slugs* permet de garder un coefficient de mobilité  $\beta$  proche de l'unité, indépendamment de la taille  $L_d$  de l'objet : nous sommes dans une configuration d'« écoulement bouchon », où l'objet dispersé est advecté par la phase continue à la vitesse moyenne de l'écoulement. Notons qu'en réalité, le coefficient de mobilité d'un *slug* dans un canal de section rectangulaire peut devenir légèrement inférieur à 1 (voir Fig. 3.2 (b)), du fait des écoulements de coin de la phase continue [87, 96]. Dans la suite, nous supposons  $\beta=1$ . Ainsi, la vitesse  $v$  est directement proportionnelle au débit total :

$$v \propto q = q_o^d + q_o^f + q_w. \quad (3.2)$$

### 1.3.2 Contrôle de la taille $L_d$

La taille  $L_d$  est fixée au cours du mécanisme de *flow focusing* prenant place au module de formation. Nous utilisons le modèle simple de blocage-pincement [41, 42, 53] afin de connaître la dépendance de  $L_d$  avec les débits  $q_w$  et  $q_o^f$  ; redécrivons brièvement les ingrédients de ce modèle. En notant  $\Omega$  le volume des objets dispersés, celui-ci peut s'écrire comme :

$$\Omega = q_w \tau, \quad (3.3)$$

avec  $\tau$  la période temporelle du processus de pincement. Faisant fi des équations hydrodynamiques régissant le mécanisme, l'expérience montre que nous pouvons décomposer simplement celui-ci en une phase de blocage, de durée  $\tau_b$ , et une phase de pincement, de durée  $\tau_p$ . Au cours de la première étape, la phase aqueuse envahit la constriction, permettant d'obstruer l'écoulement d'huile de formation. En notant

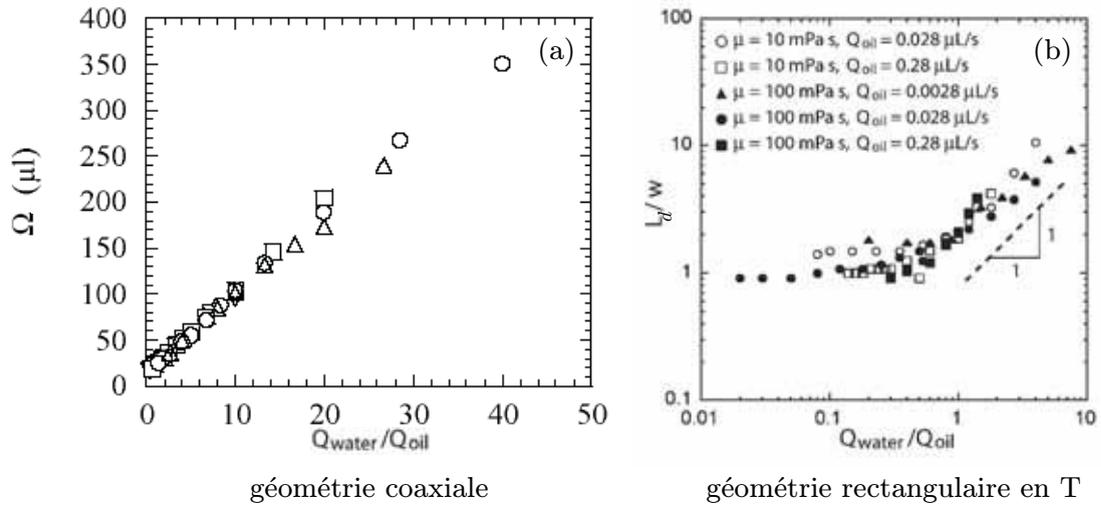


FIGURE 3.3: (a) En accord avec l'équation 3.6, Le volume du *slug* est une fonction affine du rapport entre les débits d'eau et d'huile de formation. Figure adaptée de [53]. (b) Évolution de la taille de *slug*, normalisée par la largeur du canal, en fonction du rapport entre les débits d'eau et d'huile de formation. Les résultats présentés sont cohérents avec la formule 3.7 obtenue à l'aide du modèle de blocage-pincement, et montrent en particulier l'indépendance de la viscosité de l'huile (phase continue) dans ce mécanisme. Figure adaptée de [42].

$V_b$  le volume typique de blocage, nous en déduisons une estimation de  $\tau_b$  :

$$\tau_b \simeq \frac{V_b}{q_w}. \quad (3.4)$$

Dans un second temps, l'huile vient, de part et d'autre, pincer le volume d'eau présent dans la constriction. De fait,  $\tau_p$  peut s'écrire :

$$\tau_p \simeq \frac{V_p}{q_o^f}, \quad (3.5)$$

avec  $V_p$  le volume de pincement. Finalement,  $\tau = \tau_b + \tau_p$  et l'équation 3.3 permettent d'obtenir la relation simple suivante :

$$\Omega \simeq V_b + \frac{q_w}{q_o^f} V_p. \quad (3.6)$$

La forme « aplatie » d'un *slug* nous autorise à écrire l'approximation  $\Omega \simeq L_d w h$ , il vient donc :

$$L_d \propto 1 + k \frac{q_w}{q_o^f}, \quad (3.7)$$

avec  $k = V_p/V_b$ , de l'ordre de l'unité. Ce modèle simple est en accord avec l'expérience (Fig. 3.3 (a)) tant que le contraste de viscosité entre les deux phases n'est pas trop important [53] et que les fluides sont newtoniens<sup>2</sup>. Notons d'ailleurs que ce raisonnement s'applique également au processus de pincement hydrodynamique au niveau

<sup>2</sup>. Ce modèle est par exemple mis en défaut avec certains polymères, ou plus spécifiquement un extrait cellulaire d'œufs de Xénope [97].

d'une jonction en T [42] (Fig. 3.3 (b)). Ainsi, la taille  $L_d$  est expérimentalement ajustable par le ratio des débits de formation.

## 2 Résultats expérimentaux

### 2.1 Quatre régimes hydrodynamiques de fragmentation

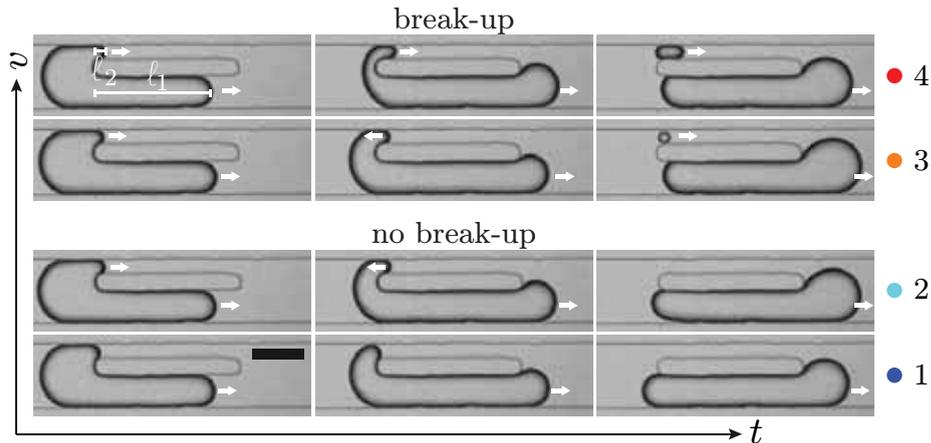


FIGURE 3.4: Illustration des quatre régimes hydrodynamiques observés expérimentalement en faisant varier la vitesse  $v$  de  $1.9 \text{ mm.s}^{-1}$  à  $5.1 \text{ mm.s}^{-1}$ , pour une taille  $L_d = 260 \text{ }\mu\text{m}$  fixée. Le code couleur, associé à chaque régime et situé à droite de la figure, est réutilisé dans la suite de ce chapitre. Barre d'échelle :  $100 \text{ }\mu\text{m}$ . Figure adaptée de [98].

Fixons dans un premier temps les paramètres géométriques (c'est-à-dire la puce microfluidique), et choisissons un système de fluides liquide/liquide tel que  $\eta_d > \eta_c$ . Étudions le comportement de l'objet isolé lorsqu'il impacte l'obstacle en fonction de sa taille  $L_d$  et de sa vitesse  $v$ . Pour un *slug* de taille  $L_d$  donnée, la figure 3.4 illustre l'existence de quatre régimes hydrodynamiques observés en faisant varier la vitesse  $v$ . Sur cette même figure,  $\ell_1$  et  $\ell_2$  désignent les positions des interfaces liquide/liquide dans les canaux situés de part et d'autre de l'obstacle, de largeurs respectives  $w_1$  et  $w_2$ , en prenant comme origine commune l'extrémité amont de l'obstacle (voir Fig. 3.4). Nous nommons et caractérisons ci-dessous les différents régimes, observés par ordre croissant de vitesse.

#### 2.1.1 Régime 1 : non fragmentation sans rétraction

Lorsque la vitesse est suffisamment faible, le *slug* n'envahit pas le bras fin de l'obstacle, soit  $\ell_2 = 0$  tout le temps, et s'écoule entièrement par le bras large. De fait, il ne se fragmente pas.

#### 2.1.2 Régime 2 : non fragmentation avec rétraction

À vitesse plus élevée, une partie du volume du *slug* envahit désormais le bras fin de l'obstacle : une interface avance, s'arrête, puis, de façon surprenante, se ré-

tracte. Puisque cette rétraction s'effectue totalement avant même que l'arrière du *slug* vienne à son tour heurter l'obstacle, aucune fragmentation n'a lieu.

### 2.1.3 Régime 3 : fragmentation avec rétraction

En augmentant encore la vitesse, l'invasion d'une interface dans le bras fin, suivie de sa rétraction, est de nouveau observée. À la différence du régime 2, cette rétraction est partielle, puisque l'arrière du *slug* vient impacter l'obstacle alors que  $\ell_2 > 0$  : le *slug* se fragmente en deux gouttes filles, généralement de taille différente, dans chacun des deux bras de l'obstacle.

### 2.1.4 Régime 4 : fragmentation sans rétraction

Pour une vitesse encore plus grande, les deux interfaces envahissant les bras de l'obstacle ne subissent aucune rétraction. Nous assistons de nouveau à un processus de fragmentation lorsque l'arrière du *slug* vient heurter l'obstacle. Notons que la goutte formée dans le bras fin de l'obstacle est plus grande<sup>3</sup> que dans le régime 3.

## 2.2 Diagrammes comportementaux : influence du contraste de viscosité

Par suite, nous avons fait varier de façon systématique les quantités hydrodynamiques  $v$  et  $L_d$ , permettant de cartographier les zones d'existence des quatre régimes dans un diagramme  $(L_d, v)$ , par analogie avec un diagramme de phase en thermodynamique. Nous avons ensuite renouvelé l'expérience avec divers systèmes de fluides liquide/liquide et liquide/gaz, ainsi qu'en modifiant les paramètres géométriques. La figure 3.5 représente deux diagrammes comportementaux typiques, l'un (Fig. 3.5 (a)) ayant été établi avec la condition expérimentale  $\eta_d > \eta_c$  (phase dispersée : eau+SDS+glucose, phase continue : hexadécane), l'autre (Fig. 3.5 (b)) ayant été obtenu avec la condition inverse  $\eta_d < \eta_c$  (phase dispersée : eau+SDS, phase continue : huile silicone). Comme attendu, les régimes de non fragmentation se retrouvent aux vitesses faibles, et les régimes de fragmentation aux vitesses élevées. Les lignes pointillées servent de guide pour les yeux afin de mettre en exergue le seuil de fragmentation. Décrivons ci-dessous en détail l'allure de ces diagrammes de façon séparée.

### 2.2.1 Cas $\eta_d > \eta_c$

Sur le diagramme associé au système fluide vérifiant la condition  $\eta_d > \eta_c$  (Fig. 3.5 (a)), nous remarquons que la courbe matérialisant la vitesse seuil de fragmentation en fonction de  $L_d$  est non monotone. Cette courbe est décroissante pour  $L_d < L_d^{cr}$ , puis croissante pour  $L_d > L_d^{cr}$ , avec  $L_d^{cr}$  une taille de *slug* critique approximativement égale à  $230 \mu\text{m}$  pour cette série de mesures. Par ailleurs, lorsque  $L_d > L_d^{cr}$ , nous retrouvons, par ordre croissant en vitesse, la séquence composée des quatre régimes définis précédemment. Lorsque  $L_d < L_d^{cr}$ , nous relevons seulement la présence des régimes 1 et 4, survenant sans rétraction. Enfin, la vitesse seuil d'invasion du bras

---

<sup>3</sup>. Par conservation du volume du *slug*, la goutte formée dans le bras large est *a fortiori* plus petite.

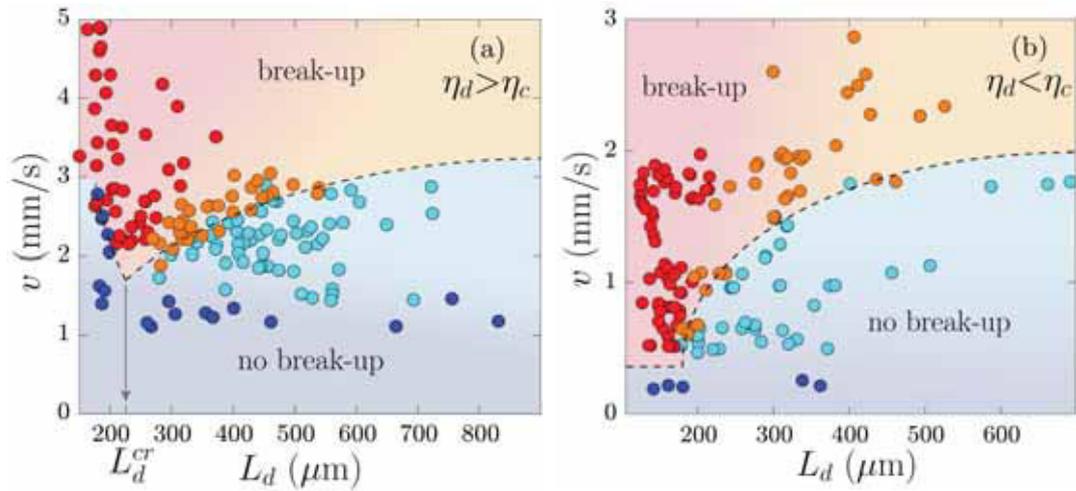


FIGURE 3.5: Diagrammes comportementaux répertoriant l'apparition des régimes de fragmentation précédemment introduits, pour deux systèmes fluides différents : (a) système liquide/liquide tel que  $\eta_d > \eta_c$ , (b) système liquide/liquide tel que  $\eta_d < \eta_c$ . En guise de guide pour les yeux, les lignes pointillées matérialisent les seuils de fragmentation. Le code couleur correspond à celui utilisé dans la figure 3.4. Les paramètres géométriques sont comparables pour les deux diagrammes présentés : (a)  $L = 300 \mu\text{m}$ ,  $w_1 = 67 \mu\text{m}$ ,  $w_2 = 33 \mu\text{m}$ ; (b)  $L = 300 \mu\text{m}$ ,  $w_1 = 63 \mu\text{m}$ ,  $w_2 = 37 \mu\text{m}$ . Figure tirée de [98].

fin de l'obstacle est tout d'abord une fonction décroissante de  $L_d$  pour  $L_d < L_d^{cr}$  (transition du régime 1 au régime 4), puis semble atteindre une valeur constante pour  $L_d > L_d^{cr}$  (transition du régime 1 au régime 2).

### 2.2.2 Cas $\eta_d < \eta_c$

Dans le second diagramme correspondant à la condition  $\eta_d < \eta_c$  (Fig. 3.5 (b)), la courbe du seuil de fragmentation est une fonction monotone croissante de  $L_d$ , nous n'observons pas de taille de *slug* critique dans ce cas. Par ailleurs, la vitesse seuil d'invasion du bras fin par le *slug* semble constante sur la gamme de taille  $L_d$  sondée. Notons enfin que les diagrammes comportementaux obtenus avec le système liquide/gaz, également de type  $\eta_d < \eta_c$ , exhibent les mêmes tendances, malgré les valeurs très différentes des paramètres caractéristiques ( $\eta_d, \gamma$ ) de ce système particulier.

Nous proposons dans la partie suivante d'interpréter ces différents résultats.

## 3 Interprétation

### 3.1 Arguments physiques, mise en équation

#### 3.1.1 Contribution visqueuse : loi de Hagen-Poiseuille

Dans le chapitre introductif de ce manuscrit, nous avons présenté l'analogie existant entre un écoulement laminaire, monophasique, permanent et newtonien dans un

canal rigide<sup>4</sup> et le déplacement des charges libres dans un circuit électrique. Dans le cadre d'un écoulement confiné entre deux plaques parallèles, nous avons montré que le saut de pression  $\Delta p$  et le débit volumique  $q$  sont reliés par la formule suivante :

$$\Delta p = R_h q \quad \text{avec} \quad R_h = \frac{12\eta L}{wh^3}, \quad (3.8)$$

où  $\eta$ ,  $L$ ,  $w$  et  $h$  désignent respectivement la viscosité dynamique du fluide, la longueur, la largeur et l'interstice entre les deux plaques. En dépit de la simplicité de la géométrie considérée, remarquons que ce résultat est généralisable à un canal de géométrie quelconque, la seule différence provenant d'une expression un peu différente, et en général plus complexe, pour la résistance hydrodynamique. Dans la géométrie d'intérêt de ce chapitre, constituée d'un canal rectangulaire de hauteur  $h$  et de largeur  $w$  *a priori* comparables, la résistance hydrodynamique prend la forme exacte suivante [26] :

$$R_h = \frac{12\eta L}{wh^3} \left[ 1 - \sum_{n \text{ impair} \geq 1} \frac{1}{n^5} \frac{192h}{\pi^5 w} \tanh\left(\frac{n\pi w}{2h}\right) \right]^{-1}. \quad (3.9)$$

Dans le cas limite  $h \ll w$ , nous retrouvons comme attendu le résultat issu de la géométrie constituée des deux plaques parallèles infinies. Les termes de la série de Fourier décroissent extrêmement rapidement, du fait du terme en  $n^5$  au dénominateur. De fait, nous pouvons facilement nous contenter d'un développement asymptotique de cette expression, conduisant aux expressions :

$$R_h \simeq \frac{12\eta L}{wh^3} \left( 1 - 0.63 \frac{h}{w} \right)^{-1} \quad \text{pour } h \leq w, \quad (3.10)$$

$$R_h \simeq \frac{12\eta L}{hw^3} \left( 1 - 0.63 \frac{w}{h} \right)^{-1} \quad \text{pour } w \leq h. \quad (3.11)$$

L'erreur induite par l'approximation faite est maximale lorsque  $h = w$ , et n'atteint pas 15% ; cette erreur chute rapidement sous les 0.2% lorsque  $h = w/2$ . Dans la suite, nous synthétisons ce résultat sous la forme :

$$R_h = \frac{\eta L}{wh^3} f\left(\frac{w}{h}\right). \quad (3.12)$$

### 3.1.2 Contribution capillaire : loi de Young-Laplace

Dans le cas d'un écoulement diphasique, la présence d'une interface courbée entre deux phases immiscibles induit une contribution capillaire supplémentaire au saut

---

4. Par souci de simplicité, nous supposons ici la parfaite rigidité du canal, malgré l'élasticité du PDMS. Pour aller plus loin et prolonger l'analogie avec l'électricité, il est possible de démontrer que la flexibilité du PDMS peut s'interpréter par le rajout d'un condensateur, de capacité hydrodynamique  $C_h$ , dans le circuit électrique équivalent. Comme pour la charge d'un condensateur, cela implique en particulier l'existence d'un temps caractéristique  $R_h C_h$  donnant la durée typique du régime transitoire pendant lequel l'élasticité du PDMS rentre en jeu. Cette échelle de temps, typiquement de l'ordre de 15 minutes, est toujours très grande devant le temps de passage d'un *slug* dans le module de fragmentation. De fait, ces effets d'élasticité ne viennent pas interférer dans le processus de fragmentation. En pratique, nous nous affranchissons du régime transitoire en prenant soin de mesurer les paramètres hydrodynamiques  $L_d$  et  $v$  de manière instantanée.

de pression calculé précédemment, les effets capillaires comportant d'autant plus de poids à mesure que le confinement augmente. Ce saut de pression capillaire s'exprime par la loi de Young-Laplace<sup>5</sup> [99] :

$$\Delta p = \gamma \kappa, \quad (3.13)$$

où  $\kappa$  désigne la courbure mathématique moyenne de l'interface. Nous pouvons décomposer la courbure avant du *slug* en une composante dans le plan ( $Oxy$ ) et une composante dans le plan perpendiculaire ( $Oxz$ ), de valeurs approximatives  $2/w$  et  $2/h$  respectivement (approximation sphérique). De fait, nous réécrivons le saut de pression capillaire comme :

$$\Delta p = 2\gamma \left( \frac{1}{w} + \frac{1}{h} \right). \quad (3.14)$$

Dans le cadre de l'analogie électro-hydraulique, ce saut de pression supplémentaire, indépendant du débit, peut se percevoir comme une batterie idéale de tension constante dans le circuit électrique équivalent.

Dans un souci de simplicité, nous ne prenons pas en compte dans l'expression du saut de pression total d'éventuels effets de type Bretherton modélisant la friction dans les films de phase continue mouillant les parois du canal [100, 101].

### 3.1.3 Expression générale du saut de pression

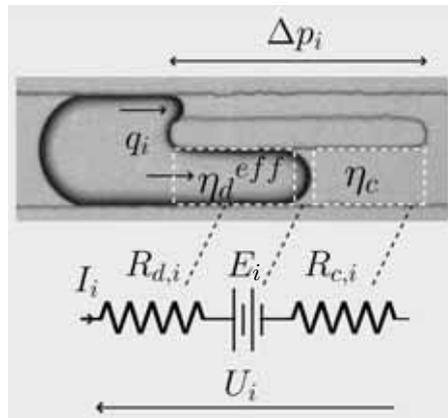


FIGURE 3.6: Décomposition du calcul du saut de pression dans le bras  $i$ .

La figure 3.6 illustre, dans le cas le plus général, la décomposition du calcul du saut de pression  $\Delta p_i$  dans le bras  $i$ , avec  $i = 1, 2$ , en présence d'une interface. en trois termes distincts.

- Une contribution visqueuse pour l'écoulement de la phase continue sur une longueur  $L - \ell_i$  :

$$\Delta p_{i,1} = \frac{\eta_c (L - \ell_i) f_i q_i}{w_i h^3}, \quad (3.15)$$

avec  $f_i = f(w_i/h)$ , fonction adimensionnée précédemment introduite.

5. Cette loi est à mettre au crédit de Thomas Young (1773-1829) et Pierre-Simon de Laplace (1749-1827), physiciens (entre autres) respectivement britannique et français.

- Une contribution visqueuse pour l'écoulement de la phase dispersée sur une longueur  $\ell_i$  :

$$\Delta p_{i,2} = \frac{\eta_d^{eff} \ell_i f_i q_i}{w_i h^3}, \quad (3.16)$$

où nous avons introduit pour le *slug* une viscosité effective  $\eta_d^{eff}$  afin de tenir compte de la dissipation visqueuse supplémentaire dans le film fin de phase continue situé entre le *slug* et les murs du canal, ainsi que dans les coins de la géométrie rectangulaire. Rappelons en effet les conditions de mouillage hydrophobes du micro-canal, couplées au fait que la forme du *slug* n'épouse pas la forme du canal. La viscosité effective  $\eta_d^{eff}$  dépend *a priori* de  $\eta_d$ ,  $\eta_c$ ,  $h$  et  $w_i$ . Comme le fait de considérer deux viscosités effectives différentes dans les bras 1 et 2 ne modifie pas drastiquement les résultats obtenus dans le cadre de ce modèle, nous considérons dans la suite que  $\eta_d^{eff}$  est identique dans les deux bras, et fait office de paramètre ajustable dans notre étude.

- Une contribution capillaire au niveau de l'interface entre les deux fluides :

$$\Delta p_{i,3} = 2\gamma \left( \frac{1}{w_i} + \frac{1}{h} \right). \quad (3.17)$$

Analogiquement à la loi d'additivité des tensions en électricité, nous obtenons finalement, par somme des termes d'amont en aval de l'écoulement :

$$\Delta p_i = \frac{\eta_d^{eff} \ell_i f_i q_i}{w_i h^3} + 2\gamma \left( \frac{1}{w_i} + \frac{1}{h} \right) + \frac{\eta_c (L - \ell_i) f_i q_i}{w_i h^3}. \quad (3.18)$$

Du fait que les interfaces touchent les bords du canal dans chacun des bras de l'obstacle, le coefficient de mobilité est pris égal à 1, et le débit  $q_i$  peut avantageusement être remplacé par :

$$q_i = h w_i \frac{d\ell_i}{dt}, \quad (3.19)$$

faisant ainsi directement intervenir la vitesse de l'interface dans le bras  $i$ .

### 3.1.4 Équations gouvernant le mouvement des interfaces

La dynamique du processus de fragmentation est entièrement contenue dans l'évolution temporelle des avancées des ménisques dans les bras 1 et 2, valant respectivement  $\ell_1(t)$  et  $\ell_2(t)$ . La détermination de ces deux fonctions inconnues passe donc par l'écriture d'un système de deux équations régissant leur évolution. Celui-ci est à nouveau dicté par l'analogie électro-hydraulique, imposant dans un premier temps un débit conservatif par la loi des nœuds<sup>6</sup> :

$$q = q_1 + q_2, \quad (3.20)$$

$$wv = w_1 \frac{d\ell_1}{dt} + w_2 \frac{d\ell_2}{dt}. \quad (3.21)$$

---

<sup>6</sup>. Cette équation correspond physiquement à la conservation de la masse du *slug*, tout comme la loi des nœuds en électricité correspond à la conservation de la charge.

La seconde équation est dictée par la loi des mailles, égalisant les sauts de pression dans les deux bras de l'obstacle :

$$\Delta p_1 = \Delta p_2. \quad (3.22)$$

En présence d'interfaces dans les deux bras, cette dernière peut se réécrire comme :

$$\frac{\eta_c L f_1}{h^2} \frac{d\ell_1}{dt} \left( 1 + \frac{\eta_d^{eff} - \eta_c \ell_1}{\eta_c L} \right) + \frac{2\gamma}{w_1} = \frac{\eta_c L f_2}{h^2} \frac{d\ell_2}{dt} \left( 1 + \frac{\eta_d^{eff} - \eta_c \ell_2}{\eta_c L} \right) + \frac{2\gamma}{w_2}. \quad (3.23)$$

Les conditions initiales à respecter s'écrivent simplement :  $\ell_1(0)=0$ ,  $\ell_2(0)=0$ . Les expériences montrent qu'à tout instant, l'arrière du *slug* se déplace à la vitesse constante  $v$ . Nous définissons l'instant final  $t_f$  au moment où l'arrière vient heurter l'obstacle ; nous écrivons donc  $t_f$  sous la forme :

$$t_f = \frac{L_d^{eff}}{v}, \quad (3.24)$$

en tenant compte d'une longueur effective  $L_d^{eff}$  pour le *slug*, afin de prendre en considération la courbure de ses interfaces. Pour fixer les idées, nous pouvons par exemple apparenter le *slug* réel, de volume approximatif  $h[(L_d - w)w + \pi w^2/4]$  (Fig. 3.1), à un *slug* effectif de volume parallélépipédique  $L_d^{eff}wh$ . Ce raisonnement conduit à la relation :

$$L_d^{eff} = L_d - w \left( 1 - \frac{\pi}{4} \right) < L_d, \quad (3.25)$$

nous retiendrons donc l'expression finale de  $t_f$  suivante :

$$t_f = \frac{L_d - cw}{v}, \quad (3.26)$$

avec un paramètre  $c$  sans dimension, de l'ordre de l'unité. La variation de ce paramètre est sans doute beaucoup plus complexe, notamment en fonction de la géométrie du canal ( $w/h$ ,  $w_2/h$ ,  $w_1/h$ ) ;  $c$  fait office de paramètre ajustable dans la suite de ce chapitre. À présent, nous nous attachons donc à résoudre le système d'équations différentielles couplées (Éq. 3.21, Éq. 3.23).

## 3.2 Résolution

### 3.2.1 Adimensionnement du problème

Dans le but de simplifier les équations et faire émerger les paramètres pertinents du problème, mettons les équations sous forme adimensionnée. De façon naturelle, définissons tout d'abord l'échelle de temps adimensionnée  $T=t/t_f$ , où l'intervalle temporel de résolution s'écrit donc  $T=0-1$ . Adimensionnons les avancées des interfaces  $\ell_i$  par la longueur de l'obstacle, soit  $X_i = \ell_i/L$ . À partir des dix paramètres dénombrés plus haut (en ayant comme convenu laissé le paramètre  $\lambda$  de côté pour cette étude de fragmentation isolée), il est possible, d'après le théorème de Vaschy-

Buckingham, de construire sept groupements adimensionnels :

$$\boxed{\begin{aligned} W &= \frac{w_2}{w_1} \quad , \quad \frac{w}{h} \quad , \quad \frac{w_2}{h} \quad , \quad Z = \frac{h^2}{f_1 w L} \\ \frac{L_d^{eff}}{L} \quad , \quad \Delta\eta &= \frac{\eta_d^{eff} - \eta_c}{\eta_c} \quad , \quad \mathcal{C} = \frac{\eta_c v}{\gamma} \end{aligned}} \quad (3.27)$$

Les quatre groupements supérieurs ne dépendent que des paramètres géométriques. Remarquons, parmi les trois groupements inférieurs, l'intervention du contraste de viscosité adimensionné  $\Delta\eta$  entre les deux phases. Ce nombre adimensionné est algébrique, nous montrons plus loin son rôle crucial dans la résolution du système d'équations différentielles, comme le laissent présager les résultats expérimentaux de la figure 3.5. Par ailleurs, le nombre capillaire  $\mathcal{C}$  est au cœur de ce problème, puisqu'il compare de façon inhérente les deux effets antagonistes impliqués : au numérateur, les effets visqueux tendent à déformer la goutte, jusqu'à la fragmenter. Au dénominateur, les effets de tension de surface ont au contraire tendance à s'opposer à cette déformation. De fait, ce nombre adimensionné intervient très souvent dans des problèmes de fragmentation en milieu confiné [18, 19, 20, 21]. Moyennant ce passage aux grandeurs adimensionnées, le système d'équations (Éq. 3.21, Éq. 3.23) peut se réécrire :

$$\frac{dX_1}{dT} + W \frac{dX_2}{dT} = \alpha, \quad (3.28)$$

$$(1 + \Delta\eta X_1) \frac{dX_1}{dT} - FW(1 + \Delta\eta X_2) \frac{dX_2}{dT} = \alpha \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}}, \quad (3.29)$$

avec :

$$\alpha = \frac{L_d^{eff} w}{L w_1} \quad , \quad F = \frac{f_2}{W f_1} \quad \text{et} \quad \mathcal{C}_* = \frac{2Z(1 - W)}{W}, \quad (3.30)$$

d'autres variables sans dimension introduites pour simplifier l'écriture. Ce système d'équations est valable en présence d'une interface dans chaque bras de l'obstacle, c'est-à-dire lorsque  $X_1 \leq 1$  et  $X_2 \leq 1$ .

### 3.2.2 Conditions d'invasion du bras fin de l'obstacle

À l'instant initial  $T=0$ , le débit imposé en amont de l'obstacle force l'introduction d'une interface dans le bras large de façon préférentielle, puisque la pression de Laplace et la résistance hydrodynamique y sont moindres que dans le bras fin. Tant qu'aucune interface ne pénètre dans le bras fin, l'équation 3.29 ne peut s'appliquer, et nous avons  $X_2=0$  et  $dX_2/dt = 0$ . Cherchons le temps d'invasion  $T_p$  au bout duquel un ménisque envahit ce bras fin. L'équation 3.28 s'intègre directement :

$$X_1 = \alpha T. \quad (3.31)$$

Le saut de pression dans le bras 1 s'écrit donc :

$$\Delta p_1 = \frac{\eta_c L f_1 q}{w_1 h^3} \left[ 1 + \Delta\eta \alpha T + \frac{2Z}{\mathcal{C}} \left( 1 + \frac{w_1}{h} \right) \right]. \quad (3.32)$$

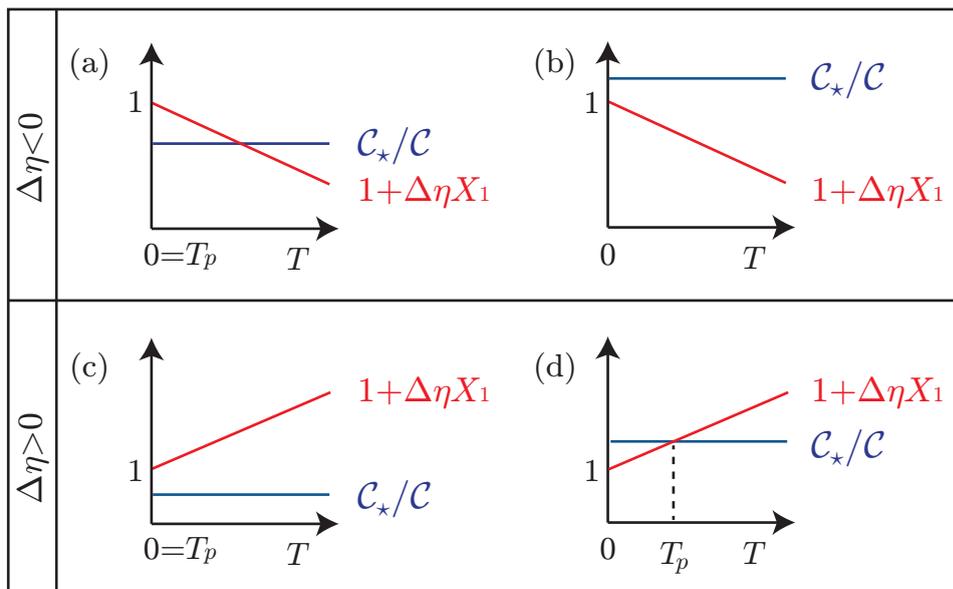


FIGURE 3.7: Résolution schématique de l'inéquation 3.34 dans quatre cas distincts : (a)  $\Delta\eta < 0$  et  $\mathcal{C} > \mathcal{C}_*$ , (b)  $\Delta\eta < 0$  et  $\mathcal{C} < \mathcal{C}_*$ , (c)  $\Delta\eta > 0$  et  $\mathcal{C} > \mathcal{C}_*$ , (d)  $\Delta\eta > 0$  et  $\mathcal{C} < \mathcal{C}_*$ .

Remarquons que  $\Delta p_1$  est une fonction affine du temps adimensionné  $T$ , dont le signe de la pente est donné par le signe de  $\Delta\eta$ . L'invasion du bras fin de l'obstacle pourra finalement se réaliser si ce saut de pression  $\Delta p_1$  parvient à surpasser le saut de pression capillaire correspondant, soit :

$$\Delta p_1 > \frac{2\gamma}{w_2} \left(1 + \frac{w_2}{h}\right), \quad (3.33)$$

cette condition pouvant se réexprimer à l'aide de l'équation 3.32 comme :

$$1 + \Delta\eta \alpha T > \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}}. \quad (3.34)$$

Résolvons cette condition en distinguant les cas de figure  $\Delta\eta < 0$  et  $\Delta\eta > 0$ , à l'aide de la figure 3.7.

**Cas  $\Delta\eta < 0$**  Dans ce cas, le terme à gauche de l'inéquation 3.34 décroît dans le temps. Ainsi, si ce terme est supérieur au membre de droite à l'instant initial (soit si  $\mathcal{C} > \mathcal{C}_*$ ), alors une interface se développe dans le bras fin à l'instant  $T=0$ , soit finalement  $T_p = 0$ . Si en revanche, ce terme est inférieur au membre de droite dès l'instant initial (soit si  $\mathcal{C} < \mathcal{C}_*$ ), il ne pourra jamais le surpasser, et aucune interface ne peut se développer dans le bras fin,  $T_p$  n'admet aucune solution dans ce cas. La condition d'invasion du bras fin s'écrit finalement :

$$\mathcal{C} > \mathcal{C}_*. \quad (3.35)$$

Ce critère sur le nombre capillaire marque une limite supérieure d'existence pour le régime 1 (non fragmentation sans rétraction), cette limite étant en particulier indépendante de  $L_d^{eff}/L$ .

**Cas  $\Delta\eta > 0$**  Dans ce second cas, le terme à gauche de l'inéquation 3.34 croît avec le temps. De nouveau, si ce terme est supérieur au membre de droite à l'instant initial (soit si  $\mathcal{C} > \mathcal{C}_*$ ), il le reste, et une interface se développe dans le bras fin dès l'instant initial, soit  $T_p = 0$ . Si en revanche, ce terme est inférieur au membre de droite à  $T=0$  (soit si  $\mathcal{C} < \mathcal{C}_*$ ), il peut être amené à le surpasser pour un temps adimensionné  $T_p$  donné par :

$$T_p = \frac{1}{\alpha\Delta\eta} \left( \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}} - 1 \right). \quad (3.36)$$

Ce temps est positif selon l'hypothèse  $\mathcal{C} < \mathcal{C}_*$ . Afin que l'invasion du bras fin se produise, il faut encore vérifier deux conditions simultanées. D'une part, il faut que cet instant  $T_p$  soit antérieur à l'instant final, soit  $T_p < 1$ . D'autre part, il faut que  $X_1(T_p) = \alpha T_p < 1$ , puisque le saut de pression  $\Delta p_1$  reste constant dans le temps dès lors que l'interface présente dans le bras large en est sortie, et de fait ne peut plus atteindre la pression de Laplace nécessaire pour l'introduction d'un ménisque dans le bras fin. Ces deux conditions se réécrivent donc :

$$\mathcal{C} > \frac{\mathcal{C}_*}{1 + \alpha\Delta\eta}, \quad (3.37)$$

$$\mathcal{C} > \frac{\mathcal{C}_*}{1 + \Delta\eta}. \quad (3.38)$$

Pour  $\alpha \leq 1$ , la condition la plus stricte est donnée par l'équation 3.37, alors que pour  $\alpha \geq 1$ , la condition la plus stricte est fournie par l'équation 3.38. La résolution combinée de ces équations fournit finalement le résultat suivant :

$$\mathcal{C} > \frac{\mathcal{C}_*}{1 + \alpha\Delta\eta} \quad \text{si } \alpha \leq 1, \quad (3.39)$$

$$\mathcal{C} > \frac{\mathcal{C}_*}{1 + \Delta\eta} \quad \text{si } \alpha \geq 1. \quad (3.40)$$

Ainsi, lorsque  $\Delta\eta > 0$ , le nombre capillaire marquant la limite supérieure de la zone d'existence du régime 1 est une fonction décroissante en  $\alpha$  pour  $\alpha \leq 1$ , puis constante pour  $\alpha \geq 1$ , ces résultats se démarquent nettement du cas  $\Delta\eta < 0$ .

En représentant les résultats de la figure 3.1 dans un diagramme adimensionné  $(L_d/L, \mathcal{C})$ , nous remarquons que les critères d'invasion développés par cette analyse sont en bon accord avec les expériences (Fig. 3.8). En particulier dans le cas  $\Delta\eta < 0$ , le seuil d'invasion  $\mathcal{C} = \mathcal{C}_*$ , uniquement fixé par la géométrie de la puce, ajuste bien les résultats expérimentaux. Il est également intéressant de remarquer que dans le cas d'un obstacle centré, la condition  $W=1$  (Éq. 3.27) aboutit au résultat  $\mathcal{C}_* = 0$  (Éq. 3.30). Ainsi, tous les nombres capillaires de transition déterminés ici s'annulent. Physiquement parlant, cela signifie que sans aucune brisure de symétrie sur l'obstacle, le *slug* envahit automatiquement les deux bras de manière identique, et le régime 1 voit sa zone d'existence réduite à néant.

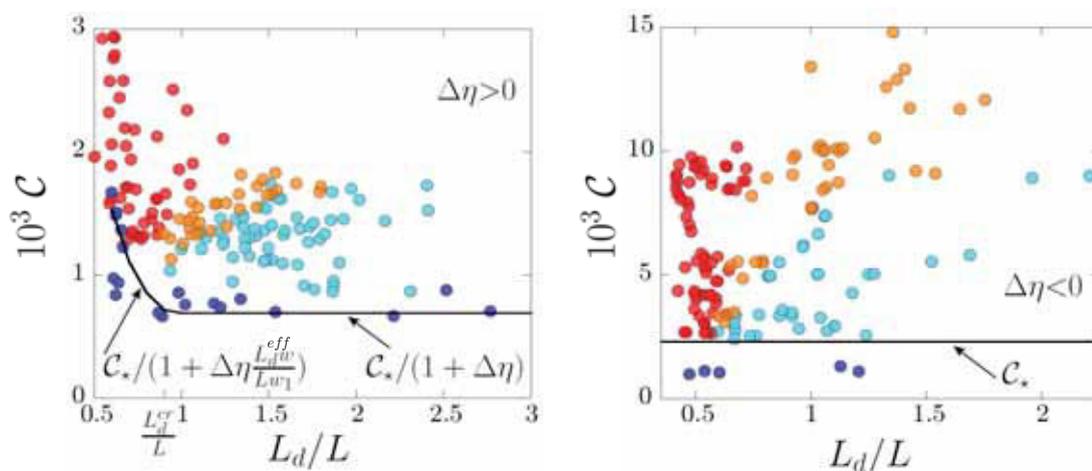


FIGURE 3.8: Conditions d'invasion du bras fin de l'obstacle : comparaison des résultats expérimentaux et issus du modèle, dans les cas  $\Delta\eta > 0$  (a) et  $\Delta\eta < 0$  (b). Les paramètres libres valent :  $c = 0.9$  et  $\Delta\eta = 8$  dans le cas (a). Les lignes continues correspondent aux prédictions théoriques.

### 3.2.3 Dynamiques des deux interfaces

Si un ménisque a réussi à envahir le bras fin de l'obstacle, la dynamique des deux interfaces, pour  $T \geq T_p$ , est régie par le système d'équations (Éq. 3.28, Éq. 3.29). Notons ici un point intéressant : les expériences montrent parfois que l'interface située dans le bras large en sort avant l'instant final  $T=1$ , pour lequel l'arrière du *slug* vient heurter l'obstacle. Dans ce cas, l'expression du saut de pression  $\Delta p_1$  ne comporte plus de contribution capillaire. Il convient alors de réécrire l'égalité des sauts de pression, décrite par l'équation 3.23, comme ci-après<sup>7</sup> :

$$\frac{\eta_d^{eff} L f_1}{h^2} \frac{d\ell_1}{dt} = \frac{\eta_c L f_2}{h^2} \frac{d\ell_2}{dt} \left( 1 + \frac{\eta_d^{eff} - \eta_c \ell_2}{\eta_c} \frac{1}{L} \right) + \frac{2\gamma}{w_2} \left( 1 + \frac{w_2}{h} \right), \quad (3.41)$$

soit, sous forme adimensionnée :

$$(1 + \Delta\eta) \frac{dX_1}{dT} - FW(1 + \Delta\eta X_2) \frac{dX_2}{dT} = \alpha \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}} \frac{1 + w_2/h}{1 - W}. \quad (3.42)$$

Bien que cette situation ne soit pas observable expérimentalement, si le *slug* était assez grand, nous pourrions imaginer que l'interface située dans le bras fin puisse également en sortir avant l'instant final. Cette situation correspond à une forme particulièrement simple pour l'égalité des sauts de pression :

$$f_1 \frac{d\ell_1}{dt} = f_2 \frac{d\ell_2}{dt}, \quad (3.43)$$

soit, sous forme adimensionnée :

$$\frac{dX_1}{dT} - FW \frac{dX_2}{dT} = 0. \quad (3.44)$$

7. Même si la quantité  $\ell_1$  n'a plus vraiment de sens dans ce cas, nous gardons la notation  $d\ell_1/dt$ , définie par abus de langage comme  $q_1/hw_1$ .

À l'aide de la conservation du débit (Éq. 3.28), il vient immédiatement :

$$\frac{dX_1}{dT} = \frac{\alpha F}{1+F} \quad \text{et} \quad \frac{dX_2}{dT} = \frac{\alpha}{W(1+F)}, \quad (3.45)$$

relations analogues à un diviseur de courant classique en électricité.

### 3.2.4 Conditions de rétraction dans le bras fin de l'obstacle

Analysons maintenant sous quelles conditions l'interface située dans le bras fin de l'obstacle peut subir une rétraction, caractéristique des régimes 2 (non fragmentation avec rétraction) et 3 (fragmentation avec rétraction). Cette rétraction s'opère lorsque cette interface, après avoir envahi le bras fin, vérifie  $dX_2/dT < 0$  à un instant  $T$  donné, intervenant avant l'instant final  $T = 1$ . Si une interface est encore dans le bras large de l'obstacle, cette dérivée première peut se réécrire, à l'aide des équations 3.28 et 3.29 comme :

$$\frac{dX_2}{dT} = \frac{\alpha(1 + \Delta\eta X_1 - \mathcal{C}_*/\mathcal{C})}{FW(1 + \Delta\eta X_2) + W(1 + \Delta\eta X_1)}. \quad (3.46)$$

Si l'interface présente initialement dans le bras large en est sortie,  $dX_2/dT$  peut s'écrire, à l'aide des équations 3.28 et 3.42 comme :

$$\frac{dX_2}{dT} = \frac{\alpha \left( 1 + \Delta\eta - \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}} \frac{1+w_2/h}{1-W} \right)}{FW(1 + \Delta\eta X_2) + W(1 + \Delta\eta)}. \quad (3.47)$$

Dans les deux cas traités, le dénominateur de la fraction est positif, le signe de  $dX_2/dT$  est donc donné par le signe des quantités  $1 + \Delta\eta X_1 - \mathcal{C}_*/\mathcal{C}$  d'une part,  $1 + \Delta\eta - [\mathcal{C}_*(1 + w_2/h)]/[\mathcal{C}(1 - W)]$  d'autre part. Ainsi, dans le cas d'une interface encore présente dans le bras large, la condition  $dX_2/dT < 0$  se réécrit :

$$\mathcal{C} < \frac{\mathcal{C}_*}{1 + \Delta\eta X_1}. \quad (3.48)$$

Dans le cas où cette interface est sortie du bras large, la condition  $dX_2/dT < 0$  se réécrit :

$$\mathcal{C} < \frac{\mathcal{C}_*(1 + w_2/h)}{(1 + \Delta\eta)(1 - W)} = \mathcal{C}_{**}. \quad (3.49)$$

Procédons à nouveau par disjonction des cas, selon le signe de  $\Delta\eta$ .

**Cas  $\Delta\eta > 0$**  Dans le cas d'une interface encore présente dans le bras large, la condition 3.48 ne peut être satisfaite pour  $\mathcal{C} > \mathcal{C}_*$ . Lorsque  $\mathcal{C} < \mathcal{C}_*$ , pour pouvoir observer une rétraction de l'interface dans le bras fin de l'obstacle, il faut tout d'abord qu'elle y soit rentrée. En  $T=T_p$ , cette condition s'écrit, d'après les équations 3.31 et 3.34 :

$$\mathcal{C} > \frac{\mathcal{C}_*}{1 + \Delta\eta X_1}. \quad (3.50)$$

Ce critère est ostensiblement incompatible avec la condition de rétraction donnée par l'équation 3.48, prise également en  $T=T_p$ . Aux instants ultérieurs, Comme  $X_1$  croît avec le temps (par simple combinaison des équations 3.28 et 3.29, nous obtenons  $dX_1/dT > 0$ ), la condition 3.48 ne peut être satisfaite ultérieurement. Ainsi, dans le

cas  $\Delta\eta > 0$ , il ne peut y avoir rétraction que lorsque l'interface issue du bras large en est sortie. Ceci implique la condition  $\mathcal{C} < \mathcal{C}_{**}$ , tout en assurant que l'instant auquel l'interface sort du bras large, noté  $T_1$ , vérifie  $T_1 < 1$ . Distinguons alors les cas  $\alpha \leq 1$  et  $\alpha \geq 1$ .

**Cas  $\alpha \leq 1$**  Ce cas est particulièrement simple à traiter, puisque le *slug* est trop petit pour voir une interface sortir du bras large avant que l'arrière ne vienne heurter l'obstacle. En effet, en supposant que tout le *slug*, de volume  $L_d^{eff}wh$ , aille dans le bras large, la conservation du volume implique donc que son interface dans le bras large atteigne une position maximale,  $X_{1,\max}$ , vérifiant :

$$hw_1LX_{1,\max} = hwL_d^{eff}, \quad (3.51)$$

$$X_{1,\max} = \frac{L_d^{eff}w}{Lw_1} = \alpha \leq 1. \quad (3.52)$$

Comme  $X_1 \leq X_{1,\max} \leq 1$ , les interfaces dans les bras large et fin n'ont respectivement pas le temps de sortir et de se rétracter avant l'instant final. De fait, les régimes 2 et 3 ne présentent aucune zone d'existence dans le cas  $\Delta\eta > 0$ ,  $\alpha \leq 1$ . Par déduction, au-dessus de la limite supérieure d'existence du régime 1 (Éq. 3.39), nous retrouvons la zone d'existence du régime 4 (fragmentation sans rétraction). Ces prédictions sont en accord avec les expériences (voir Fig. 3.5 et Fig. 3.8).

**Cas  $\alpha \geq 1$**  Afin de résoudre la condition  $T_1 < 1$ , cherchons à déterminer l'instant  $T_1$  auquel l'interface située dans le bras large atteint la position  $X_1 = 1$ . Afin de concilier les cas  $\mathcal{C} < \mathcal{C}_*$  et  $\mathcal{C} > \mathcal{C}_*$ , généralisons l'expression de  $T_p$  comme suit (Éq. 3.36) :

$$T_p = \frac{\delta}{\alpha\Delta\eta} \left( \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}} - 1 \right), \quad (3.53)$$

avec  $\delta=1$  pour  $\mathcal{C} \leq \mathcal{C}_*$ , et  $\delta=0$  pour  $\mathcal{C} \geq \mathcal{C}_*$ . Intégrons alors l'équation 3.28 entre  $T_p$  et  $T_1$ , en utilisant les résultats  $X_2(T_p) = 0$ ,  $X_1(T_p) = \alpha T_p$  et, par définition,  $X_1(T_1) = 1$  :

$$X_2(T_1) = \frac{\alpha T_1 - 1}{W}. \quad (3.54)$$

Intégrons de la même façon l'équation 3.29 entre  $T_p$  et  $T_1$  en y injectant l'expression obtenue pour  $X_2(T_1)$ . Nous obtenons alors une équation du second degré à laquelle  $T_1$  doit satisfaire :

$$\frac{\Delta\eta F}{2W} \alpha^2 T_1^2 + \alpha T_1 \left[ \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}} + F \left( 1 - \frac{\Delta\eta}{W} \right) \right] + \Delta\eta \frac{F - W}{2W} - (1 + F) - \frac{\delta}{2\Delta\eta} \left( \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}} - 1 \right)^2 = 0. \quad (3.55)$$

Après résolution de cette équation, imposer la condition  $T_1 < 1$  revient à imposer le critère  $\mathcal{C} < \mathcal{C}_*/Y_a$ , où la quantité  $Y_a$  est solution de l'équation du second degré suivante :

$$\frac{\Delta\eta F}{2W} \alpha^2 + \left[ \alpha F \left( 1 - \frac{\Delta\eta}{W} \right) + \Delta\eta \frac{F - W}{2W} - (1 + F) \right] + \alpha Y_a - \delta \frac{(Y_a - 1)^2}{2\Delta\eta} = 0. \quad (3.56)$$

Finalement, la combinaison des conditions nécessaires pour apercevoir une rétraction de l'interface dans le bras fin, dans le cas  $\Delta\eta > 0$  et  $\alpha \geq 1$ , peut se résumer de la façon suivante :

$$\frac{\mathcal{C}_\star}{1 + \Delta\eta} < \mathcal{C} < \min\left(\frac{\mathcal{C}_\star}{Y_a}, \mathcal{C}_{\star\star}\right). \quad (3.57)$$

Notons que pour des *slugs* assez grands, soit au-delà d'une certaine valeur de  $\alpha$ , la condition  $T_1 < 1$  est facilement satisfaite. Ceci peut se deviner par la structure de l'équation 3.55, où il est aisé de montrer que la solution recherchée vérifie automatiquement  $T_1 \propto 1/\alpha$ , cette solution décroît donc avec  $\alpha$ . Dans ce cas, la limite d'existence supérieure des régimes avec rétraction prédite par l'équation 3.57 se réécrit donc  $\mathcal{C} < \mathcal{C}_{\star\star}$ , valeur indépendante de  $\alpha$ .

**Cas  $\Delta\eta < 0$**  La situation est légèrement plus complexe dans le cas  $\Delta\eta < 0$ . En effet, la rétraction peut dans ce cas se produire alors qu'une interface est encore présente dans le bras large. Notons  $T_r$  l'instant auquel se produit cette rétraction. En annulant la dérivée première  $dX_2/dT < 0$  dans l'équation 3.46, nous obtenons :

$$X_1(T_r) = \frac{1}{\Delta\eta} \left( \frac{\mathcal{C}_\star}{\mathcal{C}} - 1 \right). \quad (3.58)$$

Cette quantité est positive dès lors que  $\mathcal{C} > \mathcal{C}_\star$ , correspondant au critère d'invasion du bras fin de l'obstacle. La rétraction ne peut s'effectuer que si  $X_1(T_r) < 1$ , ainsi que  $T_r < 1$ . La première condition aboutit au critère suivant :

$$\mathcal{C} < \frac{\mathcal{C}_\star}{1 + \Delta\eta}. \quad (3.59)$$

La deuxième impose à nouveau de déterminer  $T_r$  par l'intégration successive des équations 3.28 et 3.29 entre les instants  $T = 0$  et  $T_r$  :

$$X_2(T_r) = \frac{\alpha T_r - X_1(T_r)}{W}. \quad (3.60)$$

Nous montrons alors que  $T_r$  est solution de l'équation du second degré suivante :

$$\begin{aligned} & \frac{\Delta\eta F}{2W} \alpha^2 T_r^2 + \alpha T_r \left[ \frac{\mathcal{C}_\star}{\mathcal{C}} \left( 1 - \frac{F}{W} \right) + F \left( 1 + \frac{1}{W} \right) \right] \\ & - \frac{1}{\Delta\eta} \left( \frac{\mathcal{C}_\star}{\mathcal{C}} - 1 \right) \left[ 1 + F + \frac{1}{2W} \left( \frac{\mathcal{C}_\star}{\mathcal{C}} - 1 \right) (W - F) \right] = 0. \end{aligned} \quad (3.61)$$

La condition  $T_r < 1$  se traduit donc par un nouveau critère sur le nombre capillaire  $\mathcal{C} < \mathcal{C}_\star/Y_b$ , où  $Y_b$  est à présent solution de l'équation du second degré :

$$\frac{\Delta\eta F}{2W} \alpha^2 + \alpha \left[ Y_b \left( 1 - \frac{F}{W} \right) + F \left( 1 + \frac{1}{W} \right) \right] - \frac{Y_b - 1}{\Delta\eta} \left[ 1 + F + \frac{Y_b - 1}{2W} (W - F) \right] = 0. \quad (3.62)$$

Si ces conditions ne sont pas vérifiées, la rétraction peut également avoir lieu à l'instant  $T_1$  tel que  $X_1(T_1) = 1$ , si tant est que :

$$\mathcal{C} < \frac{2Z}{1 + \Delta\eta} \frac{1 + w_2/h}{W} = \mathcal{C}_{\star\star}, \quad (3.63)$$

d'après l'équation 3.47, mais également que  $T_1 < 1$ . En prenant  $T_p = 0$ , soit  $\delta = 0$  dans l'équation 3.55, ce calcul a déjà été traité dans le cas  $\Delta\eta > 0$ . Nous pouvons donc résumer les différents critères de rétraction ci-dessous :

$$\mathcal{C}_* < \mathcal{C} < \frac{\mathcal{C}_*}{Y_b} \quad \text{si } \mathcal{C} \leq \frac{\mathcal{C}_*}{1 + \Delta\eta}, \quad (3.64)$$

$$\mathcal{C}_* < \mathcal{C} < \min\left(\frac{\mathcal{C}_*}{Y_a}, \mathcal{C}_{**}\right) \quad \text{si } \mathcal{C} \geq \frac{\mathcal{C}_*}{1 + \Delta\eta}. \quad (3.65)$$

De fait, la remarque concernant les grands *slugs* peut être généralisée, quel que soit le signe de  $\Delta\eta$ .

### 3.2.5 Conditions de fragmentation

Enfin, les conditions de fragmentation s'obtiennent en imposant qu'une interface a envahi le bras fin de l'obstacle, ce qui nous renvoie aux critères d'invasion précédemment calculés, avec en plus la condition  $X_2(T = 1) > 0$ , la transition étant obtenue au seuil :  $X_2(1) = 0$ . La résolution analytique de cette condition étant laborieuse, nous ne la détaillons pas ici, les simulations numériques nous permettant toutefois d'avoir accès à cette transition, exprimée, comme d'habitude, à l'aide du nombre capillaire  $\mathcal{C}$ . Discutons tout de même le cas  $\alpha \leq 1$  particulièrement simple à résoudre, en distinguant une fois encore le raisonnement selon le signe du contraste de viscosité.

**Cas  $\alpha \leq 1$  et  $\Delta\eta > 0$**  Dans ce cas, la transition de fragmentation est directement donnée par le critère d'invasion de l'équation 3.39. En effet, les régimes 2 et 3 ne comportent pas de zone d'existence dans ce cas de figure.

**Cas  $\alpha \leq 1$  et  $\Delta\eta < 0$**  Dans ce cas, la fragmentation se produit alors qu'il reste encore une interface dans le bras large. En effet, l'intégration de l'équation 3.28 entre les instants  $T = 0$  et  $T = 1$  fournit, en utilisant au seuil de fragmentation  $X_2(1) = 0$ , la condition  $X_1(1) = \alpha \leq 1$ ; autrement dit, nous retrouvons tout le volume du *slug* dans le bras large de l'obstacle. L'intégration de l'équation 3.29 entre les mêmes instants donne alors, au seuil :

$$\alpha + \Delta\eta \frac{\alpha^2}{2} = \alpha \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}}, \quad (3.66)$$

$$\mathcal{C} = \frac{\mathcal{C}_*}{1 + \alpha\Delta\eta/2}. \quad (3.67)$$

## 4 Comparaison avec l'expérience

### 4.1 Diagrammes comportementaux

Nous reportons sur la figure 3.9 une comparaison entre les deux jeux de données expérimentaux, pour  $\Delta\eta > 0$  et  $\Delta\eta < 0$ , et les transitions théoriques entre les différents régimes tirées de l'analyse précédente. Nous retrouvons la présence des quatre régimes hydrodynamiques identifiés expérimentalement, dont les zones d'existence

sont délimitées de façon assez satisfaisante par les courbes théoriques. En dépit de l'existence des deux variables d'ajustement  $c$  et  $\Delta\eta$ , l'accord est plutôt flatteur, compte tenu de la simplicité des arguments utilisés pour décrire ce processus, et de la complexité de ce problème, soumis à la dépendance de sept groupements adimensionnels. Ces résultats mettent en exergue le rôle important joué par le contraste de viscosité : selon son signe, les dynamiques des deux ménisques dans les bras large et fin de l'obstacle sont drastiquement différentes, et la courbe matérialisant le seuil de fragmentation est respectivement monotonique lorsque  $\Delta\eta < 0$ , et non monotonique lorsque  $\Delta\eta > 0$ .

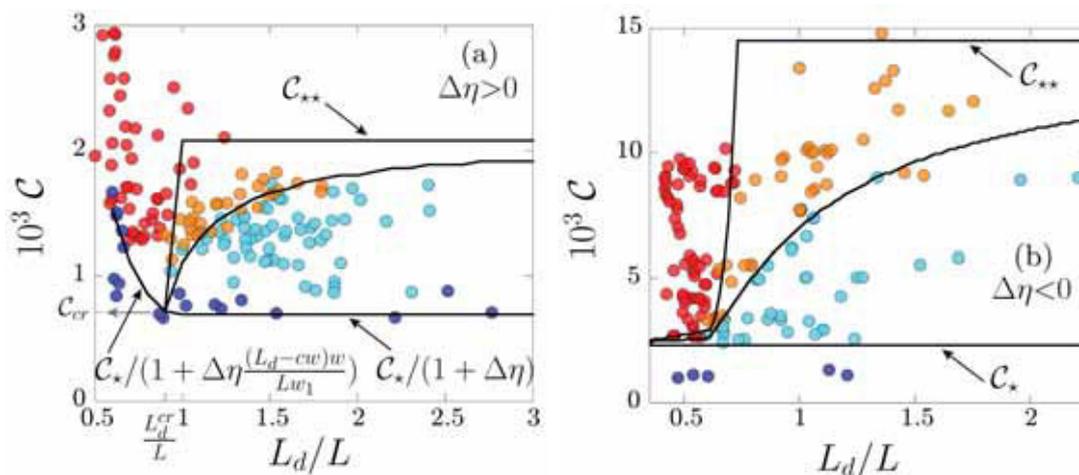


FIGURE 3.9: Diagrammes comportementaux : comparaison des résultats expérimentaux et issus du modèle, dans les cas  $\Delta\eta > 0$  (a) et  $\Delta\eta < 0$  (b). Les points colorés correspondent aux expériences et font référence au code couleur introduit dans la figure 3.4. Les courbes noires correspondent aux transitions théoriques entre les différents régimes de fragmentation. Les paramètres libres valent :  $c = 0.9$  et  $\Delta\eta = 8$  dans le cas (a),  $c = 0.6$  et  $\Delta\eta = -0.2$  dans le cas (b).

Rappelons que le modèle simpliste décrit ici s'applique aussi bien aux gouttes qu'aux bulles. À ce titre, la figure 3.10 montre un diagramme comportemental réalisé avec des bulles et un obstacle de longueur  $L=300 \mu\text{m}$ , nous remarquons un accord assez bon entre expérience et théorie. Les légers écarts pourraient s'expliquer par l'expression du saut de pression choisie dans le modèle : dans le cas des bulles, un raffinement consisterait à tenir compte d'une perte de charge supplémentaire de type Bretherton, elle-même fonction du nombre capillaire. Pour des bulles, il est intéressant de remarquer que le très fort contraste de viscosité entre les deux phases  $\eta_d^{eff} \ll \eta_c$  implique pour  $\Delta\eta$  une valeur proche de  $-1$ . De fait, la valeur de  $C_{**}$  (Éq. 3.49) diverge à l'infini, donnant aux transitions théoriques une allure générale assez abrupte en comparaison avec les systèmes liquide/liquide.

Enfin, ces différences drastiques dans les dynamiques des ménisques selon le signe de  $\Delta\eta$ , déjà entrevues dans la littérature [21], rappellent d'une certaine manière l'in-

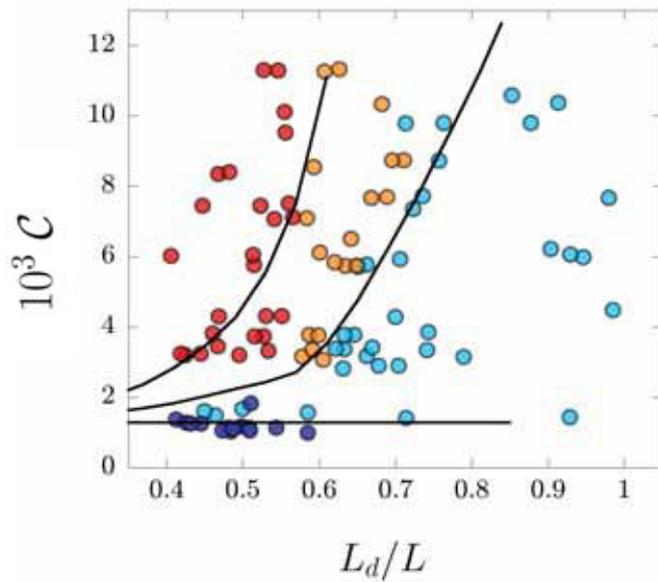


FIGURE 3.10: Diagramme comportemental établi avec le système air/liquide et un obstacle de longueur  $L = 300 \mu\text{m}$ . Les points colorés correspondent aux expériences et font référence au code couleur introduit dans la figure 3.4. Les courbes noires correspondent aux transitions théoriques entre les différents régimes de fragmentation.

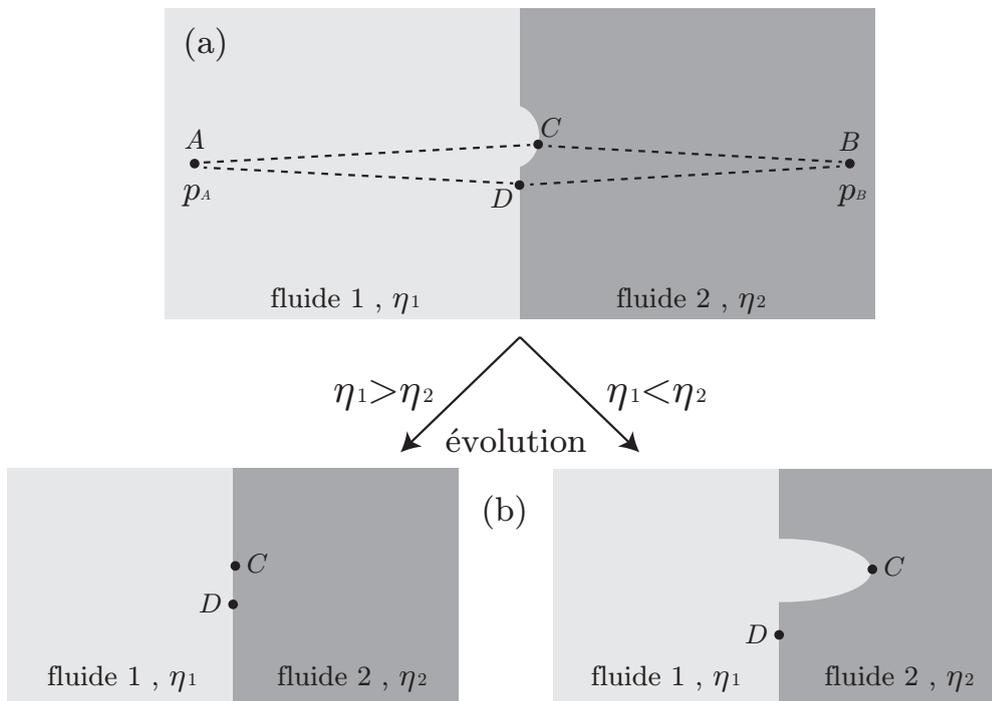


FIGURE 3.11: Schéma explicatif de l'instabilité de Saffman-Taylor.

stabilité de Saffman-Taylor<sup>8</sup> [102]. Celle-ci intervient lorsqu'un fluide de viscosité  $\eta_1$

8. Philip Geoffrey Saffman (1931-2008), mathématicien et physicien britannique, Sir Geoffrey Ingram Taylor ayant déjà été évoqué dans un chapitre précédent.

tente de déplacer un fluide de viscosité  $\eta_2$ . Nous en rappelons les caractéristiques de façon qualitative à l'aide de la figure 3.11. Pour ce faire, supposons que l'interface entre les deux fluides soit initialement légèrement déformée localement<sup>9</sup>, et tentons de prédire qualitativement si cette déformation va croître ou s'atténuer, sans avoir recours à une analyse calculatoire de stabilité linéaire. Le saut de pression entre les points  $A$  et  $B$  induit un écoulement du fluide 1 vers le fluide 2, analysons la décomposition de ce saut de pression selon les deux chemins  $(ACB)$  et  $(ADB)$ , de même longueur (Fig. 3.11 (a)). Remarquons que le premier chemin présente une longueur plus importante dans le fluide 1. D'après la loi de Darcy, cela implique, pour un saut de pression identique, un écoulement plus rapide selon le chemin opposant le moins de résistance visqueuse au mouvement. Si  $\eta_1 > \eta_2$ , ce chemin est le chemin  $(ADB)$ , le point  $D$  progresse donc plus vite que le point  $C$ , et la perturbation de l'interface se résorbe d'elle-même : aucune digitation n'apparaît. Si  $\eta_1 < \eta_2$ , ce chemin est le chemin  $(ACB)$ , le point  $C$  creuse d'autant plus l'écart avec le point  $D$ , et la déformation de l'interface va cette fois-ci se développer de plus en plus, formant une digitation caractéristique de l'instabilité de Saffman-Taylor. Nous remarquons ainsi toute l'importance du signe du contraste de viscosité dans cet exemple.

## 4.2 Nombre capillaire minimal de fragmentation

D'après la partie précédente, nous pouvons exprimer le nombre capillaire minimal de fragmentation, noté  $\mathcal{C}_{cr}$ . Pour  $\Delta\eta < 0$  (Fig. 3.9 (b)), et d'après l'équation 3.67, celui-ci est atteint lorsque  $\alpha$ , ou encore la taille du *slug*  $L_d$ , tend vers 0,  $\mathcal{C}_{cr}$  valant simplement :

$$\mathcal{C}_{cr} = \mathcal{C}_\star. \quad (3.68)$$

Dans le cas  $\Delta\eta > 0$  (Fig. 3.9 (a)), ce nombre capillaire minimal est atteint au point de raccordement des différents régimes en  $\alpha = 1$ , et vaut donc, d'après l'équation 3.39 :

$$\mathcal{C}_{cr} = \frac{\mathcal{C}_\star}{1 + \Delta\eta}. \quad (3.69)$$

Afin de tester ces prédictions, nous avons expérimentalement construit différents diagrammes comportementaux en changeant les paramètres géométriques et physico-chimiques, et avons relevé sur chaque diagramme le plus petit nombre capillaire  $\mathcal{C}_{cr}$  associé à un régime de fragmentation. Afin de s'extraire de l'éventuelle dépendance de  $\eta_d^{eff}$  avec  $h$ ,  $w_1$  et  $w_2$ , l'unique paramètre géométrique que nous avons fait varier est la longueur  $L$  de l'obstacle. Le graphe de la figure 3.12 représente la quantité  $\mathcal{C}_\star$ , calculée par la connaissance des paramètres géométriques de la puce choisie (Éq. 3.30), en fonction du nombre capillaire minimal de fragmentation  $\mathcal{C}_{cr}$ . Conformément aux équations 3.68 et 3.69, chaque jeu de données est bien ajusté par une loi linéaire, dont la pente vaut 1 pour les systèmes de type  $\Delta\eta < 0$ , et  $1 + \Delta\eta > 1$  quand  $\Delta\eta > 0$ . Comme attendu, la valeur de  $\Delta\eta$  mesurée est plus élevée pour l'eau glucosée (de viscosité réelle 7.2 mPa.s) que pour l'eau pure (de viscosité réelle 1 mPa.s). Ainsi, pour les systèmes de type  $\Delta\eta > 0$ , cette représentation permet d'obtenir une mesure directe de  $\eta_d^{eff}$  par la mesure du coefficient directeur tiré de la régression linéaire effectuée : ceci a le bon goût d'oter la nature libre de ce paramètre.

---

<sup>9</sup>. Notons que ceci suppose de vaincre les effets de tension superficielle, ceux-ci intervenant de façon naturelle dans le seuil du développement de cette instabilité.

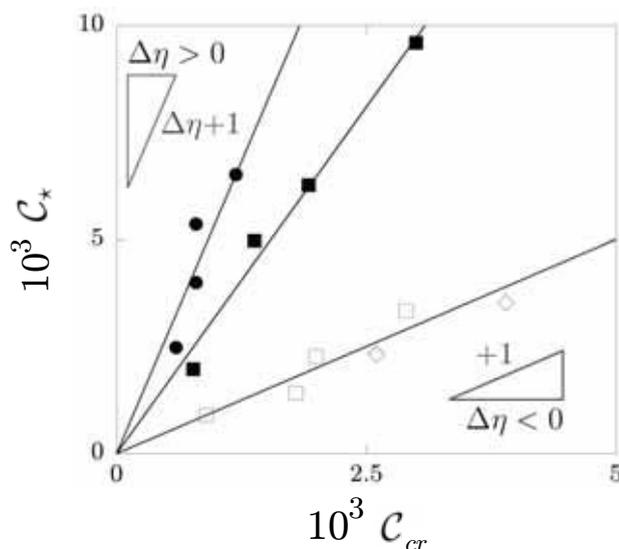


FIGURE 3.12: Évolution de  $C_*$  avec  $C_{cr}$  pour quatre systèmes fluides différents. Les systèmes constitués d'azote/hexadécane (losanges) et eau/silicone (carrés vides) rentrent dans le cas  $\Delta\eta < 0$ , alors que les systèmes constitués d'eau/hexadécane (carrés pleins) et eau glucosée/hexadécane (cercles pleins) rentrent dans le cas  $\Delta\eta > 0$ .

### 4.3 Cas $\Delta\eta > 0$ : taille de *slug* optimale

Dans le cas  $\Delta\eta > 0$ , la non monotonie du seuil de fragmentation en fonction du rapport  $L_d/L$  implique qu'il existe une taille de *slug*, notée  $L_d^{eff,cr}$ , telle que le nombre capillaire nécessaire pour le fragmenter soit minimal. Cette taille, dite optimale, est atteinte lorsque  $\alpha = 1$ , soit autrement, par la définition de  $\alpha$  donnée par l'équation 3.30 :

$$L_d^{eff,cr} = \frac{Lw_1}{w}. \quad (3.70)$$

Cette taille caractéristique, dépendant uniquement du confinement du canal et de l'obstacle, correspond physiquement à un *slug* dont le volume remplirait exactement le bras large de l'obstacle. En repassant à la quantité mesurable expérimentalement  $L_d^{cr}$ , il vient alors, d'après l'équation 3.25 :

$$L_d^{cr} = \frac{Lw_1}{w} + cw. \quad (3.71)$$

Nous testons cette relation sur la figure 3.13. Nous remarquons que l'ensemble des points expérimentaux semblent se superposer selon une unique tendance affine de pente 1, en conformation avec l'équation 3.25. Il est possible de tirer par l'ajustement de ces données une ordonnée à l'origine de l'ordre de  $115 \mu\text{m} \simeq 0.9w$ . Ce décalage n'est pas déraisonnable puisque nous trouvons, comme attendu, une valeur pour  $c$  de l'ordre de l'unité, indépendante du système de fluide considéré.

### 4.4 Fractions volumiques

Enfin, le modèle présenté dans la partie précédente permet d'avoir accès aux fractions volumiques des gouttes/bulles filles en sortie de l'obstacle, exprimant un

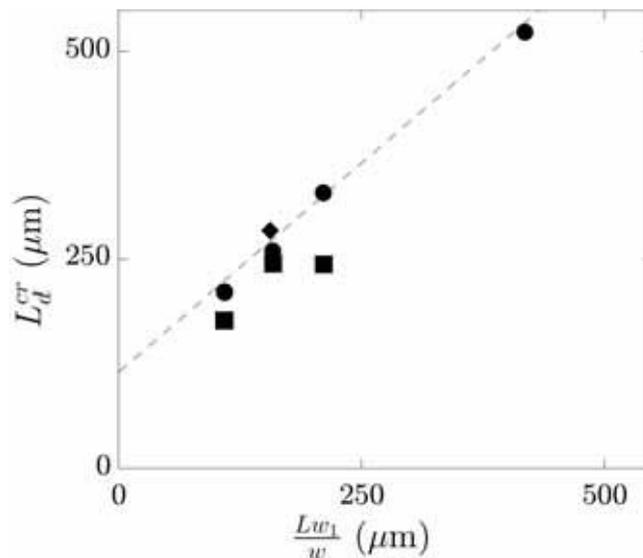


FIGURE 3.13: Comparaison des longueurs  $L_d^{cr}$  et  $L_d^{eff,cr} = Lw_1/w$ . Chaque type de symbole correspond à un système fluide donné de type  $\Delta\eta > 0$  : eau pure/hexadécane (carrés), et deux systèmes eau glucosée/hexadécane, pour deux pourcentages en glucose différents (losanges et ronds). L'asymétrie  $W = w_2/w_1$  est égale à 0.48 pour toutes les séries expérimentales présentées. La droite pointillée tracée, de pente égale à 1, ajuste convenablement l'ensemble des données.

rapport de volume entre le *slug* fils créé dans chaque bras de l'obstacle et le *slug* père. Ces quantités, notées respectivement  $\phi_1$  et  $\phi_2$  pour les bras large et fin, sont donc sans dimension et comprises entre 0 et 1. Dans le but de déterminer leur expression, l'intégration numérique des équations régissant la dynamique des deux interfaces dans les bras large et fin permet d'avoir accès à la position finale de l'interface dans le bras fin  $X_2(T=1)$ . De fait, nous en déduisons de façon approximée les volumes respectifs des *slugs* créés dans les bras fin et large :

$$\Omega_2 \simeq X_2(1)Lhw_2 \quad \text{et} \quad \Omega_1 \simeq h(L_d w - X_2(1)Lw_2). \quad (3.72)$$

Par suite, nous obtenons les fractions volumiques associées  $\phi_1$  et  $\phi_2$  (Fig. 3.14) en divisant par le volume du *slug* père  $\Omega \simeq L_d wh$  :

$$\phi_2 = \frac{\Omega_2}{\Omega} = \frac{X_2(1)W}{\alpha} \quad \text{et} \quad \phi_1 = \frac{\Omega_1}{\Omega} = 1 - \phi_2. \quad (3.73)$$

De fait, pour une taille de *slug*  $L_d^{eff}$  donnée, en-dessous d'un certain nombre capillaire marquant le seuil de fragmentation et fonction des nombreux paramètres de l'expérience, nous avons  $\phi_2 = 0, \phi_1 = 1$ . Au-dessus de ce nombre capillaire,  $\phi_2$  est une fonction croissante de  $\mathcal{C}$ . Les expériences sont en bon accord avec les simulations (Fig. 3.14). Nous remarquons notamment l'influence de l'asymétrie entre les bras large et fin de l'obstacle : plus  $W$  est grand, plus le nombre capillaire seuil est élevé. Notons que cela coïncide avec le sens de variation des deux nombres capillaires caractéristiques introduits dans ce chapitre,  $\mathcal{C}_*$  et  $\mathcal{C}_{**}$ , décroissant respectivement comme  $(1 - W)/W$  (Éq. 3.30) et  $1/W$  (Éq. 3.49), tous les autres groupements adimensionnels étant maintenus constants par ailleurs. Remarquons également l'influence

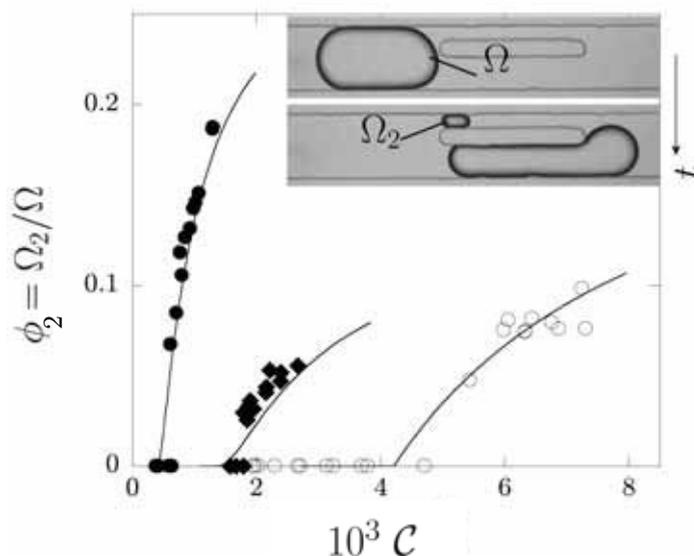


FIGURE 3.14: Évolution de la fraction volumique  $\phi_2$  avec le nombre capillaire  $\mathcal{C}$  : comparaison entre les expériences (symboles) et les simulations numériques (traits pleins). Les symboles pleins correspondent au système eau glucosée/hexadécane, les symboles vides correspondent au système azote/hexadécane. Les ronds correspondent à une asymétrie  $W = w_2/w_1 = 0.6$ , les losanges à une asymétrie  $W = 0.35$ . Toutes les mesures ont été effectuées avec des paramètres  $L_d$  et  $L$  identiques. Les paramètres libres valent respectivement : ( $\bullet$ )  $c = 0.9$  et  $\Delta\eta = 10$ , ( $\blacklozenge$ )  $c = 0.8$  et  $\Delta\eta = 10$ , ( $\circ$ )  $c = 0.49$  et  $\Delta\eta = -0.97$ .

des fluides choisis, le système gaz/liquide présentant un nombre capillaire seuil de fragmentation supérieur à celui du système liquide/liquide. De nouveau, cela rappelle le sens de variation du nombre capillaire de fragmentation minimal, constant pour  $\Delta\eta < 0$  (Éq. 3.68), puis décroissant en  $1/(1 + \Delta\eta)$  pour  $\Delta\eta > 0$  (Éq. 3.69). Ainsi, ces résultats sont prometteurs en vue de la conception d'un dispositif microfluidique permettant de créer, à partir d'une émulsion (resp. mousse) monodisperse, une émulsion (resp. mousse) bidisperse dont les tailles des objets sont parfaitement contrôlées par l'opérateur.

Dans le but d'établir un résultat intéressant en vue du chapitre suivant, nous posons analytiquement le calcul des fractions volumiques dans le cas simple  $\alpha \leq 1$ . Pour cela, reconsidérons la forme généralisée de  $T_p$  donnée par l'équation 3.53, valable aussi bien dans les cas  $\Delta\eta > 0$  et  $\Delta\eta < 0$ , puisque  $T_p$  est toujours nul au-dessus du seuil minimal de fragmentation  $\mathcal{C}_*$  dans ce dernier cas. Ainsi, l'intégration de l'équation 3.28, valable entre  $T = 0$  et  $T = 1$ , donne :

$$X_1(1) + WX_2(1) = \alpha. \quad (3.74)$$

Ensuite, l'intégration de l'équation 3.29, valable uniquement entre  $T = T_p$  et  $T = 1$ , donne :

$$X_1(1) - \alpha T_p + \frac{\Delta\eta}{2}(X_1^2(1) - \alpha^2 T_p^2) - FW \left( X_2(1) + \frac{\Delta\eta}{2} X_2^2(1) \right) = \alpha \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}} (1 - T_p). \quad (3.75)$$

Les deux précédentes équations constituent un système de deux équations à deux inconnues :  $X_1(1)$  et  $X_2(1)$ . Par substitution, nous pouvons montrer que  $X_2(1)$  est solution de l'équation du second degré suivante :

$$\frac{\Delta\eta(F - W)}{2} X_2^2(1) + (1 + F + \alpha\Delta\eta) X_2(1) + \frac{\alpha(T_p - 1)}{W} \left( 1 - \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}} + \frac{\alpha\Delta\eta}{2} (T_p + 1) \right) = 0. \quad (3.76)$$

Remarquons que dans le cas  $\Delta\eta > 0$ , le fait de prendre  $T_p = 1$  conduit automatiquement à l'unique solution physique  $X_2(1) = 0$ , l'autre solution étant négative. Nous retrouvons ici la condition de fragmentation dans ce cas, en imposant que l'invasion du bras fin s'effectue avant que l'arrière du *slug* ne vienne impacter l'obstacle. Il en va de même, dans le cas  $\Delta\eta < 0$ , en prenant pour le nombre capillaire la valeur seuil déterminée à l'équation 3.67. En revenant au cas général, le discriminant de cette équation est toujours positif<sup>10</sup>. L'unique solution positive<sup>11</sup> s'écrit alors :

$$X_2(1) = \frac{1 + F + \alpha\Delta\eta}{\Delta\eta(F - W)} (\sqrt{1 + K} - 1), \quad (3.77)$$

avec :

$$K = \frac{2\alpha\Delta\eta(F - W)(1 - T_p)}{W(1 + F + \alpha\Delta\eta)^2} \left( 1 - \frac{\mathcal{C}_*}{\mathcal{C}} + \frac{\alpha\Delta\eta}{2} (T_p + 1) \right). \quad (3.78)$$

Nous en déduisons  $\phi_2$  par l'équation 3.73 :

$$\phi_2 = \frac{W(1 + F + \alpha\Delta\eta)}{\alpha\Delta\eta(F - W)} (\sqrt{1 + K} - 1), \quad (3.79)$$

et enfin  $\phi_1 = 1 - \phi_2$ , par conservation du volume. La figure 3.15 représente l'évolution prédite de  $\phi_2$  en fonction du nombre capillaire  $\mathcal{C}$ , pour un jeu de paramètres adimensionnés typiques. Comme attendu,  $\phi_2$  est nul tant que le seuil de fragmentation donné par l'équation 3.39 n'a pas encore été franchi. Au-delà,  $\phi_2$  croît avec le nombre capillaire, et semble atteindre une valeur asymptotique. En reprenant le résultat obtenu plus haut, cette valeur vaut :

$$\phi_2 = \frac{W(1 + F + \alpha\Delta\eta)}{\alpha\Delta\eta(F - W)} \left( \sqrt{1 + \frac{2\alpha\Delta\eta(F - W)}{W(1 + F + \alpha\Delta\eta)^2} \left( 1 + \frac{\alpha\Delta\eta}{2} \right)} - 1 \right). \quad (3.80)$$

Cette valeur asymptotique dépend des paramètres géométriques et physico-chimiques du problème. En supposant maintenant que l'obstacle est très long devant les autres

---

10. Il est possible de montrer que les coefficients des termes quadratique et linéaire sont positifs, alors que le coefficient constant est forcément négatif, dès lors que le seuil de fragmentation est franchi. Cela impose en effet un discriminant positif.

11. Cette solution est unique puisque le signe des coefficients quadratique et constant de l'équation du second degré sont respectivement positif et négatif, imposant que le produit des racines de l'équation soit également négatif, les deux racines sont donc de signes différents.

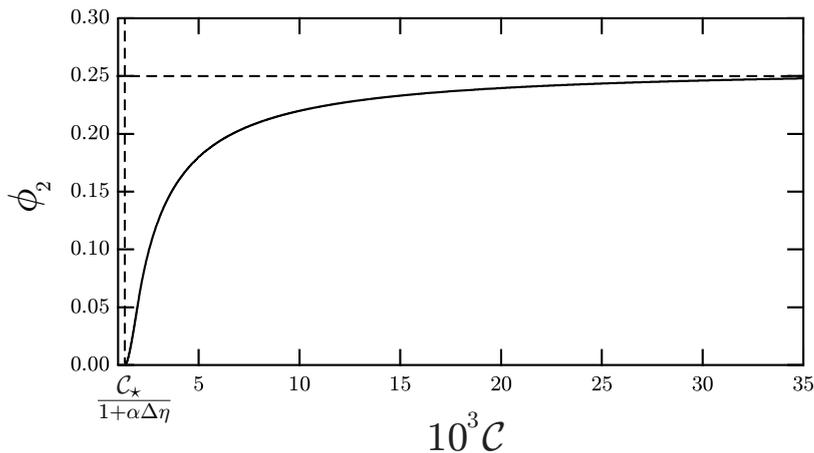


FIGURE 3.15: Évolution prédite de la fraction volumique  $\phi_2$  avec le nombre capillaire  $\mathcal{C}$ , pour  $W = 0.5$ ,  $F = 3$ ,  $\alpha = 0.5$ ,  $\Delta\eta = 1$ ,  $Z = 10^{-3}$ .

dimensions du système, l'hypothèse  $\alpha \ll 1$  permet d'effectuer un développement de la racine carrée dans l'équation précédente :

$$\phi_2 \simeq \frac{W(1+F)}{\alpha\Delta\eta(F-W)} \left( 1 + \frac{1}{2} \frac{2\alpha\Delta\eta(F-W)}{W(1+F)^2} - 1 \right), \quad (3.81)$$

$$\phi_2 \simeq \frac{1}{1+F}, \quad (3.82)$$

et de plus :

$$\phi_1 = 1 - \phi_2 \simeq \frac{F}{1+F}. \quad (3.83)$$

En reconsidérant le cas trivial d'un obstacle centré ( $F=1$ ), nous obtenons immédiatement  $\phi_1 = \phi_2 = 1/2$  : les conditions de symétrie sont bien respectées par les expressions des fractions volumiques. Ainsi, dans le cas d'un obstacle suffisamment long, les fractions volumiques ne dépendent plus que des paramètres géométriques<sup>12</sup>, et leur rapport vaut simplement :

$$\frac{\phi_1}{\phi_2} = F = \frac{f_2/w_2}{f_1/w_1}, \quad (3.84)$$

identique au rapport des résistances hydrodynamiques de chaque bras de l'obstacle en l'absence de *slug* à l'intérieur (Éq. 3.12). Ce résultat intéressant est intuité dans un travail pionnier de fragmentation en microfluidique [18], mais dans une géométrie quelque peu différente constituée d'une boucle asymétrique, et en présence de plusieurs *slugs* dans chaque bras de la boucle. Le fait que les fractions volumiques ne dépendent alors que des résistances hydrodynamiques « à vide », c'est-à-dire sans *slug* à l'intérieur, peut paraître intrigant, puisque la présence de *slugs* dans les deux bras de la boucle altère leur résistance hydrodynamique. Afin de concilier ces différentes approches, l'interprétation physique de ce résultat est prolongée dans le chapitre suivant.

12. Nous pouvons remarquer que l'hypothèse d'obstacle long suffit à obtenir le résultat des équations 3.82 et 3.83, sans condition particulière sur le nombre capillaire. En effet, la condition  $\mathcal{C} \gg \mathcal{C}_*$  est naturellement satisfaite par le fait que  $\mathcal{C}_* \propto 1/L$  (Éq. 3.27, Éq. 3.30).

## 5 Conclusion et perspectives

En dépit de l'apparente complexité de ce problème régi par dix paramètres, nous avons ici développé un modèle théorique permettant de décrire la dynamique de fragmentation d'objets déformables en fonction des sept groupements adimensionnels pertinents du problème (Éq. 3.27). Bien que ce modèle s'appuie sur de fortes hypothèses et tient compte d'un nombre minimal d'ingrédients physiques simples, celui-ci permet de retrouver l'allure des diagrammes comportementaux obtenus expérimentalement illustrant les zones d'existence des quatre différents régimes hydrodynamiques observés (Fig. 3.9), à l'aide de deux paramètres ajustables seulement :  $\eta_d^{eff}$  et  $c$ . Ce travail met en lumière le rôle crucial joué par le contraste de viscosité  $\Delta\eta$ , dont le signe pilote le sens de variation de la courbe du seuil de fragmentation, cette dernière étant monotonique lorsque  $\Delta\eta < 0$ , et non monotonique lorsque  $\Delta\eta > 0$ . Dans ce dernier cas, nous avons également montré l'existence d'une taille critique de *slug*  $L_d^c$  pour laquelle le nombre capillaire nécessaire pour le fragmenter est minimal. Enfin, la prédiction théorique des fractions volumiques offre la possibilité de contrôler avec précision la distribution de taille de l'émulsion (ou de la mousse) bidisperse formée en sortie de l'obstacle.

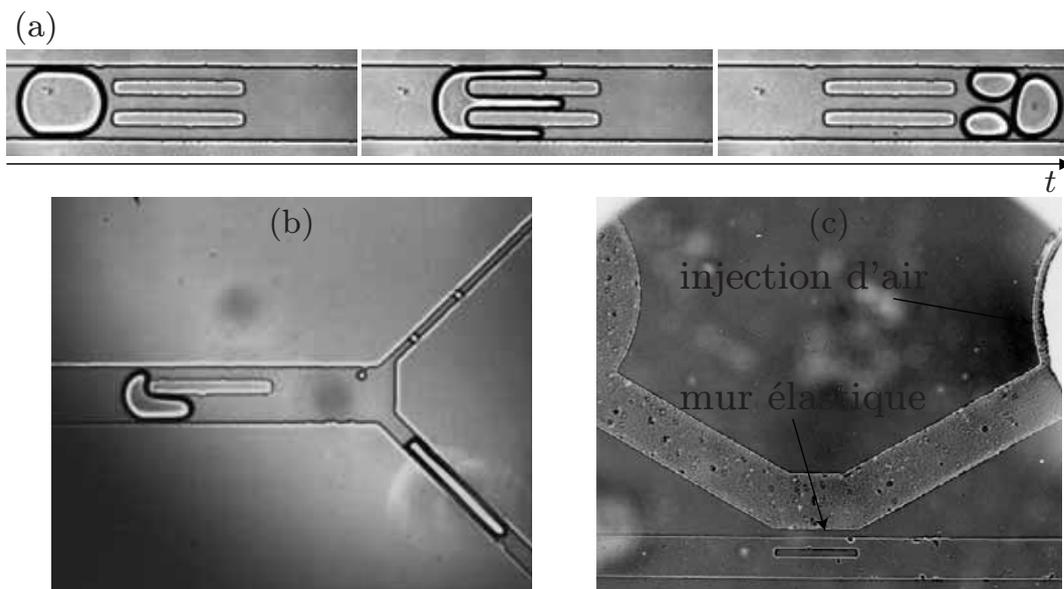


FIGURE 3.16: (a) Dynamique de fragmentation d'un *slug* sur un « trident », constitué de deux obstacles linéaires parallèles. (b) Module de tri des gouttes filles créées en sortie de l'obstacle. (c) Canal d'injection d'air permettant de jouer sur les paramètres géométriques de l'obstacle *via* l'élasticité du PDMS.

En guise de prolongement, nous pourrions imaginer de choisir des géométries plus complexes, en plaçant par exemple plusieurs obstacles rectangulaires de longueurs identiques et parallèles entre eux au sein du micro-canal (Fig. 3.16 (a)). En reprenant les mêmes arguments que ceux développés dans le cas d'un obstacle unique, ce système microfluidique devrait permettre d'accroître le degré de complexité de l'émulsion (ou de la mousse) ainsi créée. Le modèle développé devrait également

pouvoir être étendu à un obstacle linéaire légèrement incliné, ou un obstacle non linéaire de section lentement variable spatialement, en utilisant dans les équations dynamiques l'approximation de lubrification de l'écoulement dans les deux bras de l'obstacle.

Dans le but de trier les objets créés dans chacun des bras de l'obstacle, la figure 3.16 (b) montre un canal constitué de deux sorties distinctes permettant d'aiguiller les objets selon leur taille et leur provenance.

Enfin, afin de contrôler activement le mécanisme de fragmentation sans faire varier les débits des pousse-seringues, il est également possible de rajouter au voisinage du canal contenant l'obstacle un second canal faisant office de chambre à air pressurisé (Fig. 3.16 (c)). La pression d'air permet de déformer légèrement le PDMS élastique [103] et ainsi modifier les longueurs,  $h$ ,  $w_2$  et/ou  $w_1$ , ceci permettant de transiter instantanément d'un régime de fragmentation à un autre.

Ce travail ayant fait l'objet d'une publication [98], celle-ci est reportée en fin de manuscrit (Publication A).

## Chapitre 4

# Fragmentation d'objets déformables sur des boucles et obstacles « longs »

Dans la continuité du chapitre précédent décrivant la fragmentation de *slugs* isolés sur un micro-obstacle linéaire, nous utilisons à présent des boucles et obstacles très longs devant la distance entre *slugs*. Nous montrons qu'il devient raisonnable de négliger les fluctuations dans le processus de fragmentation et d'établir un modèle très simple de type « champ moyen ». Selon ce modèle, le rapport des volumes des *slugs* fils est égal au rapport des résistances hydrodynamiques des deux bras du dispositif sans *slug* à l'intérieur. Cette approche se révèle en accord avec l'expérience et constitue une démonstration théorique d'un résultat en apparence contre-intuitif.

# 1 Expériences

## 1.1 Géométries exploitées

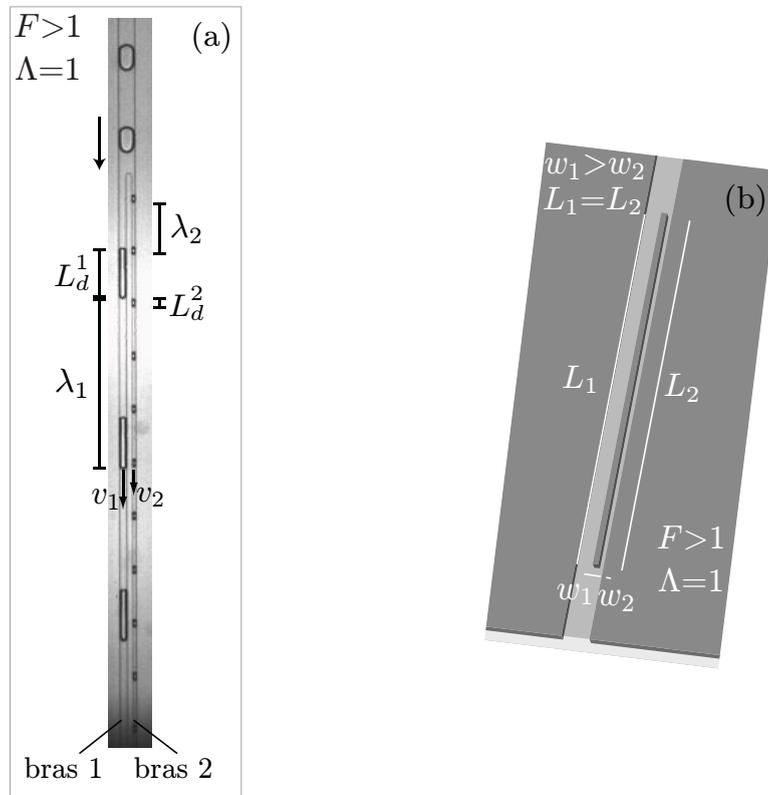


FIGURE 4.1: Description de la géométrie constituée d'un obstacle linéaire long. (a) Image expérimentale (vue de dessus), la largeur principale du canal  $w=130 \mu\text{m}$  faisant office d'échelle. La flèche descendante indique le sens de l'écoulement. (b) Représentation schématique (vue en perspective) définissant les paramètres géométriques de l'obstacle.

Nous avons vu au chapitre précédent que la résistance hydrodynamique d'un canal dans lequel s'écoule un fluide newtonien dépend notamment de sa largeur, mais également de la longueur sur laquelle se produit l'écoulement. Afin de pouvoir différencier les contributions des rapports d'aspect longitudinal et transversal sur l'asymétrie de résistance hydrodynamique entre les deux bras de l'obstacle, nous utilisons dans ce chapitre deux géométries distinctes, un obstacle linéaire long et une boucle asymétrique longue. Les largeurs et longueurs des deux bras de l'obstacle sont respectivement notées  $w_i$  et  $L_i$ , avec  $i=1, 2$  (voir Fig. 4.1 et Fig. 4.2). Alors que les largeurs  $w_i$  appartiennent aux mêmes gammes que celles du chapitre précédent, les longueurs  $L_i$  ont été choisies dans l'intervalle  $700 - 15000 \mu\text{m}$ . Notons maintenant qu'à l'inverse du chapitre précédent, l'interdistance  $\lambda$  séparant deux *slugs* consécutifs est petite devant les longueurs  $L_i$  caractérisant les boucles et obstacles longs. De fait, chaque bras de l'obstacle peut compter la présence de plusieurs *slugs* lorsqu'un *slug* arrive à l'aplomb de l'obstacle. La hauteur, notée  $h$ , est identique dans les deux bras et vaut de nouveau  $45 \mu\text{m}$ . Par convention, nous choisissons les paramètres

géométriques de telle sorte que  $w_2 \leq w_1$ ,  $L_2 \geq L_1$ . Ainsi, le bras 2 est toujours celui possédant la plus grande résistance hydrodynamique, quelle que soit la géométrie considérée. En définissant  $\Lambda = L_2/L_1$ , le rapport des résistances hydrodynamiques entre les bras 2 et 1 en l'absence de *slug* vaut simplement  $F\Lambda \geq 1$ , où la quantité adimensionnée  $F = f_2/W f_1$  a été définie dans un chapitre précédent. Rappelons que  $F$  ne dépend que des largeurs  $w_i$  et de la hauteur commune  $h$  des deux bras. Dans chaque géométrie décrite plus bas, la brisure de symétrie provient successivement d'une différence de largeur pour l'obstacle linéaire long, puis d'une différence de longueur pour la boucle asymétrique longue.

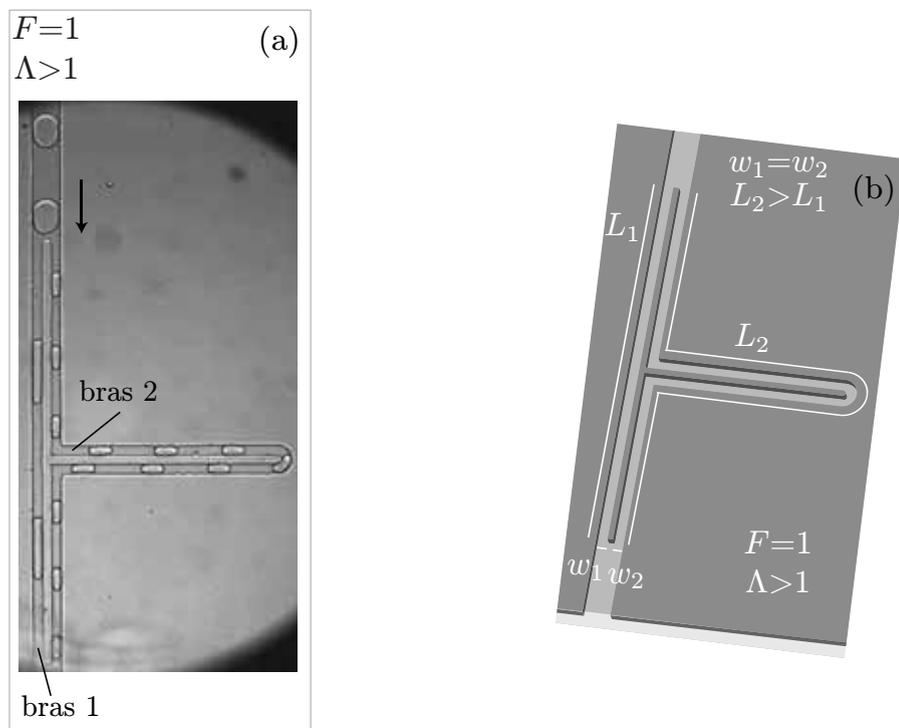


FIGURE 4.2: Description de la géométrie constituée d'une boucle asymétrique longue. (a) Image expérimentale (vue de dessus), la largeur principale du canal  $w=130 \mu\text{m}$  faisant office d'échelle. La flèche descendante indique le sens de l'écoulement. (b) Représentation schématique (vue en perspective) définissant les paramètres géométriques de la boucle.

### 1.1.1 Obstacle linéaire long

La géométrie de l'obstacle linéaire long (Fig. 4.1) est caractérisée par l'égalité  $L_1=L_2$ , soit  $\Lambda=1$ . Comme dans le chapitre précédent, l'inégalité  $w_2 \leq w_1$  engendre une résistance hydrodynamique plus grande dans le bras fin de l'obstacle :  $F \geq 1$ .

### 1.1.2 Boucle asymétrique longue

La géométrie de la boucle asymétrique longue (Fig. 4.2) vérifie l'égalité  $w_1 = w_2$ , soit  $W=1$ , et par suite  $F=1$ . L'inégalité  $L_2 \geq L_1$  engendre une résistance hydrodynamique plus grande dans le bras le plus long de la boucle.

## 1.2 Fractions volumiques des *slugs* fils : comparaison des résultats entre obstacle court et long

Nous dressons dans cette partie les différences de comportement dans l'évolution de la fraction volumique  $\phi_2$  avec les différents paramètres du système, en mettant en comparaison les cas d'un obstacle linéaire court et long. Rappelons que  $\phi_2 = \Omega_2/\Omega$ , où  $\Omega_2$  et  $\Omega$  correspondent respectivement aux volumes du *slug* fils créé dans le bras 2 et du *slug* père.

### 1.2.1 Influence de $\mathcal{C}$ et $\Delta\eta$

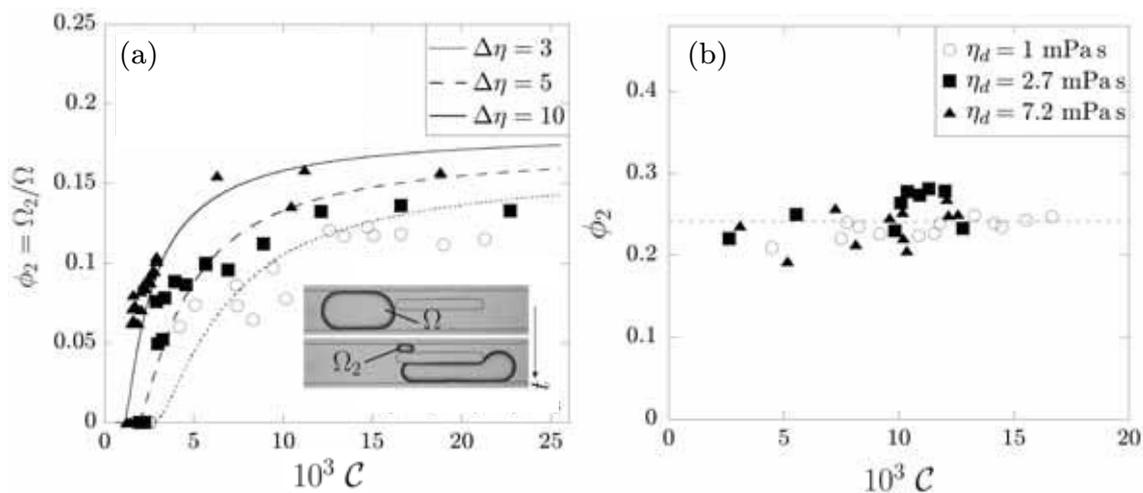


FIGURE 4.3: Influence de  $\mathcal{C}$  et  $\Delta\eta$  sur la fraction volumique  $\phi_2$  : résultats obtenus pour la géométrie constituée d'un obstacle court,  $L=300 \mu\text{m}$  (a), et long,  $L=700-15000 \mu\text{m}$  (b). Chaque série de symboles est associée à un système fluide donné : eau pure/hexadécane (cercles vides), eau glucosée/hexadécane, pour deux pourcentages différents en glucose (carrés pleins et triangles pleins). Les courbes du graphe (a) proviennent des simulations numériques basées sur le modèle présenté au chapitre précédent, avec pour paramètres ajustables  $c = 0.5$  et  $\Delta\eta = 3; 5; 10$ , les valeurs étant triées par viscosité de phase dispersée croissante.

La figure 4.3 propose une analyse comparative des deux géométries en illustrant l'influence du nombre capillaire  $\mathcal{C}$  et du contraste de viscosité  $\Delta\eta$  sur la fraction volumique  $\phi_2$  associée au *slug* créé dans le bras fin de l'obstacle. Dans le cas de l'obstacle court, une fois que le seuil de fragmentation a été franchi,  $\phi_2$  est une fonction croissante de  $\mathcal{C}$ . Par ailleurs, pour un nombre capillaire donné,  $\phi_2$  croît avec  $\Delta\eta$ . Les expériences montrent également que le nombre capillaire critique de fragmentation décroît avec le contraste de viscosité. Ce résultat indique que pour une

phase continue donnée et un système fluide vérifiant la condition  $\Delta\eta > 0$ , le nombre capillaire minimal pour fragmenter un *slug* contre un micro-obstacle rectangulaire est d'autant plus petit que la viscosité du *slug* est grande. Ce comportement est surprenant dans le sens où il diffère de ce qui est observé lors de la fragmentation d'une goutte isolée dans un écoulement non confiné [17, 77]. Ceci montre à nouveau la forte influence du confinement sur le processus de fragmentation de gouttes [104].

Dans le cas d'un obstacle long, pour un système fluide, des paramètres géométriques ( $F=2.5$ ) et une taille de *slug*  $L_d=230 \pm 30 \mu\text{m}$  donnés, les expériences montrent que  $\phi_2$  ne dépend plus<sup>1</sup> de  $\mathcal{C}$ . Par ailleurs, nous remarquons que les différentes séries de symboles semblent se superposer, montrant que  $\phi_2$  ne dépend plus du contraste de viscosité entre les deux phases, contrairement au cas de l'obstacle court.

### 1.2.2 Influence de $\mathcal{C}$ et $L_d$

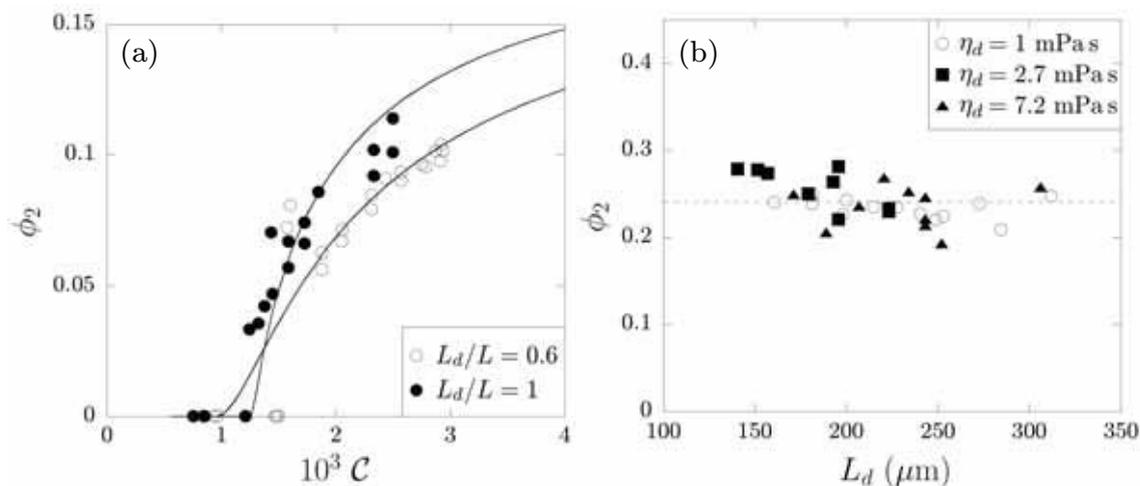


FIGURE 4.4: Influence de  $\mathcal{C}$  et  $L_d$  sur la fraction volumique  $\phi_2$  : résultats obtenus pour la géométrie constituée d'un obstacle court,  $L=300 \mu\text{m}$  (a), et long,  $L=700-15000 \mu\text{m}$  (b). Le système fluide choisi est constitué d'eau glucosée (viscosité  $\eta_d = 7.2 \text{ mPa.s}$ )/hexadécane. Les courbes du graphe (a) proviennent des simulations numériques basées sur le modèle présenté au chapitre précédent, avec pour paramètres ajustables  $c = 0.5$  et  $\Delta\eta = 10$ .

La figure 4.4 compare à présent les résultats obtenus avec les deux géométries en faisant varier  $\mathcal{C}$  et  $L_d$ . Dans le cas de l'obstacle court (Fig. 4.4 (a)), il est intéressant de noter un bon accord entre les expériences et les simulations, aussi bien pour  $L_d < L_d^{cr}$  (ronds vides) que pour  $L_d > L_d^{cr}$  (ronds pleins), avec  $L_d^{cr}$  la taille de *slug* critique discutée dans le chapitre précédent. Dans le cas de l'obstacle long (Fig. 4.4 (b)), et pour une géométrie donnée ( $F=2.5$ ), nous remarquons que  $\phi_2$  semble ne plus dépendre de  $L_d$ , contrairement à l'obstacle court, et  $\phi_2 \simeq 0.25$ .

1. Ceci est d'ailleurs en cohérence avec le chapitre précédent : dans le cas d'un obstacle très long, la condition  $\alpha \leq 1$  est facilement réalisée, et nous avons analytiquement montré que  $\phi_2$  tendait vers une limite indépendante du nombre capillaire  $\mathcal{C}$ , ceci se justifiant notamment par le fait que le nombre capillaire caractéristique  $\mathcal{C}_*$  décroît avec la longueur  $L$  de l'obstacle :  $\mathcal{C}_* \propto 1/L$ .

### 1.2.3 Influence de $\mathcal{C}$ et $F$

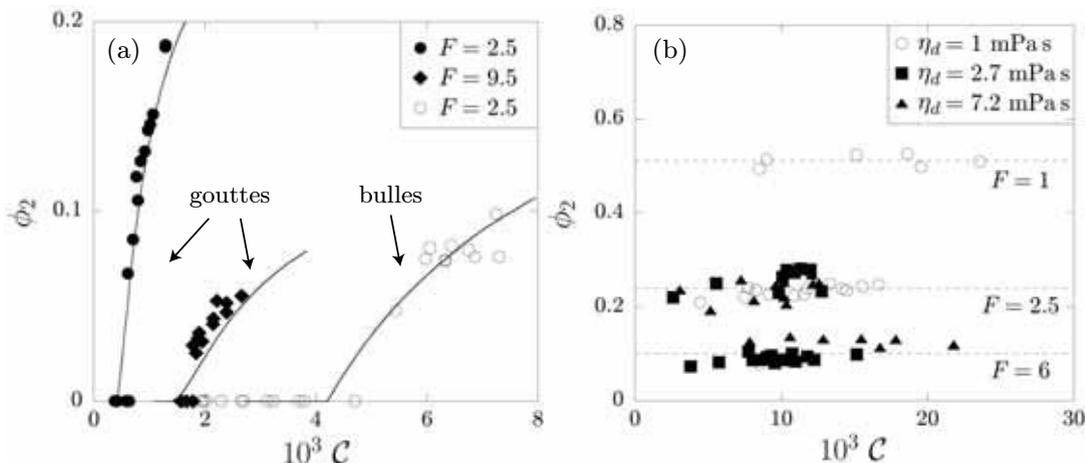


FIGURE 4.5: Influence de  $\mathcal{C}$  et  $F$  sur la fraction volumique  $\phi_2$  : résultats obtenus pour la géométrie constituée d'un obstacle court,  $L=300 \mu\text{m}$  (a), et long,  $L=700-15000 \mu\text{m}$  (b). Chaque série de symboles correspond à un système fluide donné : (a) azote/hexadécane (cercles vides), eau glucosée/hexadécane (losanges pleins et cercles pleins); (b) eau pure/hexadécane (cercles vides), eau glucosée/hexadécane, pour deux pourcentages différents en glucose (carrés pleins et triangles pleins). les valeurs prises par le paramètre  $F$  sont spécifiées sur chaque graphe. Les courbes du graphe (a) proviennent des simulations numériques basées sur le modèle présenté au chapitre précédent, avec pour paramètres ajustables :  $c = 0.49$  et  $\Delta\eta = -0.97$  (azote/hexadécane),  $c = 0.8$  et  $\Delta\eta = 10$  (eau glucosée/hexadécane, losanges pleins),  $c = 0.9$  et  $\Delta\eta = 10$  (eau glucosée/hexadécane, cercles pleins).

Enfin, nous testons l'influence de l'asymétrie de l'obstacle en jouant sur le paramètre  $F$ , et comparons sur la figure 4.5 les résultats obtenus pour un obstacle court et un obstacle long. Bien que  $\phi_2$  dépende de  $\mathcal{C}$  dans un cas et pas dans l'autre, les expériences montrent que  $\phi_2$  est une fonction décroissante de  $F$  dans les deux cas. Dans le cas du bras long, la fraction volumique dans le bras fin varie approximativement de 0.5 à 0.1 lorsque  $F$  varie de 1 à 6. Dans ce qui suit, nous étudions de façon systématique l'évolution de  $\phi_2$  avec l'asymétrie du dispositif, boucle ou obstacle long.

## 1.3 Évolution des fractions volumiques avec l'asymétrie du dispositif

Pour résumer les différents résultats expérimentaux obtenus jusqu'à présent avec un obstacle long, la fraction volumique  $\phi_2$  ne dépend plus des paramètres physico-chimiques et hydrodynamiques du problème, mais seulement de la géométrie. Ce constat marque une différence importante avec les résultats obtenus dans le cadre de la fragmentation d'un *slug* isolé sur un obstacle court. Par ailleurs, plus le rapport entre les résistances hydrodynamiques à vide des deux bras est important, plus

$\phi_2$  est petite. Nous nous sommes expérimentalement assurés que ce fait se vérifiait également avec la géométrie constituée d'une boucle asymétrique, pour laquelle l'asymétrie des résistances hydrodynamiques provient du rapport d'aspect  $\Lambda$  entre les deux bras de la boucle. De fait, nous généralisons sur la figure 4.6 les résultats

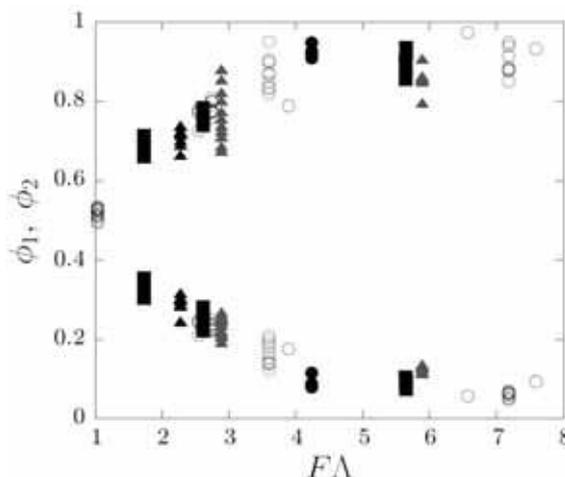


FIGURE 4.6: Évolution des fractions volumiques  $\phi_1$  et  $\phi_2 \leq \phi_1$  avec le produit  $F\Lambda$ . Les symboles noirs et gris correspondent respectivement aux géométries constituées d'un long obstacle et d'une longue boucle. Chaque type de symbole est associé à un système fluide donné : cercles pleins (eau pure/huile silicone), cercles vides (eau pure/hexadécane), carrés pleins et triangles pleins (eau glucosée/hexadécane, deux pourcentages différents en glucose).

obtenus pour une boucle asymétrique et un obstacle linéaire longs en traçant les fractions volumiques  $\phi_1$  et  $\phi_2$  en fonction du produit  $F\Lambda$ , correspondant au rapport des résistances hydrodynamiques à vide des deux bras du dispositif. La superposition globale des différents jeux de données autour d'une même tendance, pour  $\phi_1$  et  $\phi_2$ , semble indiquer que  $F\Lambda$  correspond bien au nouveau paramètre pertinent dans ce problème. Ce constat est la preuve expérimentale d'un résultat avancé dans la littérature [18].

Nous tentons par la suite d'analyser nos résultats par une approximation de type champ moyen.

## 2 Un modèle de type « champ moyen »

Le fait de travailler avec des boucles et obstacles suffisamment longs engendre une conséquence importante : les fluctuations des différences de pression entre l'amont et l'aval du dispositif, résultant de l'entrée ou de la sortie d'un *slug*, deviennent très petites devant leurs valeurs moyennes. Selon cette approche, nous pouvons donc négliger les fluctuations temporelles dans ce système. Dans l'approximation où les sauts de pression sont constants dans le temps, les débits le sont aussi, et il devient alors très simple de déterminer les fractions volumiques des *slugs* créés dans l'obstacle ou dans la boucle, ainsi que les nombres de *slugs* présents dans chaque bras.

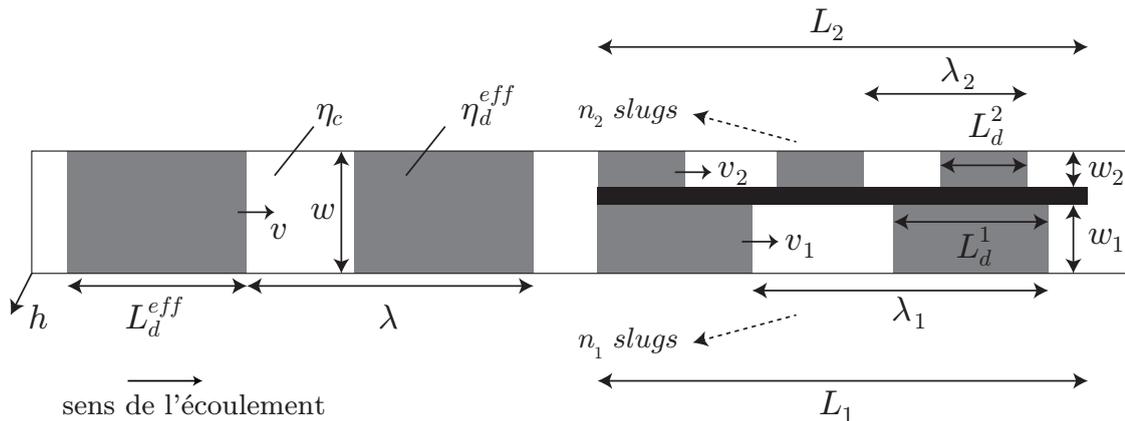


FIGURE 4.7: Approximation de champ moyen : schéma définissant les notations des grandeurs utilisées. Dans cette approximation, les *slugs* seront supposés parallélépipédiques. La géométrie prise pour exemple sur ce schéma correspond à celle de l'obstacle linéaire long :  $w_2 \leq w_1$ ,  $L_1 = L_2$ , mais les notations restent bien entendu les mêmes dans le cas de la boucle asymétrique longue.

Remarquons que cette approximation de champ moyen a également été utilisée pour décrire des dynamiques de répartition de gouttelettes dans des jonctions microfluidiques [89, 90]. Les notations des grandeurs moyennées dans le temps et utilisées dans la suite sont précisées sur la figure 4.7. Déroulons ci-dessous les relations entre ces différentes grandeurs.

- Tout d'abord, la conservation du débit s'écrit simplement :

$$vw = v_1w_1 + v_2w_2. \quad (4.1)$$

- L'égalité des sauts de pression de part et d'autre de l'obstacle, ou de la boucle, peut s'écrire<sup>2</sup> :

$$f_1v_1(\eta_d^{eff}n_1L_d^1 + \eta_c(L_1 - n_1L_d^1)) = f_2v_2(\eta_d^{eff}n_2L_d^2 + \eta_c(L_2 - n_2L_d^2)), \quad (4.2)$$

où  $n_1$  et  $n_2$  désignent le nombre de *slugs* dans les bras respectifs 1 et 2. Nous ne tenons pas compte des sauts de pression capillaires puisque ceux-ci se compensent deux à deux, du fait des signes opposés des courbures convexe/concave d'un *slug*. Nous supposons également que l'éventuel saut de pression capillaire résiduel du *slug* rentrant dans (ou sortant de) la boucle ou l'obstacle reste très petit devant le saut de pression visqueux.

2. Notons que le saut de pression dans le bras  $i$  peut s'écrire, lorsque ce dernier contient  $n_i$  *slugs* de longueur  $L_d^i$ ,  $\Delta p_i = \eta_c f_i q_i (L_i + n_i L_g^i) / w_i h^3$ , avec  $L_g^i = \Delta \eta L_d^i$  une longueur résistive. Ainsi, la présence d'un *slug* dans le bras  $i$  modifie la résistance hydrodynamique d'une quantité discrète proportionnelle à  $L_g^i$ . Physiquement, tout se passe comme si la longueur effective du bras  $i$  était plus grande (si  $\Delta \eta > 0$ ) ou plus petite (si  $\Delta \eta < 0$ ) que  $L_i$  en présence de *slug*. Dans le premier cas  $\Delta \eta > 0$ , ce type de comportement est également prédit et vérifié expérimentalement pour le transport de gouttes sphériques dans des canaux microfluidiques aux bas nombres capillaires et bas nombres de Reynolds [87], bien que le raisonnement soit légèrement différent de celui adopté ici. De façon plus surprenante, la prédiction d'une longueur effective inférieure à  $L_i$  dans le cas  $\Delta \eta < 0$  demanderait de plus amples vérifications expérimentales.

- Nous définissons le temps de fragmentation comme la durée pendant laquelle le *slug* arrivant sur le dispositif (obstacle ou boucle) est en contact avec celui-ci avant de se fragmenter. Ce temps peut s'écrire indifféremment<sup>3</sup> :

$$\frac{L_d^{eff}}{v} = \frac{L_d^1}{v_1} = \frac{L_d^2}{v_2}, \quad (4.4)$$

avec  $L_d^{eff}$  la longueur effective d'un *slug* introduite dans le chapitre précédent.

- La durée entre deux processus de fragmentation successifs peut s'écrire indifféremment :

$$\frac{\lambda - L_d^{eff}}{v} = \frac{\lambda_1 - L_d^1}{v_1} = \frac{\lambda_2 - L_d^2}{v_2}. \quad (4.5)$$

- L'équidistance des *slugs* dans les deux bras permet d'écrire :

$$n_1 = \frac{L_1}{\lambda_1} \quad \text{et} \quad n_2 = \frac{L_2}{\lambda_2}, \quad (4.6)$$

en faisant abstraction du caractère entier de  $n_1$  et  $n_2$ . Cette approximation est d'autant plus valable que le nombre de *slugs* dans chaque bras est grand.

- En supposant, à nouveau dans un souci de simplicité, que les *slugs* prennent une forme grossièrement parallélépipédique (voir Fig. 4.7), les fractions volumiques s'expriment comme :

$$\phi_1 = \frac{L_d^1 w_1}{L_d^{eff} w} \quad \text{et} \quad \phi_2 = \frac{L_d^2 w_2}{L_d^{eff} w}. \quad (4.7)$$

Les observables expérimentales auxquelles nous nous intéressons sont les fractions volumiques  $\phi_i$  et les nombres de *slugs*  $n_i$  dans chaque bras. Cherchons à les exprimer uniquement en fonction des paramètres du problème. L'équation 4.2 peut se réécrire à l'aide des relations 4.6 :

$$v_1 \left( 1 + \Delta\eta \frac{L_d^1}{\lambda_1} \right) = FW\Lambda v_2 \left( 1 + \Delta\eta \frac{L_d^2}{\lambda_2} \right). \quad (4.8)$$

Or, la simplification et la division des équations 4.4 et 4.5 permettent de montrer que :

$$\frac{L_d^1}{\lambda_1} = \frac{L_d^2}{\lambda_2} = \frac{L_d^{eff}}{\lambda}, \quad (4.9)$$

de laquelle nous déduisons pour l'équation 4.8 :

$$v_1 = FW\Lambda v_2. \quad (4.10)$$

En injectant cette relation dans l'équation 4.4, et à l'aide des relations 4.7, nous obtenons :

$$\frac{L_d^1}{L_d^2} = \frac{W\phi_1}{\phi_2} = \frac{v_1}{v_2} = FW\Lambda, \quad (4.11)$$

---

<sup>3</sup>. La combinaison des équations 4.1 et 4.4 permet évidemment de retrouver la conservation du volume du *slug* :

$$L_d^{eff} w = L_d^1 w_1 + L_d^2 w_2. \quad (4.3)$$

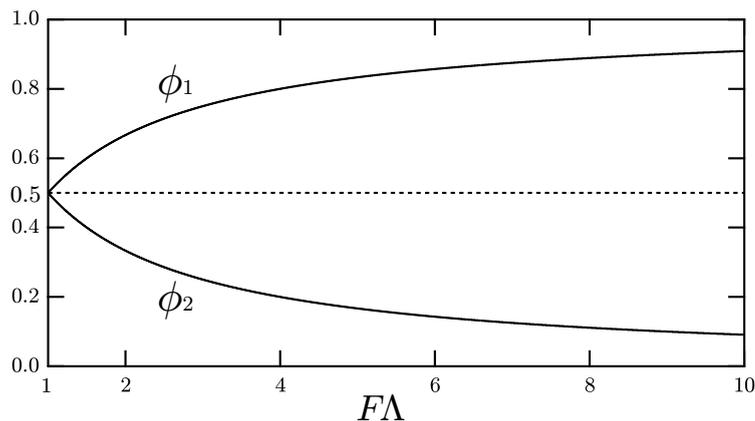


FIGURE 4.8: Évolution prédite des fractions volumiques  $\phi_1$  et  $\phi_2=1 - \phi_1$  avec  $F\Lambda$ .

soit :

$$\phi_1 = F\Lambda\phi_2. \quad (4.12)$$

La conservation du volume (Éq. 4.3), s'exprimant simplement  $\phi_1 + \phi_2 = 1$ , conduit au résultat final :

$$\phi_1 = \frac{F\Lambda}{1 + F\Lambda} \quad \text{et} \quad \phi_2 = \frac{1}{1 + F\Lambda}. \quad (4.13)$$

Ces prédictions sont illustrées sur la figure 4.8. En cas de parfaite symétrie, la condition  $F\Lambda=1$  implique, comme attendu, les valeurs triviales  $\phi_1 = \phi_2 = 1/2$ . En revanche, dès qu'une brisure de symétrie est introduite, aussi bien sur les largeurs ( $F > 1$ ) que sur les longueurs ( $\Lambda > 1$ ) des bras,  $\phi_1$  croît et  $\phi_2$  décroît, comme obtenu expérimentalement. L'allure des évolutions prédites est compatible avec les observations expérimentales (Fig. 4.6) ; une comparaison quantitative est réalisée dans le prochain paragraphe. Pour aboutir aux expressions de  $n_1$  et  $n_2$ , les équations 4.6 et 4.9 fournissent les résultats intermédiaires :

$$n_1 = \frac{L_1 L_d^{eff}}{\lambda L_d^1} \quad \text{et} \quad n_2 = \frac{L_2 L_d^{eff}}{\lambda L_d^2}. \quad (4.14)$$

En insérant l'expression des fractions volumiques (Éq. 4.7) obtenues par les relations 4.13, il vient alors :

$$n_1 = \frac{L_1 w_1(1 + F\Lambda)}{\lambda w F\Lambda} \quad \text{et} \quad n_2 = \frac{L_2 w_2(1 + F\Lambda)}{\lambda w}. \quad (4.15)$$

De nouveau, remarquons que lorsque  $F\Lambda=1$ , la symétrie du dispositif implique directement  $n_1=n_2$ . En conséquence, ce modèle très simple prédit que les fractions volumiques et nombres de *slugs* fils dépendent seulement de la géométrie de l'obstacle ou de la boucle, indépendamment des paramètres physico-chimiques et hydrodynamiques du problème. De façon plus surprenante encore, nous retrouvons les résultats du chapitre précédent obtenus pour la fragmentation d'un objet isolé sur un obstacle long. le rapport des fractions volumiques vaut :

$$\frac{\phi_1}{\phi_2} = F\Lambda, \quad (4.16)$$

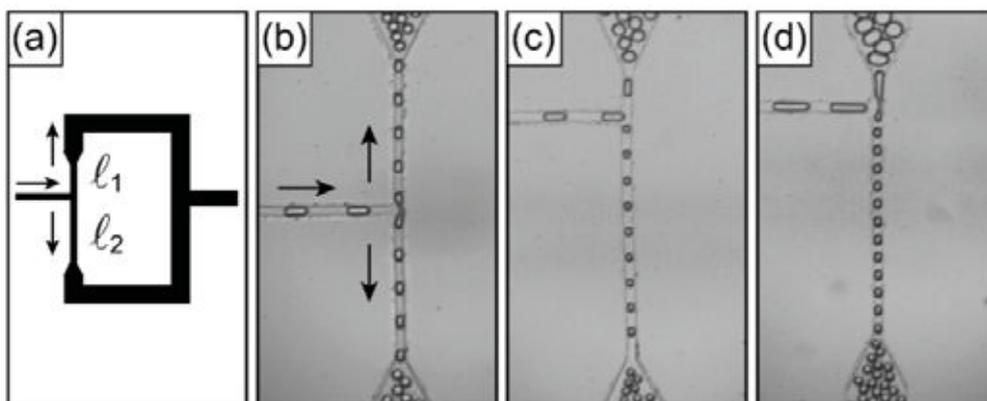


FIGURE 4.9: Le processus de fragmentation au niveau de la jonction en T engendre la création de deux nouveaux *slugs* dans les bras de la jonction. La résistance hydrodynamique du bras 1 (resp. 2) est principalement donnée par la première partie du canal de plus fort confinement, de longueur  $\ell_1$  (resp.  $\ell_2$ ) (a). Le rapport des volumes des *slugs* créés est égal au rapport  $\ell_2/\ell_1$  des longueurs entre les deux bras, valant respectivement 1 (b), 5 (c) et 8 (d). Figure tirée de [18].

égal au rapport des résistances hydrodynamiques des deux bras « à vide », c'est-à-dire en l'absence de *slug* à l'intérieur. Ce résultat, frappant au premier abord, apporte une explication théorique aux résultats expérimentaux trouvés dans la littérature [18], dans le cas d'une jonction en T (Fig. 4.9). Cette dernière étant conçue de telle sorte que  $F = 1$  (les deux bras ont des sections identiques), le rapport des fractions volumiques vaut directement  $\Lambda$ , en excellent accord avec les résultats issus de cet article.

Enfin, le rapport des nombres de *slugs* présents dans chaque bras vaut :

$$\frac{n_2}{n_1} = FW\Lambda^2. \quad (4.17)$$

Alors que  $W \leq 1$  et  $F \geq 1$ , il est possible de montrer que le produit  $FW$  vérifie toujours  $FW \geq 1$ . Comme  $\Lambda \geq 1$  par définition, il y a toujours plus de *slugs* dans le bras de grande résistance hydrodynamique. La forte dépendance en  $\Lambda^2$  peut s'interpréter comme le cumul de deux effets allant dans le même sens : d'une part, les *slugs* dans le bras de faible résistance hydrodynamique sont plus petits, d'après les relations 4.13, il est donc possible d'en mettre plus dans ce bras-là. D'autre part, ce bras étant d'autant plus long que  $\Lambda$  est grand, il est possible d'en mettre encore davantage, le procédé de remplissage est donc magnifié, d'où la variation quadratique en  $\Lambda^2$ .

### 3 Comparaison avec l'expérience

#### 3.1 Fractions volumiques des *slugs* créés

En préambule, notons que les résultats présentés sur les figures 4.3 (b) et 4.4 (b) semblent en bon accord avec l'approximation de champ moyen : avec  $\Lambda=1$  et

$F=2.5$ , le modèle prédit  $\phi_2 \simeq 0.28$ , en bon accord avec les droites horizontales tracées en pointillés. De façon plus systématique, et en lien avec les relations 4.13, reconsidérons les résultats de la figure 4.6 en traçant cette fois-ci  $(1 + F\Lambda)\phi_i$  en fonction de  $F\Lambda$ , pour  $i = 1, 2$ , et dans les deux géométries présentées au début de ce chapitre (Fig. 4.10). L'accord entre le modèle de type champ moyen et les expériences est plutôt satisfaisant, compte tenu des fortes approximations faites.

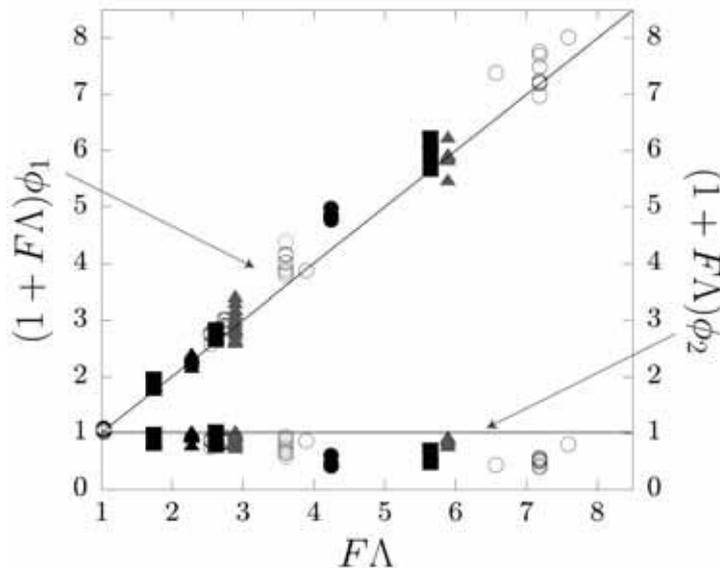


FIGURE 4.10: Fractions volumiques des *slugs* créés dans les deux bras de l'obstacle, ou de la boucle : comparaison expérience/théorie (Éq. 4.13). Nous représentons les quantités  $(1 + F\Lambda)\phi_{1,2}$  en fonction de  $F\Lambda$  de sorte à reconnaître les tendances, respectivement linéaire et constante, prédites par les relations 4.13. La couleur et la forme des symboles se réfèrent aux mêmes conventions que la figure 4.6.

### 3.2 Nombres de *slugs* générés

Nous mesurons également le nombre moyen de *slugs* présents dans chaque bras du dispositif (obstacle ou boucle). Nous remarquons à nouveau que les résultats obtenus sont en excellent accord avec les prédictions tirées de l'approximation de champ moyen (Fig. 4.11).

## 4 Conditions de validité de l'approche « champ moyen »

Nous devons maintenant déterminer sous quelles conditions ce modèle simple peut s'appliquer. Tout d'abord, les relations 4.6 ne sont valables que lorsque  $n_i \gg 1$ , avec  $i = 1, 2$ . Cette condition peut se réexprimer à l'aide des relations 4.15 comme :

$$\lambda \ll \min(\lambda_c^{(1)}, \lambda_c^{(2)}), \quad (4.18)$$

avec :

$$\lambda_c^{(1)} = L_1 \frac{w_1(1 + F\Lambda)}{wF\Lambda} \quad \text{et} \quad \lambda_c^{(2)} = L_2 \frac{w_2(1 + F\Lambda)}{w}. \quad (4.19)$$

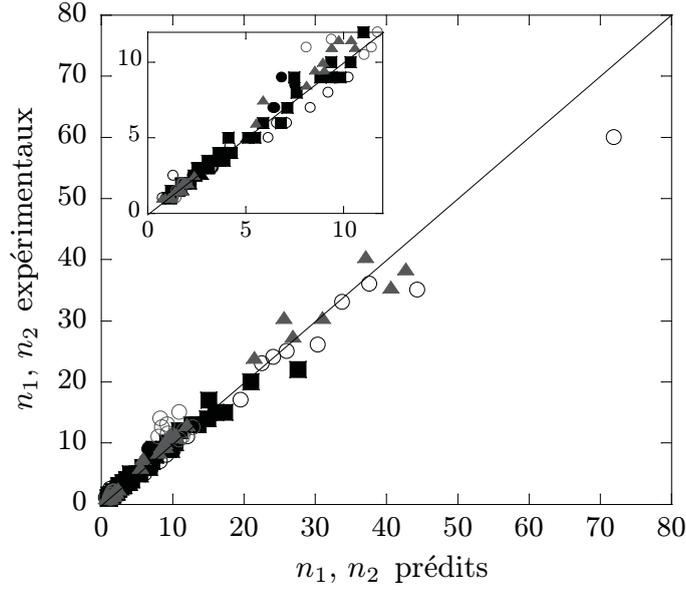


FIGURE 4.11: Nombres de *slugs* présents dans les deux bras de l'obstacle, ou de la boucle : comparaison entre expérience et théorie (Éq. 4.15). La couleur et la forme des symboles se réfèrent aux mêmes conventions que la figure 4.6.

Analysons maintenant dans quelle mesure nous pouvons négliger les fluctuations temporelles des sauts de pression devant les valeurs moyennes. Dans le cas général, le saut de pression  $\Delta p_i(t)$  dans le bras  $i$  peut s'écrire :

$$\Delta p_i(t) = \frac{\eta_c f_i v_i}{h^2} (L_i + \Delta \eta L_i^s(t)) + 2\gamma \varepsilon_i(t) \left( \frac{1}{w_i} + \frac{1}{h} \right), \quad (4.20)$$

cette forme tenant compte à présent du saut de pression capillaire. Dans cette expression,  $L_i^s(t)$  désigne, à l'instant  $t$ , la longueur totale occupée par les *slugs* dans le bras  $i$ . La quantité  $\varepsilon_i(t)$  peut prendre trois valeurs : 1, 0 ou  $-1$  selon que la différence entre le nombre d'interfaces avant et arrière des *slugs* dans le bras  $i$  vaille respectivement 1 (un *slug* est en train de rentrer, aucun *slug* ne sort), 0 (aucun *slug* ne rentre ni ne sort, ou deux *slugs* sont respectivement en train de rentrer et de sortir simultanément) ou  $-1$  (un *slug* est en train de sortir, aucun *slug* ne rentre). Puisque  $L_i$  et  $\lambda_i$  ne sont pas commensurables dans le cas général, nous pouvons écrire  $L_i^s(t)$  sous la forme :

$$L_i^s(t) = N_i L_d^i + \ell_i(t), \quad (4.21)$$

avec  $N_i = \text{floor}(L_i/\lambda_i)$ , et  $\ell_i(t)$  une longueur nécessairement plus petite que  $L_d^i$ .  $N_i$  correspond au nombre minimal de *slugs* pouvant entièrement tenir dans le bras  $i$ ,  $\ell_i(t)$  correspondant à la longueur supplémentaire due aux *slugs* en train de rentrer ou de sortir du bras  $i$  à l'instant  $t$ . Dans le cas  $\lambda_i \ll L_i$ , nous pouvons écrire  $N_i \simeq L_i/\lambda_i$ , le saut de pression  $\Delta p_i(t)$  peut alors, à l'aide de l'équation 4.9, se mettre sous la forme :

$$\Delta p_i(t) = \frac{\eta_c f_i v_i L_i}{h^2} \left[ \left( 1 + \Delta \eta \frac{L_d^{eff}}{\lambda} \right) + \Delta \eta \frac{\ell_i(t)}{L_i} + \varepsilon_i(t) \frac{2v}{Cv_i} Z_i \left( 1 + \frac{w_i}{h} \right) \right], \quad (4.22)$$

avec  $Z_i = (f_i w_i L_i h^{-2})^{-1}$ . Ainsi, nous pouvons nous ramener à l'approximation de champ moyen sous les conditions suivantes :

$$|\Delta\eta| \frac{L_d^i}{L_i} \ll 1 + \Delta\eta \frac{L_d^{eff}}{\lambda}, \quad (4.23)$$

$$\frac{2v}{\mathcal{C}v_i} Z_i \left(1 + \frac{w_i}{h}\right) \ll 1 + \Delta\eta \frac{L_d^{eff}}{\lambda}. \quad (4.24)$$

La condition 4.23 traduit le fait que la longueur résistive d'un *slug* est très petite devant la longueur résistive du bras entier. La condition 4.24 exprime le fait que la contribution capillaire du saut de pression est négligeable devant la perte de charge visqueuse du bras entier. Ces conditions impliquent des restrictions sur la distance  $\lambda$  entre deux *slugs* consécutifs, ainsi que sur le nombre capillaire  $\mathcal{C}$ . Distinguons plus bas les cas  $\Delta\eta \geq 0$  et  $\Delta\eta < 0$ .

#### 4.1 Cas $\Delta\eta \geq 0$

Dans le cas  $\Delta\eta \geq 0$ , la condition 4.23 peut se réécrire à l'aide des relations 4.14 comme :

$$\Delta\eta \frac{L_d^{eff}}{\lambda n_i} \ll 1 + \Delta\eta \frac{L_d^{eff}}{\lambda}, \quad (4.25)$$

$$n_i \gg \frac{\Delta\eta L_d^{eff} / \lambda}{1 + \Delta\eta L_d^{eff} / \lambda}. \quad (4.26)$$

Ce critère est moins restrictif que la condition  $n_i \gg 1$ . De fait la condition 4.23 est satisfaite dès l'instant que la condition 4.18 l'est. La condition 4.24 se réécrit, à l'aide des équations 4.4 et 4.5 comme :

$$\mathcal{C} \gg \frac{2\lambda Z_i \left(1 + \frac{w_i}{h}\right)}{\lambda_i \left(1 + \Delta\eta \frac{L_d^{eff}}{\lambda}\right)}. \quad (4.27)$$

À l'aide des résultats précédents et de la condition  $W \leq 1$ , il est possible de montrer que le terme à droite de l'inégalité précédente est plus petit pour le bras 1 que pour le bras 2. En gardant donc la condition la plus stricte, il vient :

$$\mathcal{C} \gg \frac{2\lambda Z_1 \left(1 + \frac{w_1}{h}\right)}{\lambda_1 \left(1 + \Delta\eta \frac{L_d^{eff}}{\lambda}\right)} = \frac{2n_1 \lambda Z_1 \left(1 + \frac{w_1}{h}\right)}{L_1 \left(1 + \Delta\eta \frac{L_d^{eff}}{\lambda}\right)}, \quad (4.28)$$

$$\mathcal{C} \gg 2 \frac{w_1}{w} Z_1 \left(1 + \frac{w_1}{h}\right) \frac{1 + F\Lambda}{F\Lambda} \frac{1}{1 + \Delta\eta L_d^{eff} / \lambda}. \quad (4.29)$$

Ce dernier critère admet les limites asymptotiques suivantes, quand  $\lambda \gg \Delta\eta L_d^{eff}$  :

$$\mathcal{C} \gg 2 \frac{w_1}{w} Z_1 \left(1 + \frac{w_1}{h}\right) \frac{1 + F\Lambda}{F\Lambda}, \quad (4.30)$$

et dans la limite inverse  $\lambda \ll \Delta\eta L_d^{eff}$  :

$$\mathcal{C} \gg 2 \frac{w_1}{w} Z_1 \left(1 + \frac{w_1}{h}\right) \frac{1 + F\Lambda}{F\Lambda} \frac{\lambda}{\Delta\eta L_d^{eff}}. \quad (4.31)$$

Pour résumer ce premier cas  $\Delta\eta \geq 0$ , l'approximation de champ moyen est valable si  $\lambda$  et  $\mathcal{C}$  satisfont les équations 4.18 et 4.29.

## 4.2 Cas $\Delta\eta < 0$

Dans le cas  $\Delta\eta < 0$ , la condition 4.23 devient :

$$-\Delta\eta \frac{L_d^i}{L_i} \ll 1 + \Delta\eta \frac{L_d^{eff}}{\lambda}, \quad (4.32)$$

Or, d'après les relations 4.6, 4.9, 4.15 et 4.19 :

$$\frac{L_d^i}{L_i} = \frac{L_d^i}{L_d^{eff}} \frac{L_d^{eff}}{L_i} = \frac{\lambda_i}{\lambda} \frac{L_d^{eff}}{L_i} = \frac{L_d^{eff}}{n_i \lambda} = \frac{L_d^{eff}}{\lambda_c^{(i)}}. \quad (4.33)$$

Puisque l'équation 4.18 impose  $\lambda \ll \min(\lambda_c^{(1)}, \lambda_c^{(2)})$ , le terme de gauche de la condition 4.32 devient négligeable devant le second terme de droite, et cette condition est finalement satisfaite lorsque :

$$\lambda \ll -\Delta\eta L_d^{eff}. \quad (4.34)$$

En injectant cette condition dans l'équation 4.24, il est immédiat d'obtenir la seconde condition sur le nombre capillaire  $\mathcal{C}$ , au vu du raisonnement effectué dans le cas  $\Delta\eta > 0$  :

$$\mathcal{C} \gg 2 \frac{w_1}{w} Z_1 \left(1 + \frac{w_1}{h}\right) \frac{1 + F\Lambda}{F\Lambda}. \quad (4.35)$$

Pour résumer ce second cas  $\Delta\eta < 0$ , le modèle de type champ moyen est valable si  $\lambda$  et  $\mathcal{C}$  satisfont les équations 4.18, 4.34 et 4.35.

## 5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons prouvé qu'en travaillant avec des dispositifs (obstacles ou boucles) suffisamment longs devant la distance séparant deux *slugs* consécutifs en amont, le comportement du système et la dynamique de fragmentation s'avèrent drastiquement différents, en comparaison avec le cas de *slugs* isolés décrit dans le chapitre précédent. Nous avons en effet montré dans le cadre de cette approche que les fractions volumiques des *slugs* fils créés ne dépendaient plus que des paramètres géométriques de l'obstacle, ou de la boucle. En s'inspirant de travaux récents sur le trafic de gouttelettes dans des jonctions microfluidiques [89, 90], nous développons une approximation de champ moyen basée sur les arguments physiques du chapitre précédent afin de rationaliser les expériences dans cette configuration. Cette approche se révèle être en bon accord avec les résultats expérimentaux obtenus, et apporte des fondements théoriques à un résultat intuitif dans un travail pionnier traitant de fragmentation en microfluidique [18]. Bien que nous ayons précédemment insisté sur l'aspect paradoxal de ce résultat, notre analyse démontre finalement qu'il n'en est rien : malgré la présence de *slugs* dans chaque bras du dispositif, les fractions volumiques dépendent uniquement du rapport des résistances hydrodynamiques des deux bras à vide. Nous avons également dressé les conditions d'application de cette approximation de champ moyen.

La publication [105] résultant de cette étude est reportée à la fin de ce manuscrit (Publication B).



# Chapitre 5

## Travaux collaboratifs en cours ou publiés : émergence de dynamiques complexes en microfluidique

Pour clore cette première partie, nous présentons brièvement deux projets menés en collaboration avec Axelle Amon, maître de conférences à l'IPR, ainsi qu'Alexandre Schmit, doctorant co-encadré par Pascal Panizza et Laurent Courbin depuis octobre 2012. Les perspectives de ces travaux en microfluidique s'inscrivent par continuité dans le cadre de sa thèse.

### 1 Dynamiques de fragmentation complexes induites par des effets coopératifs

Dans les chapitres précédents, nous avons étudié la fragmentation d'objets isolés sur un obstacle court (chapitre 3), ainsi que la fragmentation d'assemblées monodisperses d'objets sur un obstacle long (chapitre 4). Dans le prolongement de ces études, nous avons eu l'occasion, sous certaines conditions expérimentales intermédiaires entre celles discutées auparavant (longueurs des bras intermédiaires, *slugs* suffisamment proches pour interagir hydrodynamiquement entre eux), d'observer des dynamiques oscillantes de fragmentation lorsque la distance entre *slugs*  $\lambda$  devient comparable à la longueur  $L$  de l'obstacle (Fig. 5.1). Ces dynamiques complexes résultent de l'émergence d'effets coopératifs entre objets. En effet, la présence de *slug* fils dans les bras de l'obstacle, alors même que le *slug* suivant heurte l'aplomb de ce dernier, a pour conséquence d'altérer les résistances hydrodynamiques dans chaque bras et de modifier ainsi les équations régissant le processus dynamique de fragmentation. La figure 5.2 illustre la richesse des comportements observés en faisant varier la distance  $\lambda$  entre *slugs* par ajustement du débit d'huile de dilution<sup>1</sup>  $q_0^d$  : au-

---

1. Tous les autres paramètres sont maintenus constants hormis la vitesse  $v$  qui, comme nous l'avons dit dans un chapitre précédent, est couplée à  $\lambda$  du fait du mode de dilution. Nous pouvons toutefois décrire ce couplage de façon simple. En indiquant respectivement par  $e$  et  $s$  les quantités prises en entrée et en sortie du module de dilution, la conservation du débit d'eau implique  $q_{w,e} = q_{w,s}$ , soit, puisque le volume du *slug* est également conservé après la dilution,  $f_e = f_s = f$ , avec  $f$  la fréquence de production. Or, la vitesse est reliée à la fréquence par la relation  $f = v_e / \lambda_e = v_s / \lambda_s$ , d'où  $v_s = v_e \lambda_s / \lambda_e$ . Comme  $v_e / \lambda_e$  est indépendant de  $q_0^d$ , la relation de couplage peut se résumer en

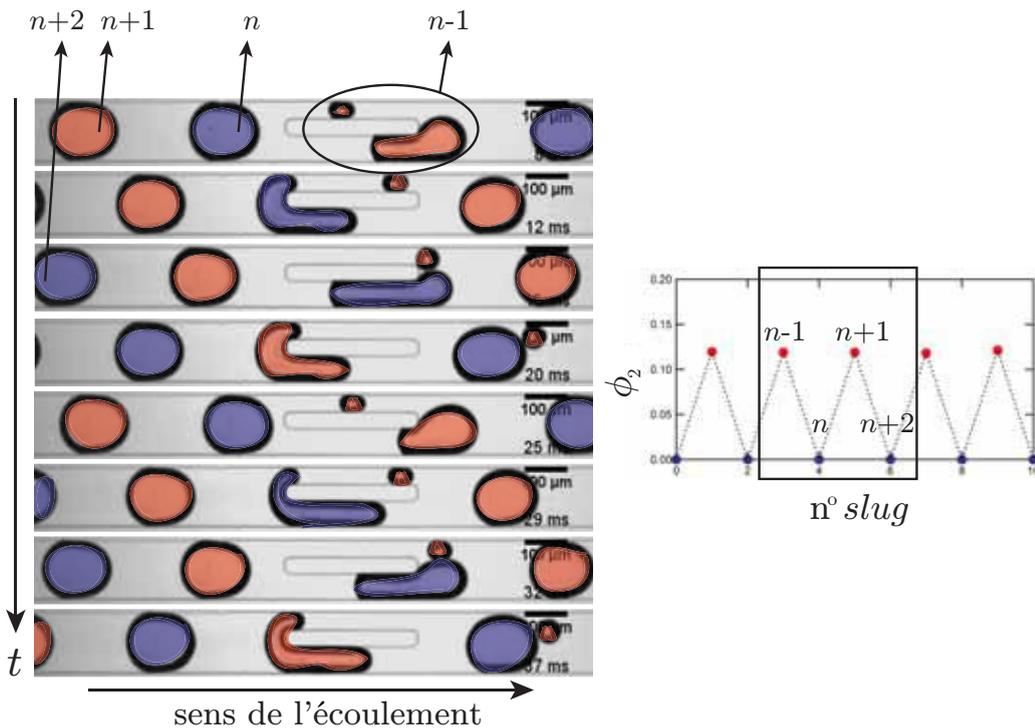


FIGURE 5.1: Mise en évidence d'une séquence d'effets coopératifs subis par un train périodique de *slugs*, distants de  $\lambda=320 \mu\text{m}$ , venant impacter sur un obstacle de longueur  $L=300 \mu\text{m}$ . La barre d'échelle correspond à une longueur de  $100 \mu\text{m}$ . Uniquement un *slug* sur deux se fragmente : les *slugs* qui se fragmentent sont colorés en rouge, les *slugs* qui ne se fragmentent pas sont colorés en bleu. Le graphe suit l'évolution de la fraction volumique  $\phi_2$  du *slug* créé dans le bras fin, cette dernière prenant de fait deux valeurs discrètes, 0 et environ 0.13. Les *slugs* sont numérotés selon leur ordre d'arrivée sur l'obstacle.

dessus d'une certaine interdistance notée  $\lambda_c$  et fonction des nombreux paramètres du système, la fraction volumique  $\phi_2$  est approximativement constante dans le temps, nous retrouvons le problème résolu de la fragmentation d'objets isolés. Lorsque nous faisons décroître  $\lambda$  en-dessous de  $\lambda_c$ , nous observons des effets coopératifs et pouvons identifier la répétition de certains motifs dans le temps, de période 5, 4, 8... Actuellement en phase de soumission, cette étude [106], ayant été poursuivie par Alexandre Schmit, n'est pas détaillée dans la suite.

## 2 Dynamiques de répartition dans des réseaux complexes

Nous nous sommes également intéressés au trafic de gouttelettes en microfluidique. Tout comme l'opération élémentaire de fragmentation, il est possible de contrôler la circulation de gouttes dans un réseau microfluidique de manière active, par l'application d'un champ électrique par exemple [82], ou de manière passive

sortie de dilution comme  $v \propto \lambda$  : plus les *slugs* sont dilués, plus ils s'écoulent vite.

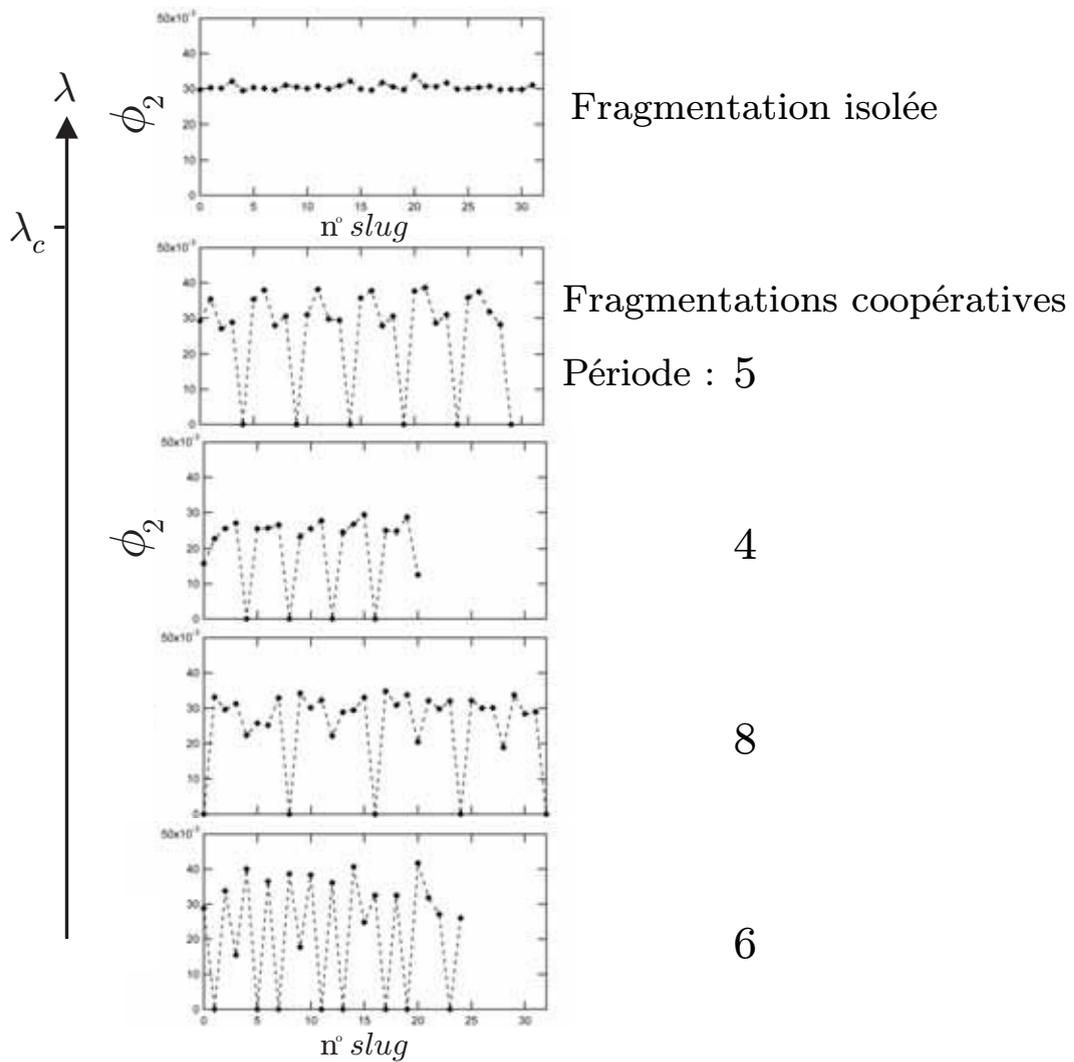


FIGURE 5.2: Fraction volumique  $\phi_2$  indexée par le numéro du *slug* : influence de la dilution  $\lambda$ . Les *slugs* sont numérotés selon leur ordre d'arrivée sur l'obstacle.

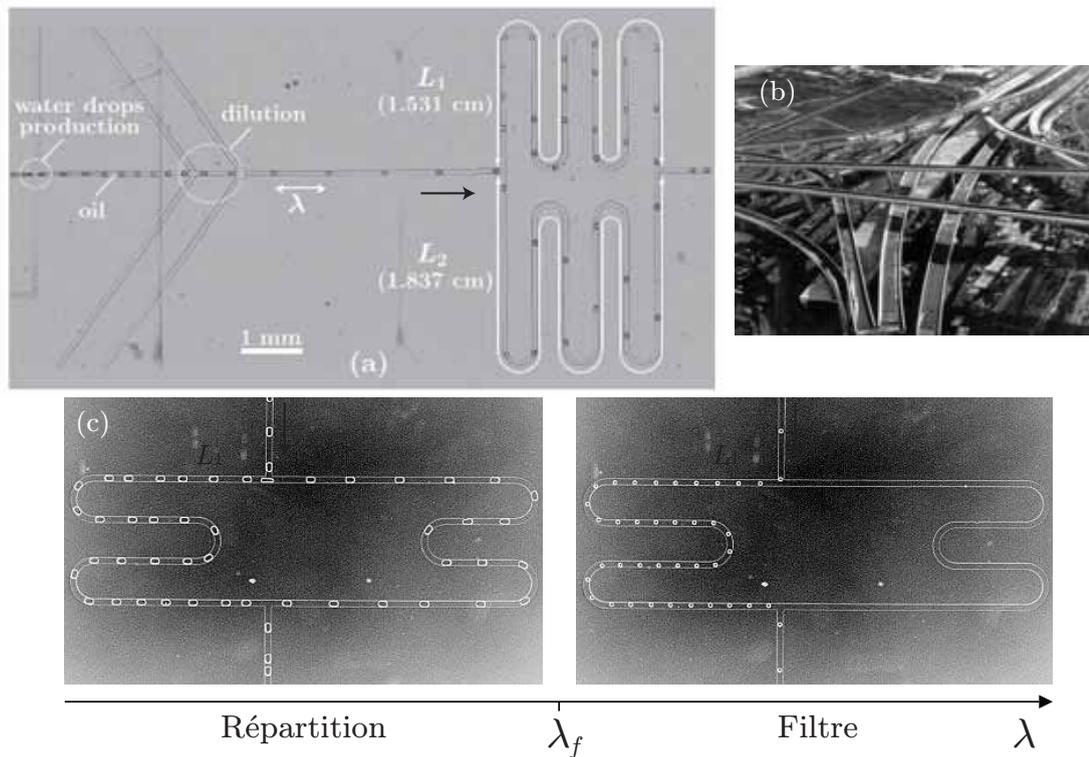


FIGURE 5.3: (a) Régime de répartition d'un train monodisperse de gouttes dans une boucle asymétrique possédant deux bras de longueurs différentes  $L_1$  et  $L_2 > L_1$ . La flèche noire indique le sens de l'écoulement. Figure adaptée de [89]. (b) Échangeur autoroutier. (c) Zone d'existence des deux régimes en fonction de  $\lambda$ . Les flèches noires indiquent à nouveau le sens de l'écoulement.

en utilisant uniquement les propriétés géométriques du canal. Nous avons encore choisi d'exploiter la voie passive dans ce travail. En utilisant les mêmes arguments physiques que ceux présentés précédemment dans ce manuscrit (analogie électrohydraulique aux bas nombres de Reynolds), des travaux antérieurs effectués dans le département [87, 88, 89] et publiés dans la littérature (voir les références citées dans l'article [87]) ont établi l'apparition de différents régimes de répartition, dans le cas d'une boucle asymétrique constituée de deux bras de largeurs et hauteurs identiques, mais de longueurs différentes  $L_1$  et  $L_2$  (Fig. 5.3 (a)). Par souci de simplicité, nous limitons ici la discussion aux régimes pour lesquels les gouttes ne collisionnent pas au nœud d'entrée de la boucle [88]. Quel que soit le régime, l'expérience montre que les gouttes font preuve d'« efficacité » en préférant toujours emprunter le chemin de débit le plus fort. Par certains aspects, ces résultats pourraient apporter un regard nouveau à la gestion du trafic automobile et aider à trouver des solutions afin de désengorger les voies de circulation en cas de forte affluence, ainsi que désamorcer ou, le cas échéant, décongestionner les bouchons autoroutiers<sup>2</sup> (Fig. 5.3 (b)). Nous

2. Pour la géométrie simple utilisée, il serait plus adéquat de parler de route départementale : en effet, les gouttes ne peuvent pas se doubler ! En élargissant le canal et en autorisant les gouttes à se rattraper, voire se dépasser, d'autres phénomènes plus complexes interviennent : instabilités en zig-zag [107, 108, 109], « serpent » [110]...

rappelons brièvement les principaux résultats de cette étude.

- Lorsque le train périodique de gouttes monodisperses, de taille  $L_d$ , est suffisamment dilué en amont de la boucle, les gouttes passent toutes par le bras le plus court, soit celui-ci présentant la résistance hydrodynamique la plus faible, et par lequel le débit est donc le plus fort (régime de filtre). La boucle vide se comporte en effet comme un pont diviseur de courant.
- Si le train de gouttes devient assez concentré, il apparaît un second régime pour lequel les gouttes empruntent les deux bras, avec une équirépartition du débit dans les deux bras (régime de répartition).
- En notant  $\lambda$  la distance séparant les gouttes dans le train en amont, la transition entre ces deux régimes intervient pour une valeur critique  $\lambda_f$  dépendant des longueurs  $L_1$ ,  $L_2$  et d'une longueur résistive  $L_g$  ajoutée par chaque goutte au canal en termes de résistance hydrodynamique (voir Fig. 5.3 (c)). Cette longueur résistive est fonction de  $L_d$ , des dimensions latérales du canal et des viscosités des deux phases en présence.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons généralisé cette approche dans une géométrie constituée d'une boucle complexe comportant une branche ramifiée par rapport au cas précédent (Fig. 5.4). L'augmentation du nombre de degrés de liberté du système engendre l'apparition de trois régimes différents - filtre, filtre partiel et répartition - caractérisés par le nombre de chemins préférentiels empruntés par les gouttelettes. Nous déterminons les transitions entre ces différents régimes en développant des descriptions successivement continue et discrète de l'écoulement. Ici encore, nous démontrons que plus le train de gouttes est concentré, plus les gouttelettes sont amenées à explorer des chemins de haute résistance hydrodynamique « à vide », c'est-à-dire en l'absence de gouttes. De façon naturelle, la ramification fait apparaître l'analogue d'un diviseur de courant en électricité : la comparaison de sa résistance équivalente avec la résistance de la branche parallèle sélectionne la répartition des gouttelettes dans chaque régime. Ce travail ayant donné lieu à une publication [111], celle-ci est reportée à la fin de ce manuscrit (Publication C).

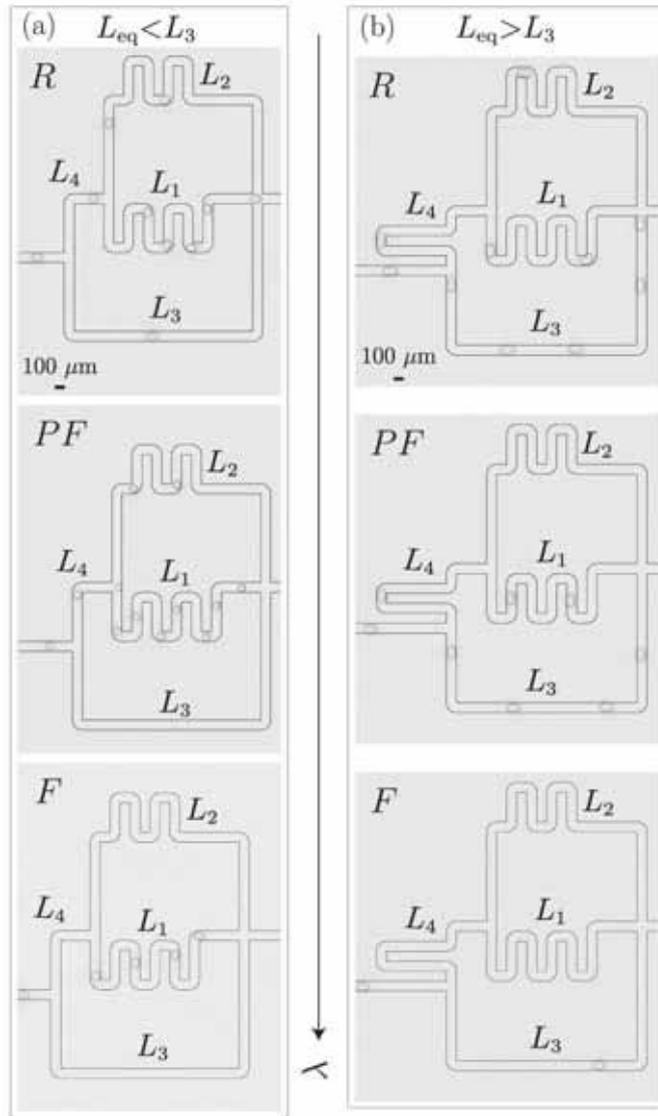


FIGURE 5.4: Régimes de répartition dans un réseau ramifié : à dilution croissante, nous observons successivement un régime de répartition ( $R$ , trois chemins explorés), filtre partiel ( $PF$ , deux chemins explorés) et filtre ( $F$ , un unique chemin exploré). Sur chaque image, l'écoulement s'effectue de la gauche vers la droite. Le chemin non ramifié a une longueur  $L_3$ . En termes de résistance hydrodynamique, le chemin ramifié a une longueur équivalente  $L_{eq} = L_4 + L_1 L_2 / (L_1 + L_2)$ . Comme attendu par la théorie, la répartition des gouttes dans ce réseau se fait différemment dans les cas  $L_{eq} < L_3$  (a) et  $L_{eq} > L_3$  (b). Figure tirée de [111].

## Deuxième partie

### Films liquides et bulles de savon



# Préambule

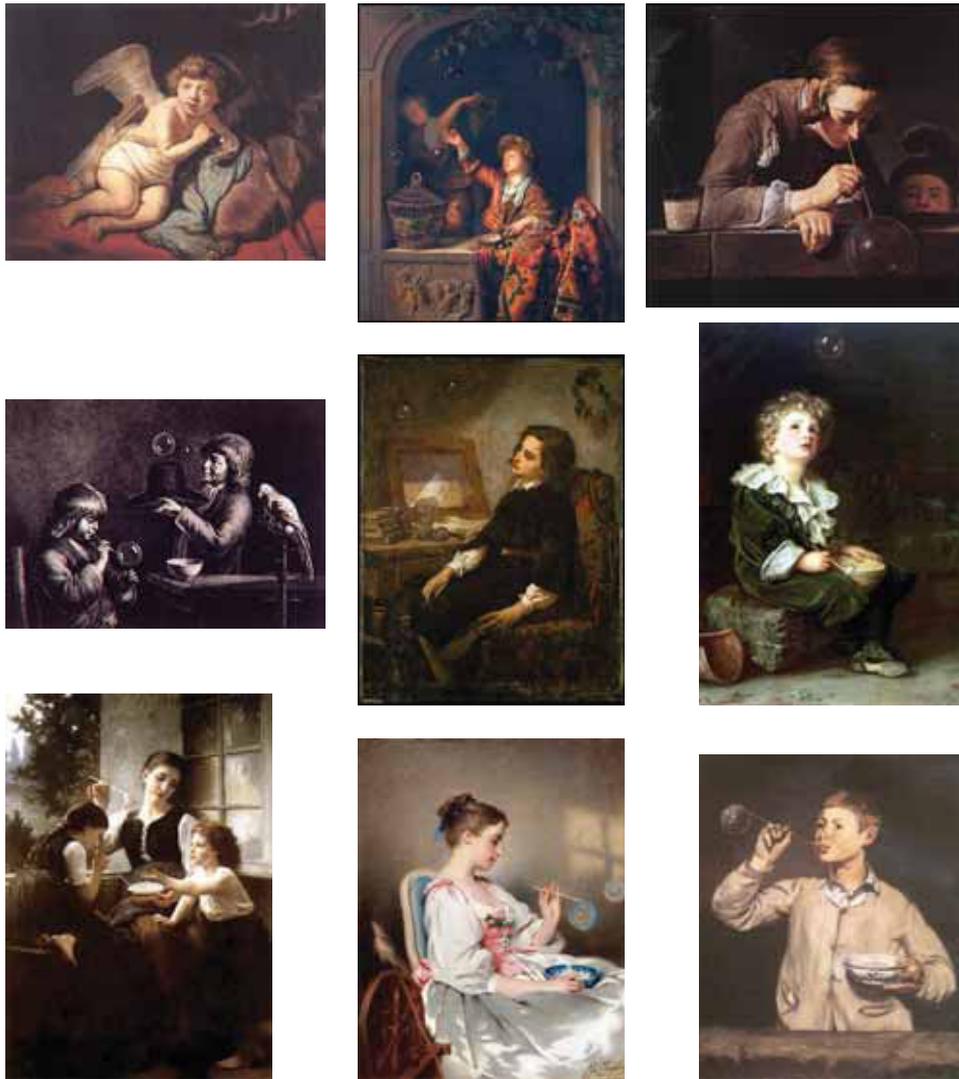


FIGURE 5.5: De Rembrandt à Manet, les bulles de savon, véritable allégorie de la vie, représentent une inépuisable source d'inspiration pour les peintres, symbolisant tour à tour l'émerveillement de l'enfant devant leurs couleurs irisées, mais aussi l'angoisse et la désillusion accompagnant leur éclatement inéluctable [112].

La seconde partie de ce manuscrit est dédiée aux films liquides minces, en particulier les bulles et films de savon. Bien que nous en rencontrions fréquemment dans la vie quotidienne, de la cuisine à la salle de bain, ces objets fluides n'en demeurent

pas moins fascinants. Il suffit pour le constater d'apercevoir les audiences fournies et hétéroclites réunies tous les ans au cours de la Fête de la Science. De par leur transparence finement irisée et leur courbure, les bulles de savon ont été considérées comme de réels défis de représentation pour les peintres, quel que soit le mouvement (Fig. 5.5) : dès 1500, un livre d'heures illustre des enfants faisant des bulles de savon. Ces dernières jouent également les Muses auprès de certains poètes. En plus de la symbolique de la vanité développée à l'époque baroque (selon les propres mots d'Érasme, *Homo bulla* [113]), les bulles de savon, à la fois délicates et fragiles, magiques et éphémères, nous exhortent à profiter de leur beauté, malgré la fugacité et l'absurdité de leur destin. Cette ambivalence se retrouve dans les mots de Cats<sup>3</sup> [114] :

*Prête attention à l'enfant qui fait des bulles  
Et vois combien il est ébahi  
Que tant de mousse et de bave soufflée  
Ne dure qu'un temps.*

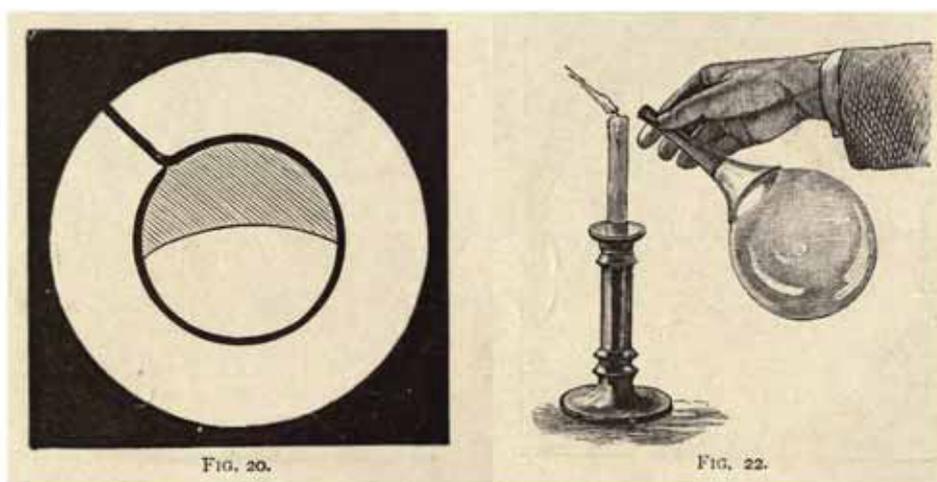


FIGURE 5.6: À gauche : les forces de tension superficielle, tendant à minimiser l'aire de l'interface liquide/air, sont responsables de la légère déformation du fil élastique. Celui-ci adopte la forme d'un arc de cercle, profil minimisant la surface du film restant compte tenu des contraintes imposées (extrémités de l'élastique fixées sur le cadre). À droite : en vertu de la loi de Young-Laplace (définie dans le chapitre 3), la tension superficielle impose une surpression à l'intérieur de la bulle, côté concave de l'interface. En ouvrant cette dernière à l'air libre, un écoulement d'air s'établit selon l'opposé du gradient de pression et vient donc vider la bulle, engendrant le frémissement de la flamme de la bougie. Figure tirée de [115].

S'amuser avec des films et bulles de savon demeure une activité distrayante à tout âge, certes, mais représente également un fabuleux terrain de jeu pour les scientifiques, physiciens et mathématiciens notamment. Malgré 200 ans de capillarité, ce domaine constitue un sujet de recherche toujours très actif. En effet, l'aspect quasi-

3. Jacob Cats (1577-1660), poète et politicien néerlandais.

ment bidimensionnel de ces objets<sup>4</sup> leur confère une forte prédominance des effets de surface, parmi lesquels les effets capillaires présentés dans le chapitre introductif de ce manuscrit. Ces effets sont illustrés<sup>5</sup> sur la figure 5.6. L'importance des effets superficiels s'expriment aussi à travers la forme arborée par un film de savon tendu sur un cadre de forme arbitraire : celui-ci exhibe à l'équilibre une surface mathématiquement minimale afin de minimiser son énergie de surface. Depuis les travaux pionniers d'Euler et Lagrange, la particularité topologique de ces objets continue d'intéresser les mathématiciens à l'heure actuelle. Nous aurons l'occasion d'approfondir ce point dans le premier chapitre de cette partie.

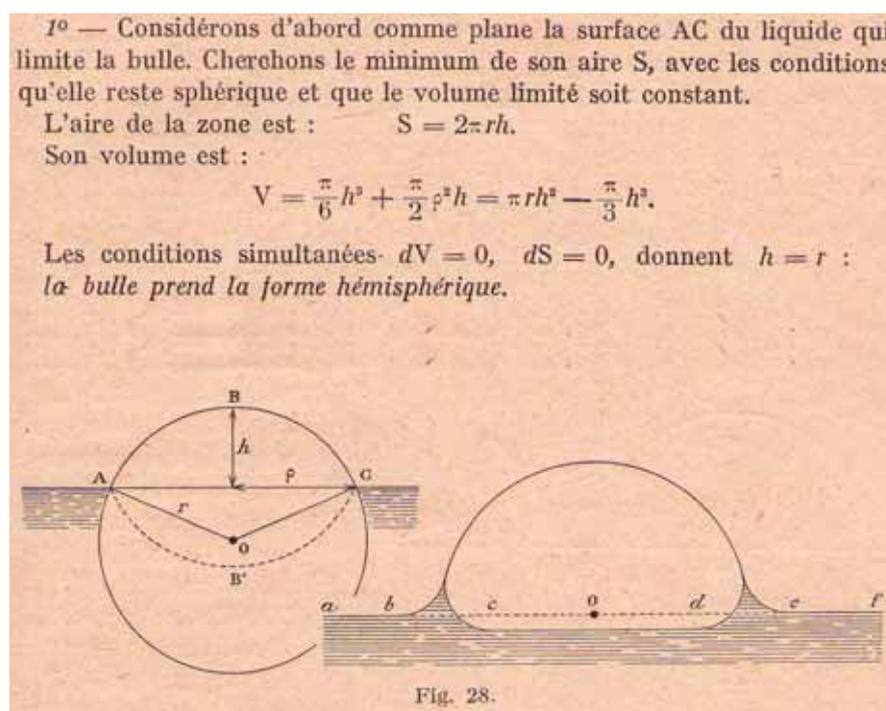


FIGURE 5.7: Bulle à la surface d'un liquide. Figure tirée de [116].

Cette seconde partie va mettre en scène des bulles sphériques dans l'air, mais également des bulles à la surface d'un solide ou d'un liquide. Ces dernières bulles sont parfois surnommées « bulles d'orage », en référence aux bulles formées dans les flaques d'eau par l'impact des gouttes de pluie ; nous préférons la dénomination « bulles interfaciales » dans la suite du manuscrit. Ces objets fluides n'ont jamais cessé d'intriguer les physiciens. Bouasse<sup>6</sup> s'est intéressé à ces bulles interfaciales et a montré que, si ces dernières étaient suffisamment grandes, devant le centimètre

4. L'épaisseur du film liquide, typiquement comprise entre 0.1 et 100 microns, reste infiniment faible devant la taille macroscopique du cadre portant le film ou d'une bulle de savon dans l'air.

5. Les expériences présentées sur la figure 5.6 démontrent le caractère élastique d'un film de savon, se comportant comme la membrane d'un ballon de baudruche. Il ne faut toutefois pas pousser cette analogie trop loin : la force s'exerçant sur une membrane élastique est proportionnelle à son allongement, ce n'est généralement pas le cas pour un film liquide.

6. Henri Bouasse (1866-1953), physicien français.

typiquement <sup>7</sup>, la présence des ménisques pouvait être oubliée et ces bulles étaient hémisphériques [116] (Fig. 5.7). Nous retrouvons ainsi l'idée intuitive selon laquelle la forme de ces « demi-bulles » minimise la surface entourant le volume d'air qu'elles renferment. Plus récemment, des auteurs ont employé ces bulles interfaciales pour étudier des effets de convection thermique et observer des tourbillons analogues à des cyclones ou des ouragans à plus grande échelle [118]; cette analogie met à nouveau en exergue le caractère bidimensionnel des écoulements dans le film liquide constituant la bulle de savon. D'autres études publiées au sein du département ont été menées afin de décrire l'éclatement de bulles interfaciales en contact avec une surface, aussi bien solide que liquide [119]. Les auteurs ont montré qu'au lieu d'entraîner une simple disparition de la bulle, l'éclatement peut induire la formation d'un anneau constitué de multiples bulles environ dix fois plus petites que la bulle initiale (Fig. 5.8). Ce processus est itératif, chacune des petites bulles éclatant à son tour pour former une troisième génération de bulles encore plus petites; nous assistons ainsi à une cascade d'éclatement de bulles.

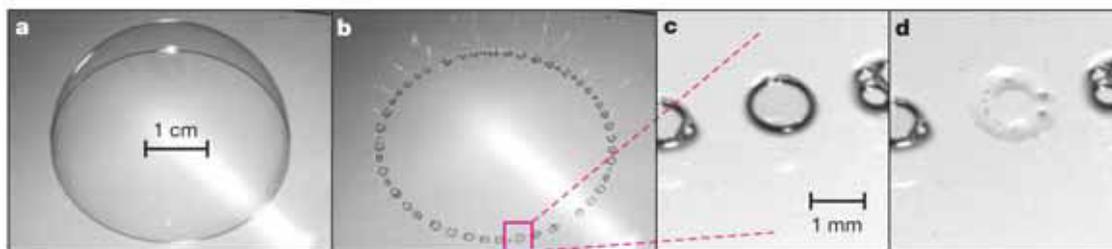


FIGURE 5.8: Une bulle de savon éclate sur une surface solide en y laissant un « cha-pelet » de bulles de petite taille. Ce processus est reproduit ensuite en cascade à plus petite échelle. Figure tirée de [119].

Mieux comprendre la dynamique et le comportement de ces bulles s'avère crucial, tant d'un point de vue fondamental qu'appliqué. La présence de bulles de gaz parasites pose par exemple de nombreux problèmes pratiques lors de la production de verre ou d'acier [120, 121], influant directement sur la qualité optique et la fragilité du matériau. Ces problématiques sont examinées de très près par des grands groupes industriels comme Saint-Gobain et Arcelor-Mittal. Par ailleurs, l'éclatement de bulles est connu pour jouer un rôle important dans les échanges des océans vers l'atmosphère, intéressant *ipso facto* les communautés de recherche en géophysique et en océanographie. En effet, quand une bulle éclate à la surface de la mer, la cavité correspondant à la bulle se referme principalement sous l'action des forces de capillarité. Ceci peut créer un jet de liquide projeté dans l'air qui va se déstabiliser à son tour en une suspension fine de gouttelettes. Ces gouttelettes forment les embruns assurant les transports gazeux et de particules marines entre les océans et l'atmosphère.

Afin d'acquérir une meilleure compréhension de ces bulles interfaciales, il convient

7. Pour plus de détails, le prolongement de ce travail a fait l'objet d'un chapitre de la thèse de Laurent Duchemin [117].

également d'étudier leur mode de formation ; nous en présentons plusieurs dans cette partie. Il est par exemple possible de créer une bulle interfaciale en retirant un cadre horizontal d'un bain liquide à vitesse contrôlée. Dans une situation purement statique, nous nous intéressons au profil d'équilibre adopté par le film reliant le cadre au bain. Les outils développés dans le cadre des surfaces minimales permettent d'interpréter les résultats expérimentaux et de prolonger ce travail en exploitant l'effet de nouvelles conditions aux limites sur certaines surfaces minimales classiques que nous revisitons dans le chapitre 6. En particulier, nous discutons des analogies fortes entre les surfaces minimales étudiées et la physique des transitions de phase au travers de phénomènes communs : bifurcation, métastabilité, hystérèse, exposant critique...

L'analyse dynamique de cette expérience de création de bulle interfaciale est poursuivie dans le chapitre 7. En variant un maximum de paramètres expérimentaux, nous montrons que plusieurs effets hydrodynamiques sont susceptibles d'entrer en compétition dans ce processus : effets capillaires, inertie du film, inertie de l'air, effets visqueux dans le liquide, effets gravitaires. Nous tentons de décrire les résultats expérimentaux par des arguments principalement dimensionnels, suffisants dans la plupart des cas pour comprendre la physique sous-jacente de ce processus.

Nous montrons ensuite qu'il est également possible de former ce type de bulle lors de l'immersion d'un film plan tendu sur un cadre horizontal dans un bain du même liquide. Contrairement à ce que pourrait laisser imaginer l'apparente symétrie temporelle de l'expérience, nous obtenons des résultats très différents par rapport au chapitre précédent. L'analyse de l'écoulement dans la mince couche d'air située entre le cadre et le bain, et dont le volume se retrouve dans la bulle interfaciale formée *in fine*, est ici au cœur du problème. Cette étude est détaillée dans le chapitre 8.

Revenons aux bulles sphériques de savon. À notre connaissance, et aussi surprenant que cela puisse paraître aujourd'hui, l'expérience consistant à souffler des bulles de savon tridimensionnelles à partir d'un film de savon bidimensionnel reste très mal comprise. Pour cause, une bulle de savon apparaît très différente d'une goutte liquide dans l'air ou d'une bulle d'air dans un liquide de par sa structure, constituée d'une très fine couche liquide séparant l'air à l'intérieur de la bulle de l'air à l'extérieur. De fait, la formation de bulles de savon s'accompagne de questions intéressantes implicitement reliées à l'hydrodynamique aux interfaces, pilotée notamment par les effets de tension superficielle. Nous pouvons par exemple nous demander à quelle vitesse minimale doit-on souffler pour générer des bulles ? Quels facteurs gouvernent la taille des bulles formées ? Quelle est l'influence de la distance qui sépare notre bouche du film ? Quels mécanismes induisent l'instabilité du film de savon ? Ces questions sont abordées dans le chapitre 9 où nous développons un dispositif expérimental original, inspiré d'études destinées à étudier des effets de turbulence bidimensionnelle dans les films de savon [122], permettant de s'affranchir du caractère instationnaire de l'expérience et des effets de volume liquide fini sur un cadre simple. Nous utilisons comme « bouche artificielle » une aiguille reliée à un système régulateur de pression.

Après avoir arpenté divers comportements d'une bulle sphérique et d'une bulle interfaciale, nous montrons dans le chapitre 10 qu'il est possible de transiter de la

première configuration à la seconde, généralement plus favorable d'un point de vue énergétique. Pour ce faire, nous venons déposer une bulle sphérique à la surface d'un solide ou à la surface libre d'un liquide, constituant ainsi un troisième mode de formation de bulle interfaciale. Le suivi de la dynamique d'étalement de la bulle sur la surface permet de remonter à des informations concernant les mécanismes clés mis en compétition. Nous montrons en particulier certaines analogies et différences de comportement avec la dynamique d'étalement bien connue d'une goutte sur un substrat solide en configuration de mouillage total.

Enfin, après avoir fabriqué une telle bulle interfaciale sur substrat solide, nous concluons cette partie en étudiant dans le chapitre 11 l'effet d'une sollicitation mécanique sur cette bulle, au moyen d'un pot vibrant.

## Chapitre 6

# Description de quelques surfaces minimales : influence des conditions aux limites et de symétrie

Du fait de la tension de surface, les films de savon adoptent la forme qui minimise leur énergie de surface, et donc leur surface. Partant de ce postulat mathématique, nous décrivons dans ce chapitre l'existence et la stabilité de quelques surfaces minimales simples. Après avoir brièvement rappelé les résultats classiques obtenus dans le cas d'une caténoïde symétrique formée entre deux anneaux circulaires de même rayon, nous discutons le rôle des conditions aux limites sur cette forme en utilisant deux anneaux de rayons différents. Nous étudions par la suite les conditions d'existence et de stabilité d'autres formes dérivées de la caténoïde : la demi-caténoïde symétrique, puis les diaboloides symétrique, asymétrique et rotatoire. Dans ces deux dernières configurations, les résultats expérimentaux font apparaître un comportement hystérique du film, signature de phénomènes de métastabilité que nous justifions à l'aide d'arguments physiques simples. Par analogie avec la théorie des transitions de phase, nous concluons ce chapitre en évoquant les analogies de comportement des surfaces minimales étudiées au voisinage de leur seuil d'existence.

## 1 Introduction

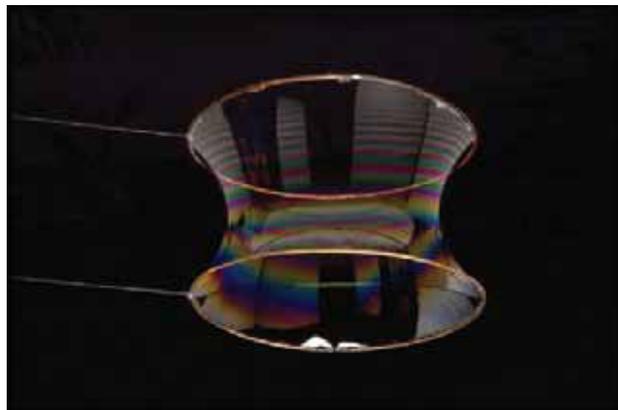


FIGURE 6.1: La caténoïde.

La notion de surface minimale apparaît au XVIII<sup>ème</sup> siècle. Le problème original, posé en 1744 par Leonhard Euler [123], s'énonce comme suit : parmi toutes les surfaces s'appuyant sur deux cercles coaxiaux, quelle est celle dont l'aire est la plus petite ? La résolution de ce problème mathématique, détaillée ci-après, donne naissance à la caténoïde, décrite par un cosinus hyperbolique (Fig. 6.1). L'étymologie latine de la caténoïde (*catena*, chaîne) souligne l'analogie avec le profil d'une chaîne pesante maintenue à ses deux extrémités<sup>1</sup>. En 1755, Joseph-Louis Lagrange formalise les premiers résultats sur les surfaces minimales en énonçant l'équation d'Euler-Lagrange, cette dernière symbolisant historiquement les prémices du calcul variationnel [124]. En changeant la géométrie du contour imposé, il est alors possible d'imaginer une multitude de surfaces minimales (Fig. 6.2) : en remarquant qu'un plan apparaît comme une surface minimale triviale, citons également l'hélicoïde, découverte par Meusnier en 1776, les surfaces de Scherk (1834), Enneper (1863), Costa (1982)...

De nos jours, ce thème de recherche soulève encore de nombreuses interrogations, en mathématiques notamment [125, 126] (surfaces minimales périodiques ou à cous, généralisation des surfaces minimales dans un hyper-espace...), mais aussi en physique des mousses [127, 128]. Ce domaine d'étude possède par ailleurs d'autres applications en cristallographie [129] ainsi qu'en architecture, où l'utilisation de surfaces minimales permet à la fois de minimiser la quantité de matériaux utilisés et de mieux gérer les contraintes physiques [130, 131, 132]. À ce titre, le stade olympique de Munich, conçu par l'architecte allemand Frei Otto en 1972, est considéré comme l'un des monuments sportifs les plus audacieux du XX<sup>ème</sup> siècle. Plus récemment, le *Water Cube* de Pékin, développé par l'agence néerlandaise Nox et inauguré en 2008, en est une illustration tout aussi spectaculaire (Fig. 6.3).

Ce concept d'optimisation est également au cœur du problème de Steiner, posé

---

1. Au grand dam du savant italien Galilée (1564-1642), qui penchait plutôt pour un profil parabolique environ un siècle auparavant.

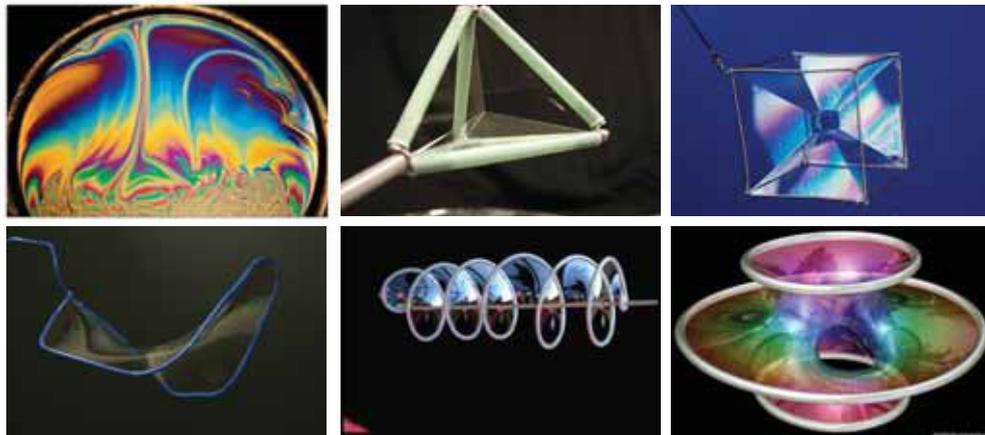


FIGURE 6.2: Quelques surfaces minimales.



FIGURE 6.3: À gauche, le stade olympique de Munich. À droite, le *Water Cube* de Pékin.

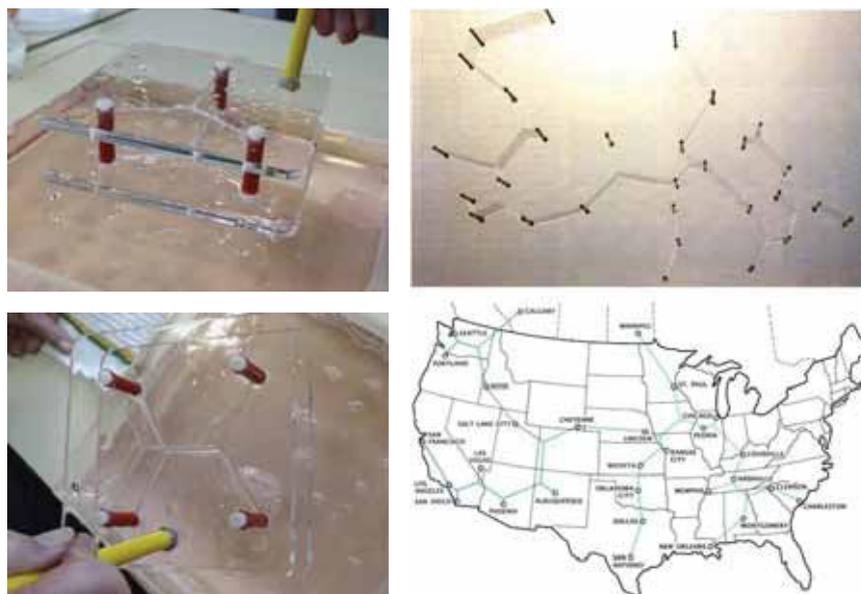


FIGURE 6.4: Illustration du problème de Steiner, pour un ensemble de 3, 4 et  $n$  points. Notons dans ce dernier cas la forte ressemblance entre le réseau expérimental constitué par le film de savon et la solution d'un algorithme numérique minimisant le chemin reliant les grandes villes d'Amérique du Nord.

comme tel : quel est le chemin le plus court reliant un ensemble de points donné ? Bien qu'il soit trivial que le chemin le plus court entre deux points soit la ligne droite, le problème est nettement plus compliqué à mesure que le nombre de points augmente [133] (Fig. 6.4). Et malgré son caractère unidimensionnel, cette question peut en fait se ramener à une minimisation de surface dont l'une des dimensions est fixée. D'un point de vue pratique, considérons par exemple le cas d'un service de maîtrise d'ouvrage autoroutier ou une entreprise de télécommunication souhaitant créer un réseau reliant un certain nombre de villes. La minimisation du coût d'un tel réseau, en l'occurrence la quantité de matériaux (bitume, câbles) qu'elle doit utiliser pour relier toutes ces villes entre elles, s'avère alors cruciale. Et pour cause, le problème de Steiner est parfois surnommé « problème des autoroutes » [7].

Les films de savon constituent un outil de choix pour étudier les surfaces minimales : en tentant de minimiser son énergie superficielle et ainsi rejoindre un puits d'énergie potentielle<sup>2</sup>, un film de savon tend à minimiser naturellement sa surface à l'équilibre, celui-ci matérialisant donc une surface minimale mathématique pour un contour donné. Par ailleurs, les expériences présentées dans ce chapitre sont relativement simples à mettre en œuvre, et permettent d'illustrer des notions assez générales en physique (minimisation d'énergie potentielle, métastabilité, transitions de phase...); les films de savon trouvent de fait très bien leur place dans un cursus éducationnel en physique [135]. Dans ce chapitre, nous étudions théoriquement et expérimentalement l'existence et la stabilité de quelques surfaces minimales à l'équi-

2. Ce minimum d'énergie potentielle peut tout aussi bien être global ou local [134] : ce point intéressant constitue l'une des idées fortes de ce chapitre.

libre présentant pour la plupart une symétrie de révolution<sup>3</sup>. Les uniques surfaces minimales élémentaires possédant cette symétrie étant la caténoïde et le plan, les figures étudiées sont naturellement constituées de portions de ces surfaces minimales élémentaires. En particulier, nous discutons en quoi un changement des conditions aux limites ou une brisure de symétrie affecte les propriétés des surfaces minimales considérées.

## 2 Dispositif expérimental

### 2.1 Matériel utilisé

La solution utilisée pour la création des films de savon est un mélange eau ultra-pure (MilliPore, 18 M $\Omega$ .cm.)/glycérol/produit vaisselle commercial (Fairy), dans des proportions volumiques respectives 80%/13%/7%<sup>4</sup>. Le glycérol permet de rendre la solution plus visqueuse et ainsi ralentir le drainage et l'évaporation, augmentant de fait la durée de vie du film. Le produit vaisselle permet de saturer la surface en tensioactifs, diminuer la tension superficielle de la solution et donc stabiliser le film. La tension de surface de la solution, mesurée par tensiométrie en goutte pendante, vaut  $\gamma = 25 \text{ mN.m}^{-1}$ .

Pour observer des surfaces minimales présentant une symétrie de révolution, les contours sont expérimentalement constitués d'anneaux circulaires de fil de fer torsadé, dont le rayon  $R$  est varié de quelques millimètres à quelques décimètres. Afin de s'affranchir d'éventuels effets de bord, l'épaisseur du cadre, 1 mm, est prise petite devant son rayon quel que soit l'anneau choisi.

### 2.2 Acquisition des données

L'acquisition des données s'effectue par caméra rapide, dont la gamme de fréquence d'acquisition s'étend de 50 à 2000 images.s<sup>-1</sup>, pour une résolution spatiale typique de  $512 \times 512$  pixels<sup>2</sup>.

### 2.3 Traitement des données

Les images et films sont analysés *a posteriori* par traitement d'image, en utilisant les logiciels de programmation ImageJ et Matlab.

## 3 La caténoïde

Après avoir rappelé les résultats historiques établis par Euler, nous caractérisons la stabilité d'une caténoïde symétrique (les deux anneaux sont de rayons identiques :  $R_1 = R_2 = R$ ), puis asymétrique ( $R_1 < R_2$ ). Enfin, nous présentons une variante

---

3. La diabololoïde rotatoire, dernière surface minimale étudiée dans ce chapitre, ne vérifie pas cette symétrie de révolution mais présente une symétrie plane.

4. Mis à part le choix du produit vaisselle, cette « recette » a déjà été expérimentée pour la fabrication de « mousse bambou », utilisée comme système modèle pour quantifier la dissipation d'énergie cinétique induite par l'impact d'un projectile [136].

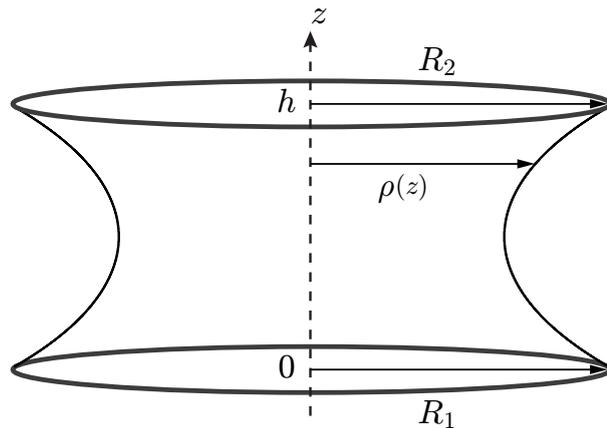


FIGURE 6.5: Représentation schématique et paramétrage de la surface du film.

expérimentale permettant d'obtenir une demi-caténoïde symétrique, et étudions également sa stabilité. Cette nouvelle configuration fait l'objet d'une étude dynamique plus approfondie dans le chapitre suivant.

### 3.1 La caténoïde symétrique

#### 3.1.1 Profil mathématique du film

Soient deux anneaux, de rayons  $R_1$  et  $R_2$ , disposés parallèlement selon le même axe de révolution noté  $(Oz)$  et séparés d'une distance  $h$  (Fig. 6.5). L'étude sera naturellement menée en coordonnées cylindriques  $(\rho, \theta, z)$ . Nous cherchons ici à paramétrer la surface<sup>5</sup>  $\Sigma$  du film de savon : du fait de l'invariance par rotation autour de  $(Oz)$ , celle-ci est entièrement décrite par le profil  $\rho(z)$ , indépendamment de l'angle  $\theta$ . Les conditions aux limites fixées par le contour imposent  $\rho(0) = R_1$ ,  $\rho(h) = R_2$ . L'énergie de surface  $E_\Sigma$  du film peut s'écrire :

$$E_\Sigma = 2\gamma\Sigma = 2\gamma 2\pi \int_\Sigma \rho(z) ds, \quad (6.1)$$

où le facteur 2 tient compte des deux faces du film,  $\gamma$  désignant la tension de surface liquide/air. L'élément infinitésimal d'abscisse curviligne  $ds$  peut se réécrire :

$$ds = \sqrt{d\rho^2 + dz^2} = \sqrt{1 + \rho'^2(z)} dz, \quad (6.2)$$

avec  $\rho'(z) = d\rho/dz$ . Soit finalement :

$$E_\Sigma \propto \int_0^h \rho(z) \sqrt{1 + \rho'^2(z)} dz. \quad (6.3)$$

Ainsi, l'énergie se met sous une forme fonctionnelle. En vertu du principe variationnel, rendre cette fonctionnelle minimale (ou plus généralement extrémale) impose au lagrangien associé  $\mathcal{L}(\rho, \rho') = \rho \sqrt{1 + \rho'^2}$  de satisfaire à l'équation d'Euler-Lagrange :

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \rho} = \frac{d}{dz} \left( \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \rho'} \right). \quad (6.4)$$

---

5. Dans ce chapitre,  $\Sigma$  désigne aussi bien la surface que son aire, par abus de langage.

Ce problème est ainsi fortement analogue au principe de Fermat<sup>6</sup> en optique géométrique (imposant un extremum du temps de parcours de la lumière), mais également au principe de moindre action en mécanique lagrangienne (imposant un extremum de l'intégrale d'action). Il est alors aisé de faire apparaître par transformée de Legendre une nouvelle fonction  $\mathcal{H} = \rho' \partial \mathcal{L} / \partial \rho' - \mathcal{L}$ , équivalente à l'hamiltonien en mécanique lagrangienne, vérifiant  $d\mathcal{H} = 0$ . En reprenant l'expression de  $\mathcal{L}$ , l'intégrale première de  $\mathcal{H}$  s'écrit en faisant intervenir une constante  $a$  :

$$\rho' \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \rho'} - \mathcal{L} = \frac{\rho \rho'^2}{\sqrt{1 + \rho'^2}} - \rho \sqrt{1 + \rho'^2} = -\frac{\rho}{\sqrt{1 + \rho'^2}} = -a, \quad (6.5)$$

où seul le cas  $a > 0$  est physiquement acceptable. Par séparation des variables, l'équation différentielle obtenue peut se mettre sous la forme :

$$\frac{d\rho}{\sqrt{(\rho/a)^2 - 1}} = dz. \quad (6.6)$$

La solution s'écrit finalement<sup>7</sup> :

$$\rho(z) = a \cosh \left( \frac{z}{a} + C \right), \quad (6.7)$$

où  $a$  et  $C$  sont les constantes d'intégration déterminées par les conditions aux limites :  $\rho(0) = R_1$ ,  $\rho(h) = R_2$ . Dans le cas symétrique,  $R_1 = R_2 = R$ , et la résolution donne finalement  $C = -h/2a$ , puis :

$$\rho(z) = a \cosh \left( \frac{z - h/2}{a} \right), \quad (6.8)$$

avec  $a$  solution de l'équation implicite :

$$a \cosh \left( \frac{h}{2a} \right) = R. \quad (6.9)$$

Conformément à l'intuition, la surface de la caténoïde est échanquée entre les deux anneaux, le rayon minimal étant par symétrie atteint en  $z = h/2$ . Ce rayon, nommé « rayon de gorge » dans la littérature, est ici égal à  $a$ , ceci donnant une signification concrète à cette constante. En se souvenant que les surfaces minimales ont la propriété mathématique de présenter une courbure moyenne  $\kappa$  nulle en tout point, ceci se vérifie ici : l'amincissement en  $z = h/2$  provoque une augmentation de courbure dans le plan  $(O\rho, O\theta)$ , mais également par compensation une augmentation opposée dans le plan  $(O\rho, Oz)$ . Physiquement, cette courbure nulle peut s'interpréter différemment en exprimant le saut de pression  $\Delta p$  de part et d'autre de la surface *via* l'équation de Young-Laplace [99],  $\Delta p = 2\gamma\kappa$ , où le facteur 2 tient de nouveau compte des deux faces du film. Comme la surface est ouverte, la pression de l'air est identique partout et  $\Delta p=0$  implique en effet  $\kappa=0$ .

---

6. Pierre de Fermat, magistrat et mathématicien français du XVII<sup>ème</sup> siècle, énonce son principe de la façon suivante : *La nature agit toujours par les voies les plus courtes et les plus simples.*

7. Dans ce chapitre, nous choisissons d'adopter la convention anglaise d'écriture des fonctions trigonométriques.

### 3.1.2 Existence et stabilité

En partant d'une caténoïde expérimentale donnée, l'écartement des anneaux va provoquer un évasement de plus en plus marqué et donc une diminution du rayon de gorge, jusqu'à l'effondrement du caténoïde. L'équation implicite 6.9 permet de comprendre ce fait. Réexprimons-la sous forme adimensionnée :

$$\cosh\left(\frac{\Delta X}{2}\right) = X, \quad (6.10)$$

avec  $X=R/a$  et  $\Delta=h/R$ . Le problème se ramène donc à étudier le nombre d'intersections de deux courbes, un cosinus hyperbolique et une droite, en fonction du paramètre  $\Delta$  quantifiant la distance séparant les deux anneaux. La figure 6.6 représente ces deux courbes en fonction de  $X$ , pour différentes valeurs de  $\Delta$ .

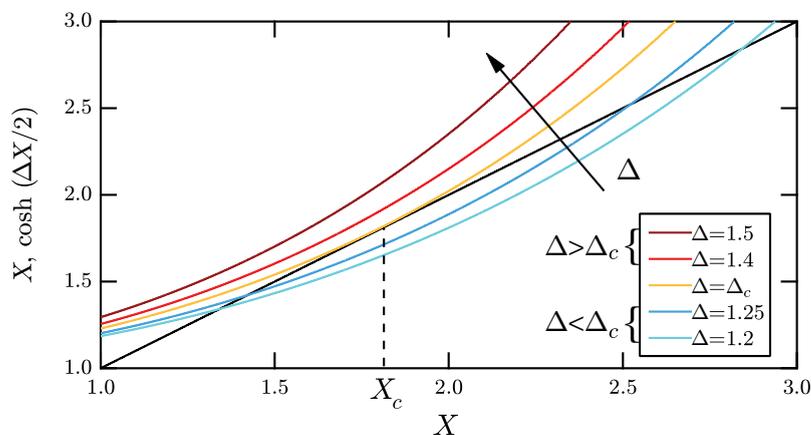


FIGURE 6.6: Résolution graphique de l'équation implicite (Éq. 6.10), pour  $\Delta$  allant de 1.2 à 1.5.

- Pour  $\Delta < \Delta_c \simeq 1.33$ , c'est-à-dire pour des anneaux pas trop éloignés, il apparaît deux points d'intersection, en  $X=X_1$  et  $X=X_2$ , avec  $X_2 > X_1$ . Il existe donc deux caténoïdes mathématiques solutions au problème, correspondant toutes deux à un extremum de surface et vérifiant les conditions aux limites. Pour pouvoir discriminer quelle caténoïde est effectivement observée expérimentalement, une analyse énergétique, effectuée ci-après, est nécessaire. Mais nous pouvons déjà à ce stade deviner que le point d'intersection associé à la caténoïde « physique » est en  $X = X_1$  : en effet, une augmentation de  $\Delta$  provoque expérimentalement une diminution de  $a$ , et donc une augmentation de  $X$ . Ceci est vérifié pour  $X_1$ , et non pour  $X_2$ .
- Pour  $\Delta = \Delta_c$ , il n'existe plus qu'un point d'intersection en  $X = X_c$ , correspondant à une caténoïde critique. En ce point, le rayon de gorge vaut  $a_c \simeq 0.55R$ , la distance critique entre les cadres s'écrivant immédiatement  $h_c \simeq 1.33R$ . Ainsi, alors que la première intuition prête à croire qu'une caténoïde reste stable jusqu'à ce que le « cou » soit infiniment fin, il n'en est rien, du fait de la présence de ces seuils finis pour un rayon  $R$  fini.
- Pour  $\Delta > \Delta_c$ , ce point critique est dépassé, il n'existe donc plus de solution, la caténoïde n'a plus de raison d'être et s'effondre. Expérimentalement, cet

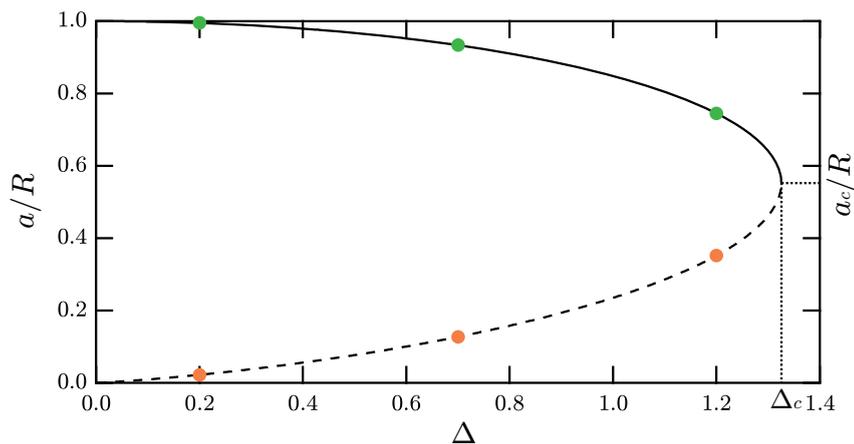


FIGURE 6.7: Évolution du rayon de gorge en fonction de la distance entre les anneaux. En trait plein, la caténoïde associée au point d'intersection en  $X = X_1$ . En pointillés, la caténoïde associée au point d'intersection en  $X = X_2$ . Les points verts et orange indiquent les solutions correspondant aux caténoïdes montrées à la figure 6.8.

effondrement s'accompagne de la formation de deux films plans portés par les deux anneaux.

Le rayon de gorge de la caténoïde et la distance séparant les deux anneaux sont donc étroitement liés : la figure 6.7 représente  $a/R = 1/X_{1,2}$  en fonction de  $\Delta = h/R$  pour les deux caténoïdes solutions du problème variationnel. Celle associée au point d'intersection  $X = X_1$  présente un cou large, alors que celle associée au point d'intersection  $X = X_2$  présente un cou étroit (Fig. 6.8). La présence de deux branches, stable et instable, rappelle un diagramme de bifurcation en théorie des instabilités. Ce type de comportement est appréhendé dans de nombreux domaines de la physique, de la mécanique du solide à l'hydrodynamique, et plus récemment en biophysique dans le processus de fission d'une vésicule à deux domaines [137].

Les seuils d'existence  $(a_c/R_1, h_c/R_1)$  peuvent se retrouver par l'analyse en posant une fonction  $f$  définie par :

$$f(X) = \cosh\left(\frac{\Delta X}{2}\right) - X. \quad (6.11)$$

La recherche du point critique d'existence  $X = X_c$  est déterminée en imposant simultanément  $f(X_c) = 0$  (nous voulons au moins une solution) et  $\partial_X f(X_c) = 0$  (nous voulons au plus une solution). Il vient alors immédiatement l'équation implicite suivante :

$$\coth\left(\frac{\Delta_c X_c}{2}\right) = \frac{\Delta_c X_c}{2}. \quad (6.12)$$

Cette équation comporte une unique solution positive : nous obtenons numériquement  $\Delta_c X_c/2 \simeq 1.20$ . En exploitant de nouveau l'annulation de  $f$ , nous retrouvons  $a_c \simeq R/\cosh(1.20) \simeq 0.55R$ . Enfin, en exploitant l'annulation de  $\partial_X f$ , nous retrouvons  $h_c \simeq 2R/\sinh(1.20) \simeq 1.33R$ .

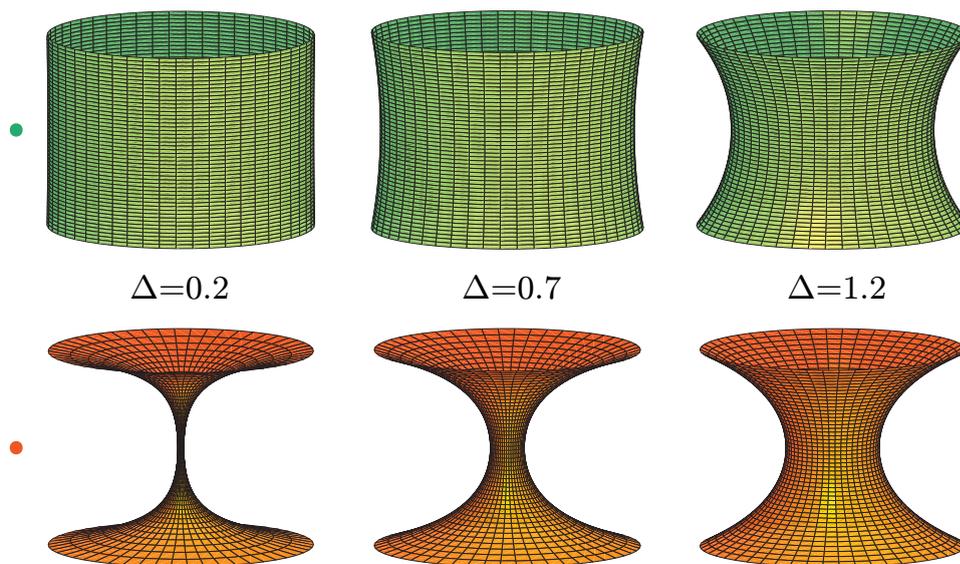


FIGURE 6.8: Représentations 3D de caténoïdes symétriques typiques, obtenues pour  $\Delta = 0.2, 0.7, 1.2$  (valeurs indexées sur la figure 6.7). En vert, les caténoïdes associées au point d'intersection en  $X = X_1$ . En rouge, les caténoïdes associées au point d'intersection en  $X = X_2$ . L'échelle verticale est modifiée pour la clarté de la figure.

### 3.1.3 Analyse énergétique

Connaissant dorénavant la forme de  $\rho(z)$ , nous pouvons revenir à l'expression de l'énergie de surface  $E_\Sigma$ .

$$E_\Sigma = 2\gamma 2\pi \int_0^h \rho(z) \sqrt{1 + \rho'(z)^2} dz, \quad (6.13)$$

$$E_\Sigma = 2\gamma 2\pi \int_0^h a \cosh^2 \left( \frac{z - h/2}{a} \right) dz, \quad (6.14)$$

$$E_\Sigma = 2\gamma\pi a \int_0^h \left( 1 + \cosh \left( 2 \frac{z - h/2}{a} \right) \right) dz. \quad (6.15)$$

Par le changement de variable  $u = (z - h/2)/a$ , il s'ensuit :

$$E_\Sigma = 2\gamma\pi a^2 \left( \frac{h}{a} + \sinh \frac{h}{a} \right). \quad (6.16)$$

En utilisant la relation  $h/a = 2 \operatorname{arccosh}(R/a)$  et en définissant une énergie adimensionnée  $\mathcal{E} = E_\Sigma / (2\gamma\pi R^2)$ , il vient finalement :

$$\mathcal{E} = \frac{2 \operatorname{arccosh} X + \sinh(2 \operatorname{arccosh} X)}{X^2}, \quad (6.17)$$

où  $X$  prend les valeurs correspondant aux points d'intersection discutés à la partie précédente. Puisque ces points d'intersection se déplacent lorsque  $\Delta$  varie,  $X$  dépend de  $\Delta$ . Ainsi, la figure. 6.9 illustre l'énergie des deux caténoïdes mathématiques possibles en fonction de  $\Delta$ .

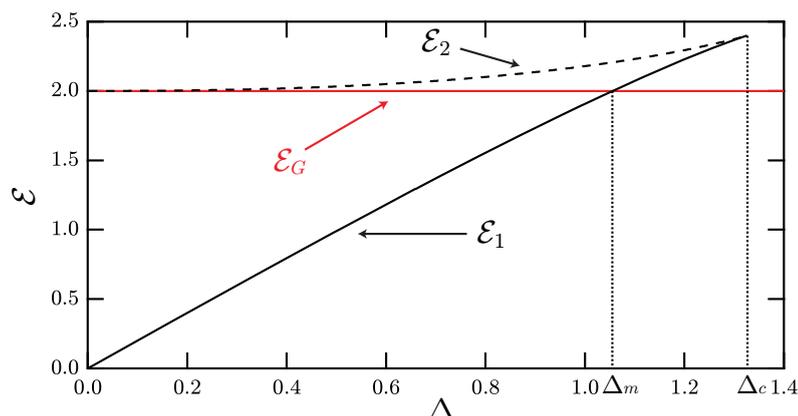


FIGURE 6.9: Évolution de l'énergie en fonction de la distance entre les anneaux. En trait plein, la caténoïde associée au point d'intersection en  $X = X_1$ . En pointillés, la caténoïde associée au point d'intersection en  $X = X_2$ . En rouge, la surface de Goldschmidt composée de deux films plans portés par les deux anneaux.

Nous remarquons que les deux caténoïdes, associées aux points d'intersections en  $X=X_1$  et  $X=X_2$ , ont des énergies différentes, notées respectivement  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$  avec  $\mathcal{E}_1 < \mathcal{E}_2$ . De plus, il convient de noter qu'à la limite  $\Delta \rightarrow 0$  (anneaux accolés),  $\mathcal{E}_1 \sim 2\Delta$ , alors que  $\mathcal{E}_2 \sim 2$ . Ainsi, toujours dans cette limite, la caténoïde d'énergie minimale s'apparente à un cylindre de rayon  $R$  et de hauteur  $h$ , alors que la caténoïde d'énergie maximale s'apparente à deux disques de rayon  $R$ . Nous en déduisons que la caténoïde d'énergie minimale, dite « stable », est finalement la moins échanquée des deux, ce fait étant vérifié expérimentalement : en partant de  $h = 0$ , la caténoïde initiale ressemble fortement à un cylindre, qui se creuse ensuite de plus en plus en écartant les anneaux. L'autre caténoïde, dite « instable », suit le chemin inverse jusqu'à ce que le point critique  $(a_c/R, h_c/R)$  soit atteint : les deux caténoïdes fusionnent alors en une seule et même caténoïde avant que cette dernière ne s'effondre.

Un point intéressant mérite d'être évoqué ici : en se souvenant qu'un plan est également une surface minimale, le film de savon peut éventuellement transiter de la caténoïde stable vers la surface constituée des deux anneaux (portant le nom de « surface de Goldschmidt »). L'énergie de surface de cette configuration est constante et s'écrit simplement en valeur adimensionnée  $\mathcal{E}_G = 2$ . Nous constatons sur la figure 6.9 que cette énergie, supérieure à  $\mathcal{E}_1$  pour des anneaux pas trop éloignés, devient ensuite inférieure à partir de  $h \simeq 1.06R$ . La question est ici de savoir si le système change spontanément d'état à  $\Delta = \Delta_m \simeq 1.06$  pour rejoindre l'état le plus favorable énergétiquement, soit la surface de Goldschmidt, ou si une éventuelle barrière d'énergie, source de métastabilité, l'en empêche. Par analogie avec les transitions de phase, nous pouvons imaginer une multitude de chemins pour passer d'une configuration à l'autre. Une façon de le faire continûment est de libérer une condition aux limites tout en gardant une forme hyperbolique [138], en écrivant maintenant :

$$\tilde{\rho}(z) = \frac{R}{\cosh\left(\frac{h}{2a}\right)} \cosh\left(\frac{z - h/2}{a}\right). \quad (6.18)$$

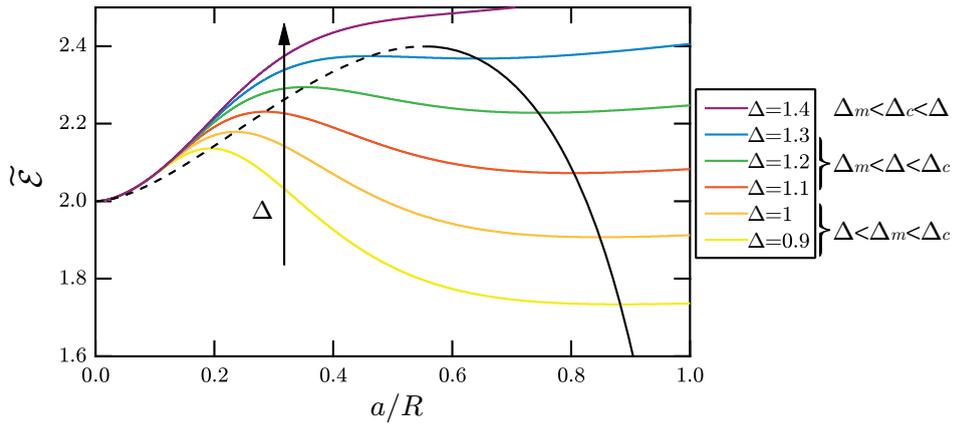


FIGURE 6.10: Paysages d'énergie potentielle  $\tilde{\mathcal{E}}$ , pour  $\Delta$  allant de 0.9 à 1.4. Les courbes noires représentent de nouveau l'énergie des deux caténoïdes solutions du problème variationnel :  $\mathcal{E}_1$  en trait plein,  $\mathcal{E}_2$  en pointillés.

Bien que cette forme ait le bon goût de respecter  $\tilde{\rho}(0) = \tilde{\rho}(h) = R$ ,  $a$  est maintenant libre de ne plus satisfaire à l'équation implicite discutée précédemment (Éq. 6.10). En recalculant l'énergie avec cette forme extrapolée, il vient après quelques calculs :

$$\tilde{E}_\Sigma = 2\gamma 2\pi R^2 \left[ \sqrt{\tanh^2 \frac{h}{2a} + \left(\frac{a}{R}\right)^2} \tanh \frac{h}{2a} + \left(\frac{a}{R}\right)^2 \operatorname{arcsinh} \left( \frac{R}{a} \tanh \frac{h}{2a} \right) \right], \quad (6.19)$$

soit :

$$\tilde{\mathcal{E}} = 2 \left[ \sqrt{\tanh^2 \frac{\Delta X}{2} + \frac{1}{X^2}} \tanh \frac{\Delta X}{2} + \frac{1}{X^2} \operatorname{arcsinh} \left( X \tanh \frac{\Delta X}{2} \right) \right]. \quad (6.20)$$

La figure 6.10 représente les paysages énergétiques obtenus en fonction du rayon de gorge adimensionné  $a/R = 1/X$ , pour différentes valeurs de  $\Delta$ . Les trois surfaces minimales, décrites par un extremum d'énergie, se retrouvent : la surface de Goldschmidt d'énergie  $\mathcal{E}_G = 2$  (minimum) en  $a/R = 0$ , et les deux caténoïdes, d'énergies respectives  $\mathcal{E}_1$  (minimum) et  $\mathcal{E}_2 > \mathcal{E}_1$  (maximum) en  $a/R = 1/X_1$  et  $1/X_2 < 1/X_1$ . Il est alors remarquable d'apercevoir, pour  $\Delta_m < \Delta < \Delta_c$ , une barrière énergétique à franchir pour passer de la caténoïde stable à la surface de Goldschmidt [139]. Ainsi, dans cette configuration simple, le minimum d'énergie potentielle dans lequel se trouve le film de savon, initialement global pour des anneaux pas trop éloignés, n'est plus que local pour  $1.06R < h < 1.33R$ . À la manière d'un retard à la transition de phase [134], la surfusion d'un métal par exemple, le système se retrouve piégé dans ce minimum local métastable puisqu'une certaine barrière d'énergie sépare les deux puits, d'énergies  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_G < \mathcal{E}_1$ .

### 3.1.4 Vérification expérimentale

Afin de vérifier ces résultats classiques, une caténoïde symétrique est formée expérimentalement en immergeant deux anneaux identiques et accolés dans la solution savonneuse. Les deux anneaux sont fixés sur les mors d'un pied à coulisse

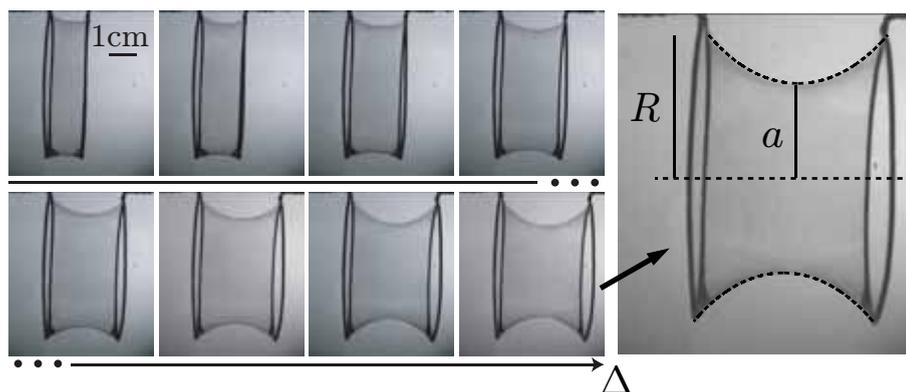


FIGURE 6.11: À gauche : évolution expérimentale d'une caténoïde symétrique pour un cadre de rayon  $R = 2.6$  cm, en fonction de la distance adimensionnée  $\Delta$  entre les deux cadres. À droite : image définissant  $R$  et  $a$ .

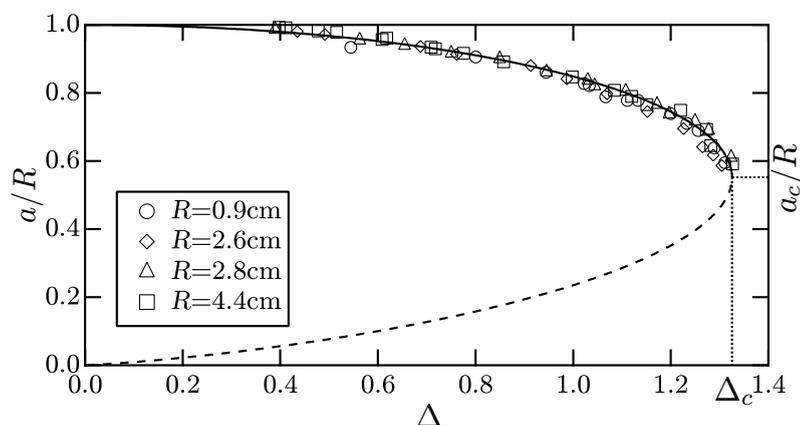


FIGURE 6.12: Rayon de gorge adimensionné d'une caténoïde symétrique en fonction de  $\Delta$ , pour différents rayons. Les quatre séries de mesures se superposent sur la courbe théorique associée à la caténoïde d'énergie  $\mathcal{E}_1$  (cou large).

digital. L'un des anneaux étant maintenu fixe, l'autre est déplacé pas à pas le long de l'axe de révolution ( $Oz$ ), augmentant ainsi progressivement la distance  $h$  entre les cadres, jusqu'à ce que le film de savon s'effondre sur les deux anneaux. La figure 6.11 illustre une série typique d'images prises lorsque le film de savon est à l'équilibre, pour un éloignement croissant des anneaux. Tout d'abord, le traitement d'image effectué montre un excellent accord entre le profil expérimental  $\rho(z)$  du film et la forme attendue (Éq. 6.8). La figure 6.12 suit l'évolution, en quantités adimensionnées, du rayon de gorge  $a/R$  en fonction de l'éloignement entre les deux anneaux  $\Delta = h/R$ , pour différentes valeurs de  $R$ . Ici encore, la comparaison avec la théorie est très satisfaisante. En particulier, les seuils de stabilité ( $a_c/R, h_c/R$ ) sont retrouvés expérimentalement. Enfin, la présence de points expérimentaux dans la gamme  $\Delta_m < \Delta < \Delta_c$  est en conformité avec les paysages énergétiques représentés plus haut, et rappelle cette idée importante, et d'une certaine façon, surprenante : si les conditions aux limites autorisent parfois l'existence de plusieurs surfaces mi-

nimales, le système n'adopte pas toujours celle dont l'énergie est minimale. Ainsi, cette compétition de surfaces minimales laisse entrevoir d'éventuels phénomènes de métastabilité dans ces systèmes. Ces derniers sont d'autant plus marqués dans une configuration légèrement différente faisant l'objet de la dernière partie de ce chapitre.

## 3.2 La caténoïde asymétrique

### 3.2.1 Existence et stabilité

Tout en gardant l'invariance par rotation autour de  $(Oz)$ , introduisons une brisure de symétrie entre les deux anneaux, de rayons  $R_1$  et  $R_2 = \alpha R_1$  avec  $\alpha > 1$ . Contrairement au cas symétrique où la présence d'une seule taille caractéristique  $R$  imposait une invariance d'échelle du système ( $h_c \propto R$ ,  $a_c \propto R$ ), nous pouvons pressentir que la prise en compte d'un nouveau paramètre  $\alpha$  rende le problème plus riche, et le traitement mathématique plus complexe. Les conditions aux limites s'écrivent ici  $\rho(0) = R_1$ ,  $\rho(h) = R_2$ . En gardant la forme de  $\rho(z)$  établie précédemment (Éq. 6.7), ces dernières se réécrivent donc :

$$\rho(0) = R_1 = a \cosh C, \quad (6.21)$$

$$\rho(h) = R_2 = a \cosh \left( \frac{h}{a} + C \right). \quad (6.22)$$

La simplification de ce système s'effectue en faisant disparaître la constante  $C$ . À l'aide des identités trigonométriques, la condition en  $z = h$  devient :

$$\frac{R_2}{a} = \cosh C \cosh \frac{h}{a} \pm \sqrt{\cosh^2 C - 1} \sinh \frac{h}{a}. \quad (6.23)$$

Puis, à l'aide de la condition en  $z = 0$  :

$$\frac{R_2 R_1}{R_1 a} = \frac{R_1}{a} \cosh \left( \frac{h}{R_1} \frac{R_1}{a} \right) \pm \sqrt{\left( \frac{R_1}{a} \right)^2 - 1} \sinh \left( \frac{h}{R_1} \frac{R_1}{a} \right), \quad (6.24)$$

soit, avec  $X = R_1/a$  et  $\Delta = h/R_1$  :

$$\alpha X = X \cosh(\Delta X) \pm \sqrt{X^2 - 1} \sinh(\Delta X). \quad (6.25)$$

L'ambiguïté de signe est levée en passant cette relation au carré, après quelques manipulations :

$$X^2(\cosh(\Delta X) - \alpha)^2 = (X^2 - 1) \sinh^2(\Delta X). \quad (6.26)$$

Le développement et la simplification de ces deux termes conduisent finalement au résultat suivant :

$$\sinh^2(\Delta X) = X^2(2\alpha \cosh(\Delta X) - (1 + \alpha^2)). \quad (6.27)$$

Cette équation implicite constitue en fait une généralisation de l'équation implicite obtenue dans le cas symétrique  $\alpha = 1$  (Éq. 6.10). Sa résolution graphique est analogue,  $\alpha$  jouant ici le rôle de paramètre : tant que  $\Delta$  n'est pas trop grand, il existe

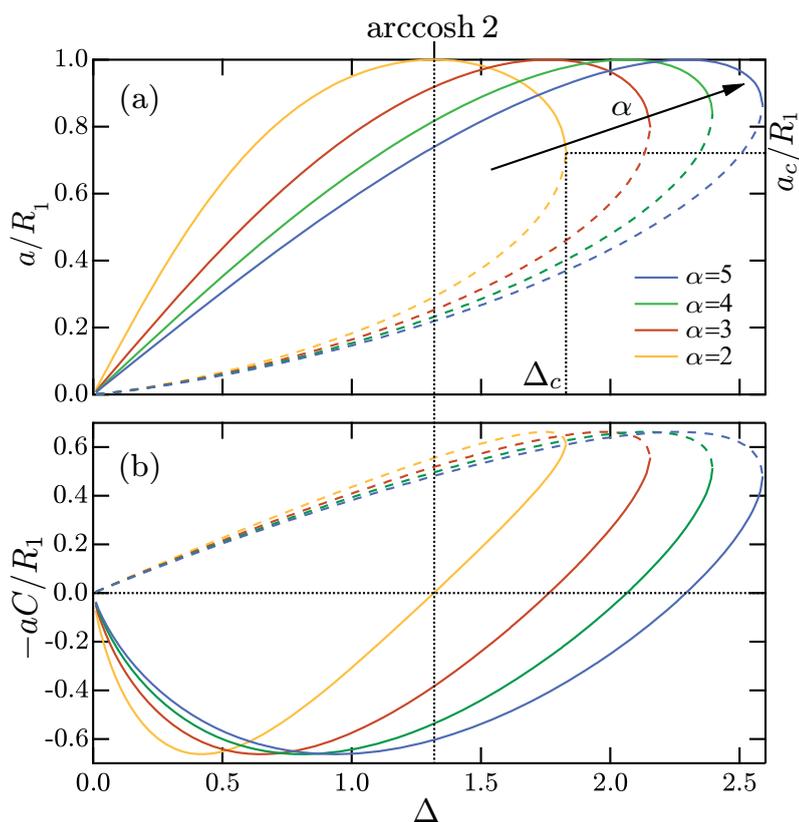


FIGURE 6.13: Évolution de  $a/R_1$  (a) et  $-aC/R_1$  (b) en fonction de  $\Delta = h/R_1$ , pour différents rapports d'aspect entre les anneaux :  $\alpha = 2, 3, 4, 5$ . En trait plein, les caténoïdes stables correspondent à un minimum d'énergie. En pointillés, les caténoïdes instables correspondent à un maximum d'énergie. Le maximum des diverses branches stables a pour coordonnées  $(\operatorname{arccosh} \alpha, 1)$ .

toujours deux caténoïdes d'énergies différentes solutions au problème, jusqu'à un certain point critique. En remarquant que ce point critique  $(a_c/R_1, h_c/R_1)$  se déplace avec l'asymétrie du système (Fig. 6.13 (a)), la forme des courbes en « pétales » fait de plus apparaître une différence importante par rapport au cas symétrique  $\alpha = 1$  (Fig. 6.7) : dans la limite des anneaux accolés,  $a$  tend vers 0 pour la caténoïde stable. Concernant cette dernière, qui est celle effectivement observée expérimentalement, ce fait s'accompagne également d'un changement de signe de la constante  $C$  : alors que dans le cas symétrique,  $C = -h/2a$  est automatiquement négative, elle est, dans le cas asymétrique, positive lorsque  $a$  croît, puis négative lorsque  $a$  décroît. Ceci implique que la position normalisée du cou,  $z = -aC/R_1$  (obtenue directement par annulation de l'argument dans le cosinus hyperbolique), se situe tout d'abord en dehors des anneaux, du côté du petit anneau, puis revient entre les deux anneaux (Fig. 6.13 (b)). Par conséquent, le rayon de gorge n'est plus défini expérimentalement si  $\Delta$  est trop petit. La transition se produit lors de l'inversion de courbure de la caténoïde au niveau du petit cadre : cette dernière y est tournée vers l'extérieur lorsque  $a$  croît, puis tournée vers l'intérieur lorsque  $a$  décroît. Il est alors facile de prédire à quelle distance  $h$  entre les anneaux elle se produit, en réécrivant les conditions en limites en ce point particulier :

$$R_1 = R_1 \cosh C, \quad (6.28)$$

$$R_2 = R_1 \cosh \left( \frac{h}{R_1} + C \right). \quad (6.29)$$

Il vient immédiatement  $C = 0$ , et donc :

$$\frac{h}{R_1} = \Delta = \operatorname{arccosh} \alpha. \quad (6.30)$$

Nous vérifions par ailleurs que ce ratio caractéristique est nul pour une caténoïde symétrique, et croît avec  $\alpha$  comme la figure 6.13 en atteste.

Les seuils d'existence  $(a_c/R_1, h_c/R_1)$  sont, d'après le graphe précédent, des fonctions croissantes de  $\alpha$ , et peuvent dans un premier temps s'approximer de façon naïve : en prenant l'exemple de la hauteur critique  $h_c$ , il est raisonnable d'imaginer que celle-ci est comprise entre les deux cas extrêmes suivants :  $h_c = 1.33R_1$  (caténoïde symétrique de rayon  $R_1$ ) et  $h_c = 1.33R_2$  (caténoïde symétrique de rayon  $R_2$ ), soit  $1.33 < h_c/R_1 < 1.33\alpha$ . À mesure que  $\alpha$  augmente, cet intervalle d'encadrement s'élargit, et nécessite donc d'effectuer une démarche plus précise. Ces seuils s'obtiennent donc de la même façon que précédemment, en posant une nouvelle fonction  $f$  telle que :

$$f(X) = \sinh^2(\Delta X) - X^2(2\alpha \cosh(\Delta X) - (1 + \alpha^2)). \quad (6.31)$$

Sa dérivée  $\partial_X f$  s'exprime comme :

$$\partial_X f(X) = 2(A - B), \quad (6.32)$$

avec :

$$A = \Delta \sinh(\Delta X) \cosh(\Delta X), \quad (6.33)$$

$$B = X(\alpha(2 \cosh(\Delta X) + \Delta X \sinh(\Delta X)) - (1 + \alpha^2)). \quad (6.34)$$

La recherche du nouveau point critique d'existence  $X = X_c$  est déterminée en imposant simultanément  $f(X_c) = 0$  et  $\partial_X f(X_c) = 0$ . En manipulant ces conditions,  $\Delta_c X_c$  vérifie maintenant une équation implicite dépendant de  $\alpha$  :

$$\tanh(\Delta_c X_c) = \frac{\Delta_c X_c (2\alpha \cosh(\Delta_c X_c) - (1 + \alpha^2))}{\alpha(2 \cosh(\Delta_c X_c) + \Delta_c X_c \sinh(\Delta_c X_c)) - (1 + \alpha^2)}. \quad (6.35)$$

La résolution numérique de cette équation permet de remonter à  $a_c/R_1=1/X_c$  en exploitant à nouveau l'annulation de  $f$ . Enfin,  $h_c/R_1 = \Delta_c$  est déduit de la connaissance simultanée de  $\Delta_c X_c$  et  $X_c$ . La figure 6.14 illustre ces deux seuils adimensionnés en fonction de l'asymétrie  $\alpha$  du système. Remarquons que plus le rapport d'aspect est fort, plus le rayon de gorge critique se rapproche du rayon du petit anneau par valeurs inférieures (il ne peut de toute façon jamais y être supérieur, selon l'équation 6.21). De fait, plus le rapport d'aspect est fort, plus la hauteur critique se rapproche du seuil d'inversion de courbure en  $R_1$  discuté auparavant (Éq. 6.30), par valeurs supérieures. Par ailleurs, les courbes numériques obtenues sont en accord avec les valeurs discrètes de Lindelöf, reportées par Bouasse [116] et déterminées par une méthode géométrique : la limite d'existence est atteinte lorsque les tangentes du profil  $\rho(z)$  au niveau des deux anneaux se coupent en un point de l'axe de révolution ( $Oz$ ) [140].

### 3.2.2 Analyse énergétique

Ici encore, la détermination des nouvelles constantes d'intégration  $a$  et  $C$ , pour  $\Delta$  et  $\alpha$  donnés, permet de calculer l'énergie potentielle<sup>8</sup> de chacune des surfaces minimales en présence : les deux caténoïdes et la surface de Goldschmidt. À titre d'exemple, la figure 6.15 représente ces énergies pour  $\alpha = 2$ . Nous observons qu'à la limite des anneaux accolés,  $\mathcal{E}_1 \sim 3$ , alors que  $\mathcal{E}_2 \sim 5 = \mathcal{E}_G$ . La caténoïde instable, très échanquée, s'apparente de nouveau à la surface de Goldschmidt composée des deux anneaux, soit  $\mathcal{E}_2 \sim \mathcal{E}_G = \alpha^2 + 1 = 5$ . Du fait de l'asymétrie, la caténoïde stable ne peut plus s'apparenter à un cylindre, son énergie ne tend donc plus vers 0. Sa surface asymptotique correspond maintenant à une couronne comprise entre les rayons  $R_1$  et  $R_2$ , soit  $\mathcal{E}_1 \sim \alpha^2 - 1 = 3$ . Ce résultat dénote une nouvelle différence importante avec le cas symétrique. La variation de ces énergies en fonction de  $\Delta$  reste cependant semblable au cas symétrique, avec la présence du seuil d'existence  $\Delta_c$  pour lequel les énergies des deux caténoïdes se rejoignent, et un seuil de métastabilité  $\Delta_m$  à partir duquel la surface de Goldschmidt devient plus favorable énergétiquement que la caténoïde stable. Une discussion équivalente peut être menée concernant la barrière d'énergie séparant ces deux états, en choisissant un « chemin réactionnel » analogue.

### 3.2.3 Vérification expérimentale

Une fois avoir formé une caténoïde asymétrique, nous mesurons, en fonction de la distance  $h$  entre les cadres, le rayon minimal adopté par le film à l'équilibre entre les deux anneaux, soit le rayon de gorge (Fig. 6.16) ; chaque série expérimentale est

---

<sup>8</sup>. L'énergie est ici adimensionnée par  $2\gamma\pi R_1^2$ .

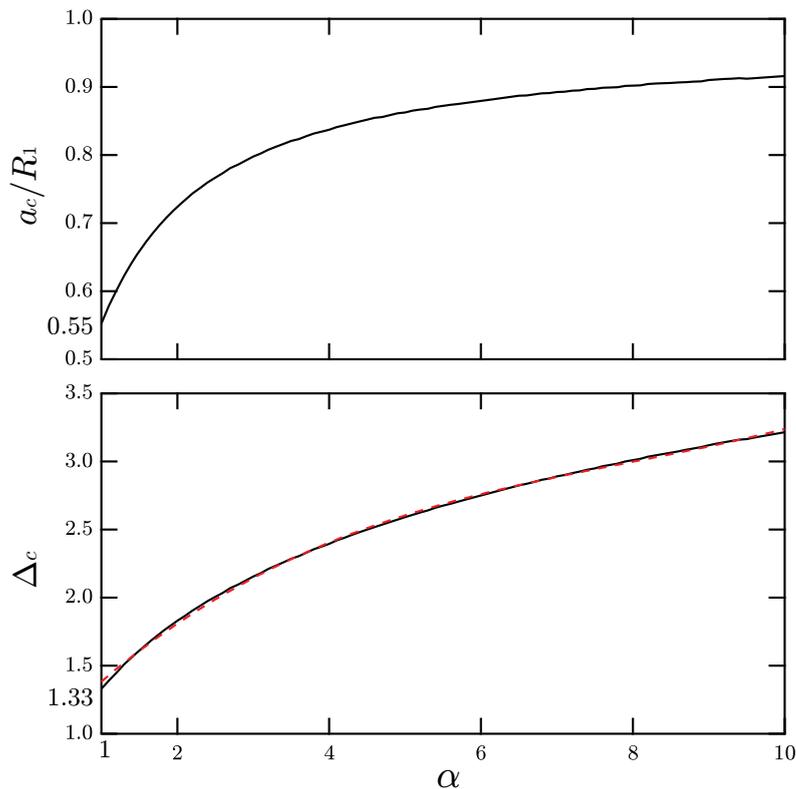


FIGURE 6.14: Évolution des seuils d'existence d'une caténoïde asymétrique en fonction de  $\alpha = R_2/R_1$ . La courbe rouge en pointillés est un ajustement du seuil  $\Delta_c = f(\alpha)$  par un polynôme de degré 3 :  $\Delta_c \simeq 0.85 + 0.59\alpha - 0.06\alpha^2 + 0.0025\alpha^3$ .

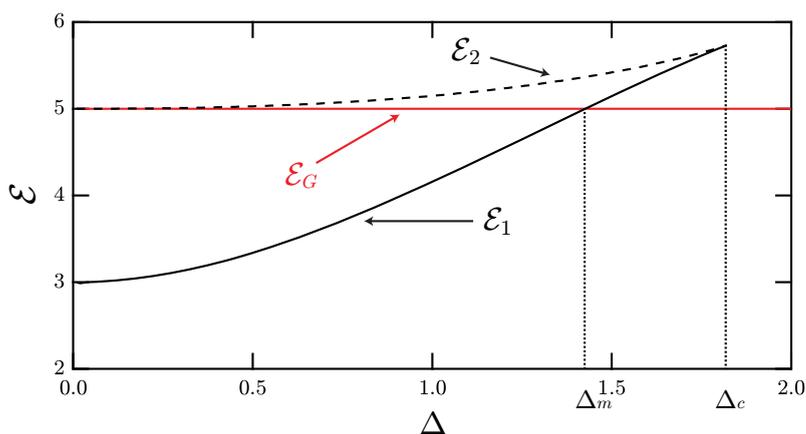


FIGURE 6.15: Évolution de l'énergie en fonction de la distance entre les anneaux, pour  $\alpha = 2$ . En trait plein, la caténoïde stable. En pointillés, la caténoïde instable. En rouge, la surface de Goldschmidt composée de deux films plans portés par les deux anneaux.

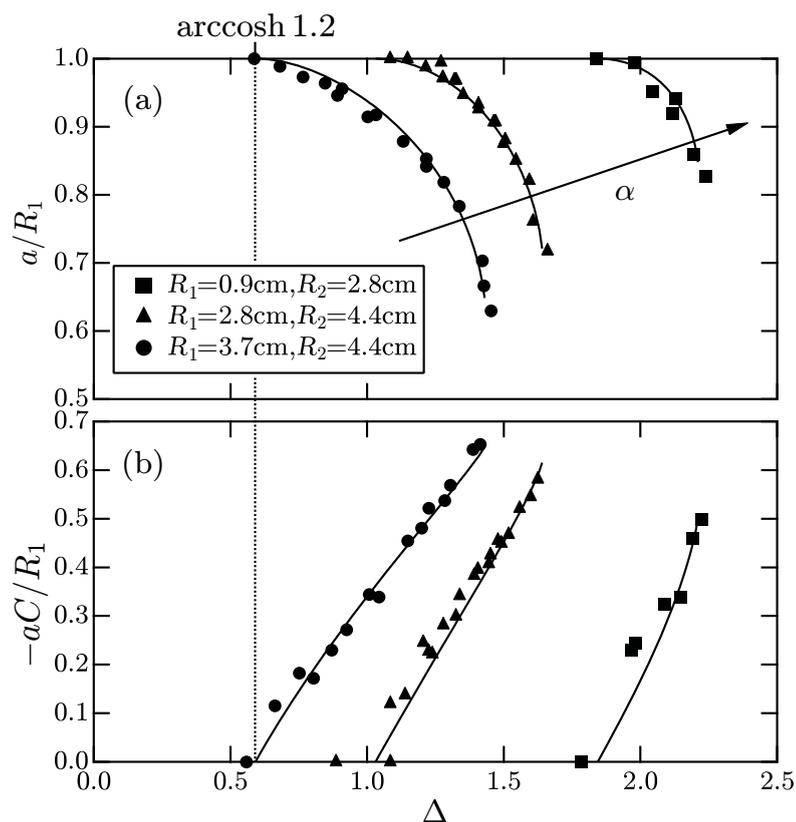


FIGURE 6.16: Rayon de gorge (a) et position du rayon de gorge (b) d'une caténoïde asymétrique, adimensionnés par  $R_1$ , en fonction de  $\Delta$ , pour différents rapports d'aspect :  $\alpha=1.2$  (ronds), 1.6 (triangles), 3.1 (carrés). Les ajustements représentés font apparaître la grandeur  $a/R_1$  issue de la branche stable pour  $\Delta > \text{arccosh } \alpha$ , c'est-à-dire après l'inversion de courbure.

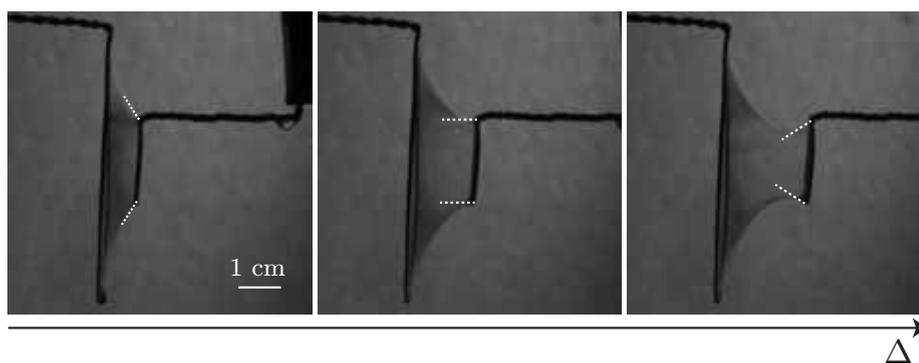


FIGURE 6.17: Mise en évidence expérimentale de l'inversion de courbure au niveau du petit anneau, pour  $\alpha = 3.1$ . Celle-ci s'opère pour  $\Delta = \text{arccosh } \alpha$ .

effectuée à une asymétrie donnée. Les résultats obtenus sont en accord avec les prédictions théoriques : en particulier, l'inversion de courbure est expérimentalement nette (Fig. 6.17). Les légers écarts peuvent provenir d'incertitudes expérimentales (résolution spatiale ; circularité, concentricité et orientation mutuelle des cadres),

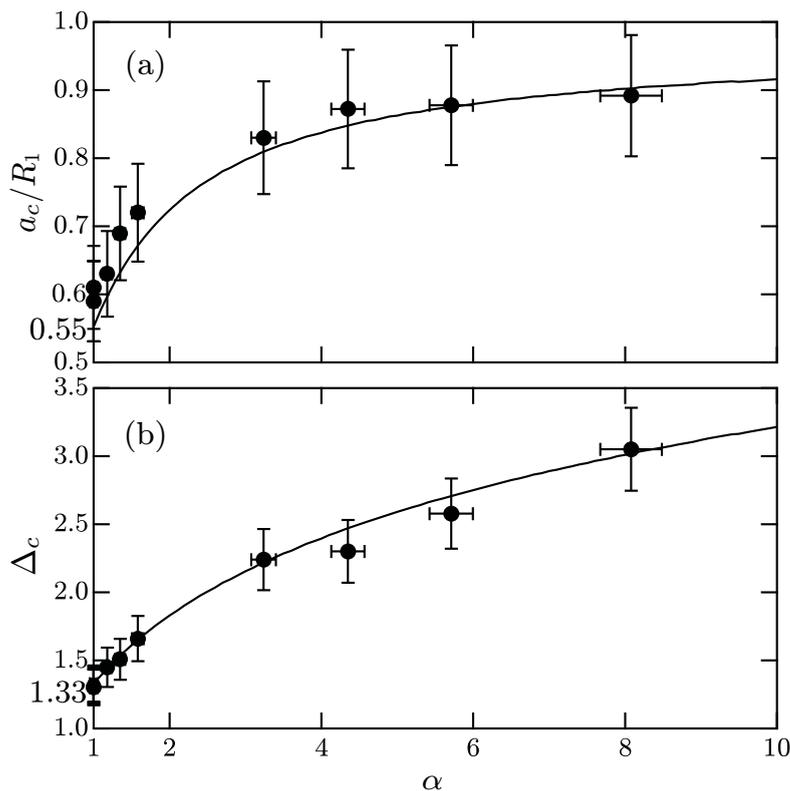


FIGURE 6.18: Seuils d'existence expérimentaux d'une caténoïde asymétrique en fonction de  $\alpha$ .

mais aussi de l'épaisseur finie des anneaux : celle-ci affecte à la fois les ratios représentés sur la figure, mais également la détermination de  $\alpha$ . Dans la gamme d'asymétrie explorée, nous remarquons d'ailleurs que les seuils d'inversion de courbure (Éq. 6.30) et d'existence de la caténoïde (Fig. 6.14) dépendent assez sensiblement de  $\alpha$ . Enfin, la figure 6.18 présente les seuils d'existence adimensionnés ( $a_c/R_1, h_c/R_1$ ) mesurés sur une plus grande gamme de  $\alpha$ . La comparaison avec la théorie est de nouveau satisfaisante.

### 3.3 La demi-caténoïde symétrique

Une façon simple et originale de former une surface minimale à partir d'un seul anneau circulaire<sup>9</sup> de rayon  $R$  consiste à l'immerger puis à l'extraire d'un bain liquide parallèlement à sa surface (Fig. 6.19). Cette configuration rappelle la méthode de l'anneau de du Noüy<sup>10</sup> [141, 142] utilisée en tensiométrie : en suspendant le cadre de masse  $m$  à un dynamomètre, il est possible de remonter à la tension de surface  $\gamma$  du liquide en mesurant au dynamomètre la force  $F$  nécessaire pour « arracher » le cadre au ménisque liquide. Nous négligeons ici le poids du ménisque liquide soulevé et supposons l'anneau infiniment fin et parfaitement mouillant vis-à-vis de la solution utilisée. En retirant progressivement l'anneau du bain, la force  $F$  croît, passe par

9. En oubliant bien évidemment le film plan trivial.

10. Pierre Lecomte du Noüy (1883-1947), mathématicien, biophysicien, écrivain et philosophe français.

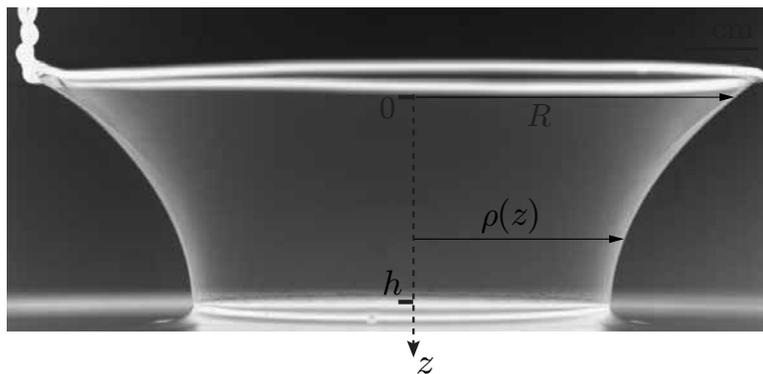


FIGURE 6.19: Illustration expérimentale de la surface minimale engendrée par un anneau circulaire ( $R = 3.6$  cm) extrait d'un bain liquide : paramétrage de la surface du film.

une valeur maximale  $F_{\max}$  puis décroît jusqu'à l'arrachement. Lorsque  $F = F_{\max}$ , le raccordement du ménisque est vertical, permettant d'écrire immédiatement par un équilibre des forces sur le cadre,  $4\pi R\gamma = F_{\max} - mg$ , où nous avons tenu compte des interfaces intérieure et extérieure au cadre. En opérant avec une solution de tensioactifs, un film de savon à l'équilibre s'appuie entre l'anneau et la surface libre du bain sur une hauteur pouvant devenir bien plus grande que la taille typique du ménisque atteinte dans la méthode de du Noüy. Si l'anneau est néanmoins tiré trop loin du bain, cette surface s'effondre sur elle-même ; notons à nouveau  $h_c$  la hauteur critique séparant le bain de l'anneau. À la lumière de ce qui a été étudié auparavant, nous allons chercher à caractériser l'existence et la stabilité de cette nouvelle configuration, et comprendre quel est le rôle joué par le bain liquide en termes de conditions aux limites.

### 3.3.1 Existence et stabilité

Cette surface étant à nouveau ouverte, nous la décrivons par un cosinus hyperbolique. La spécificité de cette forme réside dans les conditions aux limites auxquelles elle est soumise. En effet, seule une condition aux limites,  $\rho(0) = R$ , est imposée par l'opérateur dans le cas présent. Par ailleurs, tant que  $h < h_c$ , les expériences montrent que le rayon du film au niveau du bain  $\rho(h)$  est une fonction décroissante de  $h$ . De plus, les expériences montrent que le raccordement du film de savon avec le bain liquide est toujours perpendiculaire (Fig. 6.19), quelles que soient les valeurs prises par  $R$  et  $h$ . Ce résultat est en fait imposé par l'équilibre mécanique du ménisque reliant le film et le bain (Fig. 6.20), conduisant à la seconde condition aux limites :  $\rho'(h) = 0$ . De fait, en injectant l'ansatz de l'équation 6.7, nous obtenons :

$$\rho(0) = R = a \cosh C, \quad (6.36)$$

$$\rho'(h) = \sinh\left(\frac{h}{a} + C\right) = 0, \quad (6.37)$$

soit donc :

$$C = -\frac{h}{a}. \quad (6.38)$$

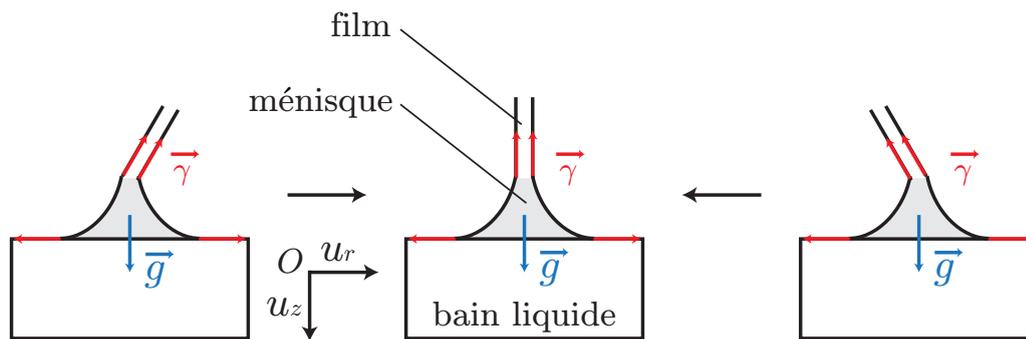


FIGURE 6.20: Schéma simplifié des forces agissant sur le ménisque liquide assurant le raccordement entre le film et le bain. Si le film n'est pas perpendiculaire au bain, il existe une résultante radiale des forces non nulle, induisant un retour vers le raccordement perpendiculaire d'équilibre.

Cette solution ressemble fort aux résultats obtenus pour la caténoïde symétrique, la seule différence résidant en un facteur 2. Nous pouvons donc interpréter cette surface comme la moitié d'une caténoïde symétrique de rayon  $R$  dont le rayon de gorge se situerait à la surface du bain, car  $\rho(h) = a \cosh(h/a - h/a) = a$  (Fig. 6.21). À ce stade, et à l'aide de qui a été développé précédemment, nous pouvons donc déduire que les seuils d'existence de cette demi-caténoïde symétrique sont donnés par  $a_c \simeq 0.55R$  et  $h_c \simeq 0.66R$ . Pour obtenir la variation de  $a$  avec  $h$  à  $R$  fixé, la nouvelle équation implicite à résoudre s'obtient à partir des équations 6.36 et 6.38 :

$$a \cosh\left(\frac{h}{a}\right) = R. \quad (6.39)$$

Nous retrouvons, à un facteur 2 près sur la hauteur, l'équation implicite 6.9 régissant l'existence et la stabilité de la caténoïde symétrique ; le diagramme d'existence et de stabilité de la demi-caténoïde symétrique s'en déduit donc aisément (Fig. 6.22).

D'un point de vue théorique, ce changement de conditions aux limites est souvent appréhendé en mathématiques : alors que la caténoïde symétrique fixe deux valeurs que doit vérifier la fonction  $\rho$  en  $z=0$  et  $z=h$  aux frontières de son domaine de définition (conditions de Dirichlet), la demi-caténoïde symétrique fixe une valeur pour  $\rho$  en  $z=0$  et une valeur pour sa dérivée  $\rho'$  en  $z=h$  (conditions mixtes de Dirichlet-Neumann). De façon plus physique, nous retrouvons cet effet en comparant par exemple les notes musicales émises en soufflant dans un tube, successivement ouvert à ses deux extrémités puis fermé du côté opposé à la bouche. Le changement de conditions aux limites provoque un facteur 2 entre les fréquences des modes fondamentaux sollicités, les deux notes sonnent donc à l'octave l'une de l'autre.

### 3.3.2 Analyse énergétique

Démontrons dans ce paragraphe que le raccordement perpendiculaire inspiré par l'expérience correspond à un minimum d'énergie de surface  $E_\Sigma$ . En ne supposant plus la condition  $\rho'(h) = 0$  et en laissant donc un paramètre libre de varier,  $C$  par exemple, quelle valeur de  $C$  devons-nous prendre pour minimiser  $E_\Sigma$ , à  $h$  et  $R$  fixés ?

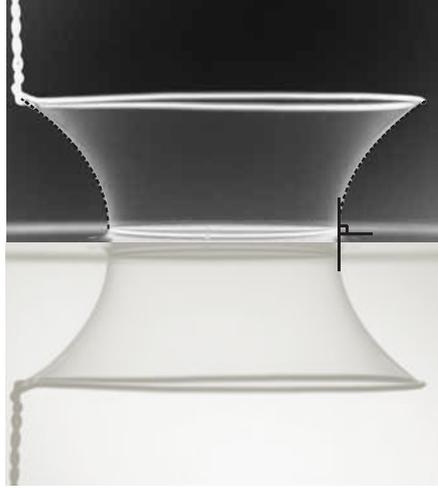


FIGURE 6.21: L'ajustement du profil est en accord avec l'analyse mathématique développée ci-dessus : la surface étudiée peut être vue comme une caténoïde symétrique tronquée de moitié, par symétrie plane.

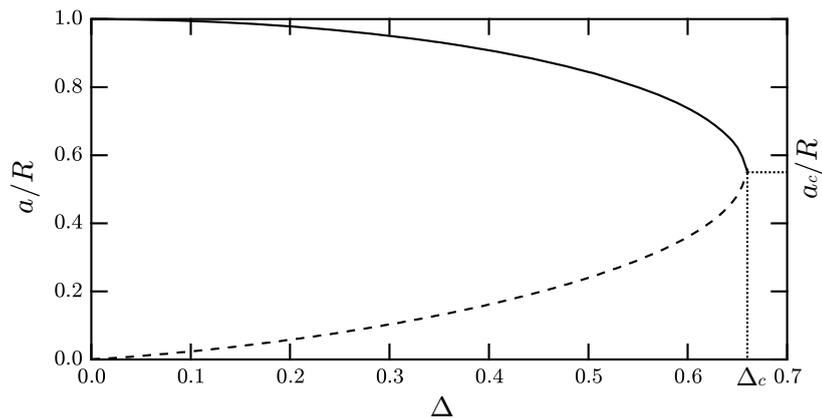


FIGURE 6.22: Rayon de gorge adimensionné  $a/R$  en fonction de  $\Delta = h/R$ . En trait plein, la demi-caténoïde symétrique stable (peu échanquée). En pointillés, la demi-caténoïde symétrique instable (très échanquée).

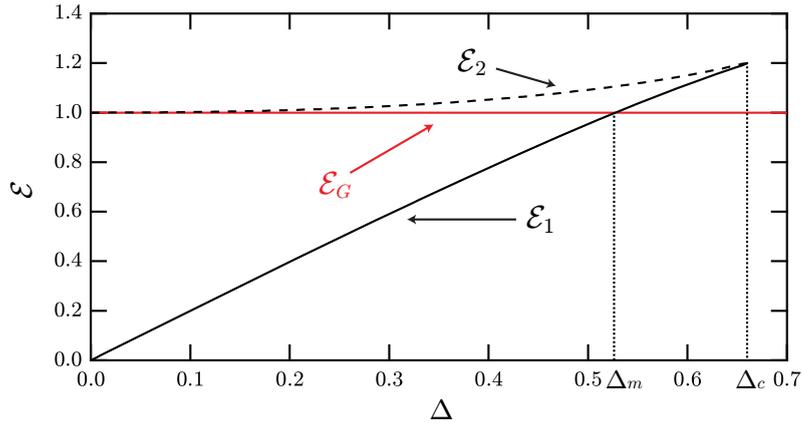


FIGURE 6.23: Évolution des énergies adimensionnées  $\mathcal{E}$  associées aux différentes surfaces minimales en présence, en fonction de  $\Delta$ . En trait plein, la demi-caténoïde symétrique stable. En pointillés, la demi-caténoïde symétrique instable. En rouge, la surface de Goldschmidt.

En repartant de l'expression initiale de  $E_\Sigma$  avec  $C$  comme paramètre libre<sup>11</sup> :

$$E_\Sigma = 2\gamma\pi a \int_0^h \left(1 + \cosh\left(2\left(\frac{z}{a} + C\right)\right)\right) dz. \quad (6.40)$$

Par le changement de variable  $u = z/a + C$ , il s'ensuit :

$$E_\Sigma = 2\gamma\pi a^2 \left( \frac{h}{a} + \frac{\sinh\left(2\left(C + \frac{h}{a}\right)\right)}{2} - \frac{\sinh(2C)}{2} \right), \quad (6.41)$$

$$E_\Sigma = 2\gamma\pi \frac{R^2}{\cosh^2 C} \left( \frac{h \cosh C}{R} + \frac{\sinh\left(2\left(C + \frac{h \cosh C}{R}\right)\right) - \sinh(2C)}{2} \right). \quad (6.42)$$

En adimensionnant à nouveau  $E_\Sigma$  via  $\mathcal{E} = E_\Sigma / (2\gamma\pi R^2)$ , il vient, avec  $\Delta = h/R$  :

$$\mathcal{E} = \frac{\Delta}{\cosh C} - \tanh C + \frac{\sinh(C + \Delta \cosh C) \cosh(C + \Delta \cosh C)}{\cosh^2 C}. \quad (6.43)$$

Dérivons maintenant  $\mathcal{E}$  par rapport à  $C$  et tentons d'en trouver les racines. En notant  $Z = C + \Delta \cosh C$  et  $\dot{Z} = 1 + \Delta \sinh C$ , il vient, après quelques lignes de calculs :

$$\mathcal{E}' = \frac{\dot{Z}(\cosh(2Z) - 1) - \tanh C \sinh(2Z)}{\cosh^2 C}, \quad (6.44)$$

$$\mathcal{E}' = 2 \frac{\sinh^2 Z (\dot{Z} - \tanh C / \tanh Z)}{\cosh^2 C}. \quad (6.45)$$

11. Le choix de prendre  $C$  comme variable continue définit un chemin réactionnel différent de celui utilisé pour démontrer la métastabilité de la caténoïde symétrique. Ainsi, ce nouveau chemin ne fait plus apparaître le point de stagnation de la surface de Goldschmidt, bien que cette surface minimale existe encore ici.

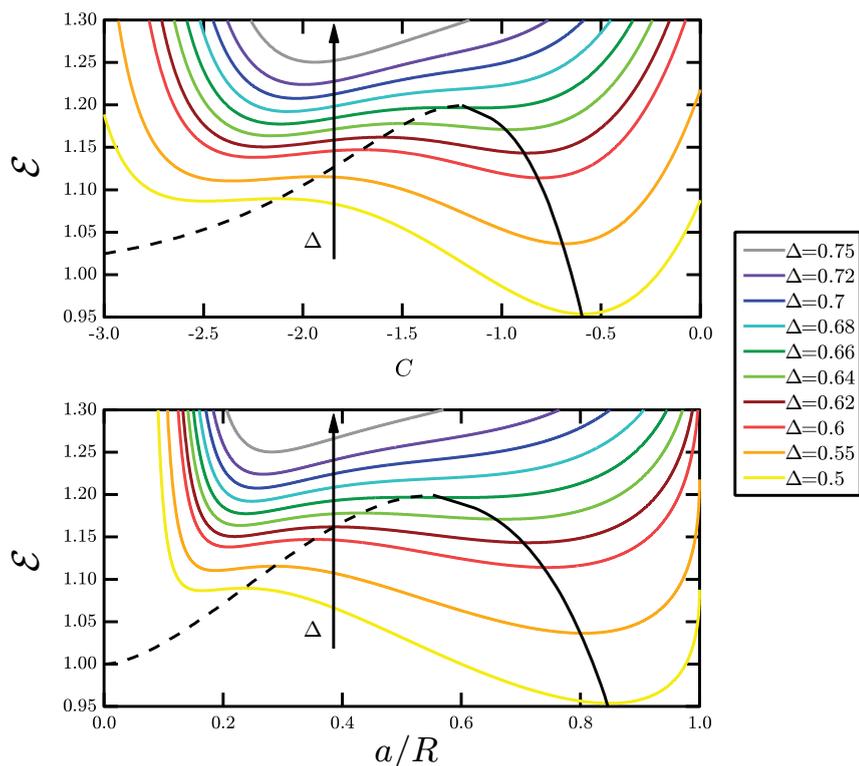


FIGURE 6.24: Paysages d'énergie potentielle  $\mathcal{E}$ , pour  $\Delta$  allant de 0.5 à 0.75, la variable considérée étant indifféremment  $C$  ou  $a/R$ . Les courbes noires représentent de nouveau l'énergie des deux demi-caténoïdes symétriques vérifiant un raccordement perpendiculaire à la surface libre : la demi-caténoïde stable en traits pleins, la demi-caténoïde instable en pointillés.

Une solution immédiate à l'annulation de  $\mathcal{E}'$  est donnée par  $Z = 0$ , ce qui permet finalement de retrouver, à l'aide de la condition aux limites 6.36 :

$$C = -\Delta \cosh C = -\frac{h}{a}. \quad (6.46)$$

En comparaison avec la caténoïde symétrique, les énergies des demi-caténoïdes symétriques stable et instables sont, sans surprise, réduites de moitié (Fig. 6.23). Alors qu'un extremum d'énergie est dicté par une annulation de la dérivée première, sa stabilité est décrite par le signe de la dérivée seconde de l'énergie. Cette dernière s'écrit, au point d'intérêt  $Z = 0$  :

$$\mathcal{E}'' = 2 \frac{\tanh(\Delta \cosh C)}{\cosh^2(\Delta \cosh C)} (1 - \Delta \sinh(\Delta \cosh C)). \quad (6.47)$$

Revenons sur l'étude de stabilité de la caténoïde symétrique : nous avons remarqué qu'il existait deux surfaces solutions au problème variationnel, l'une correspondant à un minimum d'énergie, pour laquelle  $\mathcal{E}'' \geq 0$ , l'autre à un maximum d'énergie, pour laquelle  $\mathcal{E}'' \leq 0$  (Fig. 6.10). Au point critique d'effondrement, ces deux caténoïdes se rejoignent d'un point de vue géométrique, et donc également d'un point de vue énergétique. Ainsi, la seule possibilité est d'imposer en ce point critique une inflexion

de la courbe, définie par  $\mathcal{E}''=0$ . En appliquant ce critère au cas présent, il vient :

$$\Delta_c \sinh(\Delta_c \cosh C_c) = 1, \quad (6.48)$$

soit, avec  $\Delta_c = h_c/R$ ,  $C_c = -\Delta_c \cosh C_c$  et  $X_c = R/a_c$  :

$$\coth(\Delta_c X_c) = \Delta_c X_c. \quad (6.49)$$

Cette équation implicite est, à un facteur 2 près, identique à celle résolue pour la caténoïde symétrique (Éq. 6.12), le résultat est donc immédiat. La condition aux limites en  $z = 0$  aboutit à  $a_c \simeq R/\cosh(1.20) \simeq 0.55R$ . Puis, en reprenant l'équation 6.49,  $h_c \simeq 1.20a_c \simeq 0.66R$ . Pour récapituler ces résultats, les paysages énergétiques illustrant la variation de  $\mathcal{E}$  avec  $C$ , ou de façon équivalente  $a/R$ , pour différentes valeurs de  $\Delta$  sont représentés sur la figure 6.24. Les courbes noires en traits pleins et en pointillés correspondent aux solutions déterminées par le calcul et vérifiant un raccordement perpendiculaire entre le film et le bain.

### 3.3.3 Résultats expérimentaux

Dans un premier temps, nous suivons expérimentalement le rayon de gorge de la demi-caténoïde symétrique, mesuré systématiquement au niveau de la surface libre, en fonction de l'écartement entre l'anneau et le bain (Fig. 6.25). Les mesures sont en bon accord avec la prédiction théorique. Les écarts constatés ont plusieurs causes possibles : en plus des incertitudes expérimentales inhérentes à la mesure, mentionnons de nouveau les effets de taille finie de l'épaisseur de l'anneau ; le film de savon reste *a priori* libre de glisser sur l'anneau en fonction de  $h$ , ce qui entraîne peut-être un rayon effectif dépendant faiblement de la distance séparant le bain du cadre. En outre, la présence du ménisque à la surface du bain liquide est complètement négligée dans notre approche : en particulier, cela laisse une ambiguïté quant aux quantités mesurées, d'autant plus prononcée que le rayon du cadre est petit. Une façon de diminuer l'influence de ce ménisque liquide est d'effectuer la même expérience sur substrat solide légèrement mouillé<sup>12</sup>, en l'occurrence un cylindre de plexiglas, dont le rayon est légèrement inférieur à celui de l'anneau (Fig. 6.26).

Nous avons ensuite sondé les seuils d'existence ( $a_c$ ,  $h_c$ ) de la demi-caténoïde symétrique sur un plus grand éventail de rayons, et en utilisant deux solutions différentes : celle présentée au début de ce chapitre, ainsi qu'une solution surfactante de SDS, de concentration  $c=15 \text{ g.L}^{-1}$  (Fig. 6.27). Les ajustements linéaires prédits théoriquement ainsi que leurs préfacteurs sont en excellent accord avec les résultats expérimentaux sur une large gamme. La superposition des jeux de données corrobore également le fait que l'analyse développée est effectivement indépendante du système fluide choisi, et en particulier de sa tension de surface. Remarquons quand même une légère déviation aux très petits cadres millimétriques. Comme déjà invoqué précédemment, outre l'importance exacerbée de l'épaisseur finie du cadre, les ménisques jouent à cette échelle un rôle prépondérant, dont la taille caractéristique est dictée par la longueur capillaire  $\kappa^{-1}$  [11], où nous rappelons son expression :

---

12. Le cas du substrat solide sec élimine idéalement toute présence de ménisque mais introduit des problèmes de frottement et de rugosité : la ligne de contact peut venir s'y accrocher, ce qui empêche potentiellement le film de savon de conserver sa forme de demi-caténoïde symétrique, pourtant de moindre énergie.

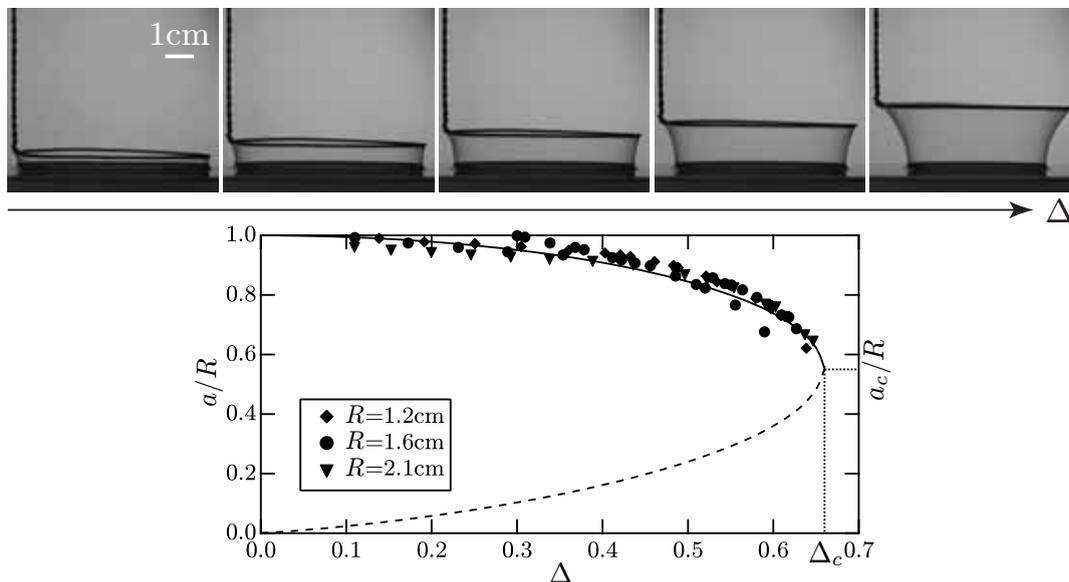


FIGURE 6.25: Évolution expérimentale du rayon de gorge d'une demi-caténoïde en fonction de la distance séparant l'anneau et le bain. Chaque série de symboles correspond à une valeur de  $R$  donnée.

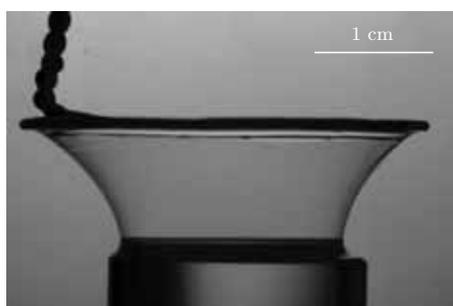


FIGURE 6.26: Apparissant comme une variante expérimentale dans l'étude des demi-caténoïdes symétriques, l'utilisation d'un substrat solide mouillé permet en plus de s'affranchir d'effets hydrodynamiques liés à la présence du bain liquide.

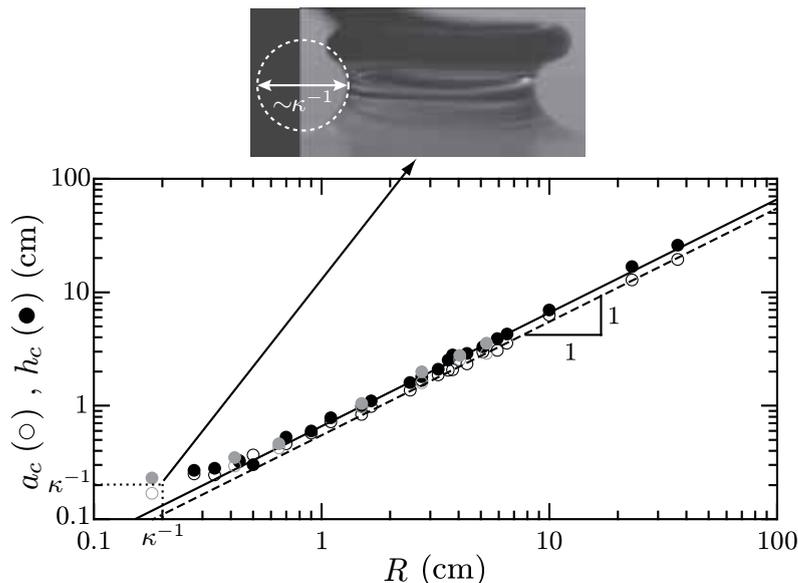


FIGURE 6.27: Seuils d'existence expérimentaux en fonction de  $R$ . Chaque couleur correspond à un système fluide donné : noir (solution savonneuse), gris (solution de SDS). Les droites noires représentent les ajustements théoriques :  $a_c = 0.55R$  (pointillés),  $h_c = 0.66R$  (traits pleins). La photo expérimentale illustre la forme intermédiaire pont liquide/demi-caténoïde s'appuyant sur un cadre dont le rayon est comparable à la longueur capillaire.

$$\kappa^{-1} = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho_l g}}, \quad (6.50)$$

avec  $\gamma$  la tension de surface,  $\rho_l$  la masse volumique du liquide considéré et  $g$  l'accélération de la pesanteur. Comme son expression le suggère, cette longueur, de l'ordre du millimètre, fournit une taille caractéristique sur laquelle les effets capillaires et gravitaires sont en compétition<sup>13</sup>. Pour les petits cadres, la longueur pertinente devient désormais  $\kappa^{-1}$ , au détriment de la taille du cadre  $R$ . La photo (Fig. 6.27) illustre à ce titre un cadre millimétrique et montre que l'objet étudié est maintenant une forme hybride entre une demi-caténoïde symétrique et un pont liquide : il est donc naturel que les critères de stabilité et d'existence, développés dans le contexte des surfaces minimales, deviennent caduques à ces échelles de longueur.

Enfin, les expériences montrent que l'effondrement d'une demi-caténoïde symétrique est éventuellement suivi de la formation d'une bulle interfaciale, ou « bulle d'orage ». Nous observons également que la taille de cette bulle varie avec le rayon du cadre, et qu'il existe également une taille de cadre seuil en-dessous de laquelle aucune bulle interfaciale ne se forme. La compréhension de ce phénomène, nécessitant dorénavant une approche dynamique (le temps d'effondrement entre les deux dernières images est ici de l'ordre de  $10^{-1}$  s), est poursuivie dans le chapitre suivant.

13. Dans la partie dédiée à la microfluidique, cette longueur était très grande devant les dimensions de la section du canal : la prédominance des effets de tension de surface justifiait donc de négliger totalement la gravité dans ce problème.

## 4 La diabloïde

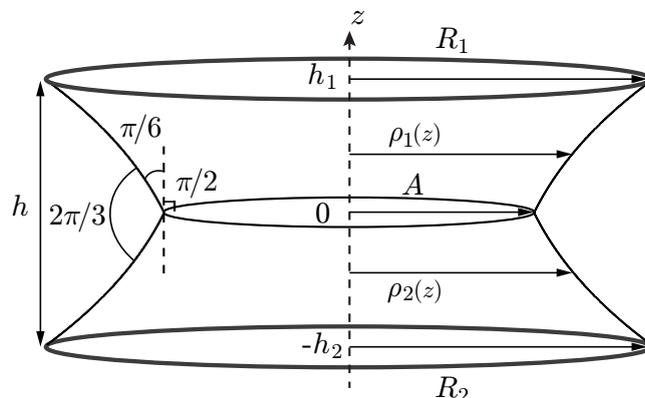


FIGURE 6.28: La diabloïde : représentation schématique et paramétrage de la surface du film.

Nous étudions dans cette partie une structure géométrique plus complexe, caractérisée par la coexistence de deux portions de caténoïde et d'un film plan : nous la surnommons « diabloïde »<sup>14</sup> (Fig. 6.28). Cette surface minimale a déjà été observée dans le domaine de la physique des mousses, et exploitée en tant que système modèle constitué d'un unique bord de Plateau [127, 143, 144, 128]. Les contraintes imposées par cette configuration induisent de nouvelles conditions aux limites, et par extension de nouveaux critères d'équilibre. L'intérêt de cette nouvelle conformation est en premier lieu expérimental. En effet, de façon assez curieuse, la diabloïde est la première surface minimale adoptée par un film de savon après avoir immergé deux anneaux accolés dans la solution. Pour obtenir la caténoïde associée, il est alors nécessaire de casser le film plan central, à l'aide d'une spatule imbibée d'éthanol par exemple. Nous commençons à traiter le cas de la diabloïde symétrique (le contour est constitué de deux anneaux de rayons identiques,  $R_1 = R_2 = R$ ), puis le cas asymétrique ( $R_1 < R_2$ ). Enfin, nous terminons cette partie en libérant l'invariance par rotation de la diabloïde asymétrique. En y substituant le degré de liberté de translation par un degré de liberté de rotation, une nouvelle surface minimale, surnommée « diabloïde rotatoire », apparaît. Nous en établissons ses différentes caractéristiques et les comparons avec celles obtenues dans le cas de la diabloïde axisymétrique.

### 4.1 La diabloïde symétrique

#### 4.1.1 Description géométrique

La diabloïde se compose d'une double caténoïde s'appuyant sur deux anneaux de rayons  $R_1$  et  $R_2$  et sur un film plan, de rayon  $A$ , situé entre les anneaux (Fig. 6.28). La distance entre les deux anneaux est notée  $h$ , la distance entre le film plan et l'anneau 1 (resp. 2) est notée  $h_1$  (resp.  $h_2$ ). La portion de caténoïde construite sur l'anneau 1 (resp. 2) est notée  $\Sigma_1$  (resp.  $\Sigma_2$ ), le film plan est noté  $\Sigma_p$ . L'étude est de

14. Cette figure a été baptisée en référence au jeu de jonglage bien connu, le diablo.

nouveau menée en coordonnées cylindriques  $(\rho, \theta, z)$ , le film plan est placé en  $z = 0$ , l'axe  $(Oz)$  étant choisi vertical ascendant. Encore pour des raisons d'invariance par rotation, la surface  $\Sigma_1$  (resp.  $\Sigma_2$ ) est paramétrée par le profil  $\rho_1(z)$  (resp.  $\rho_2(z)$ ). En conservant pour  $\Sigma_1$  (resp.  $\Sigma_2$ ) une forme hyperbolique, nous pouvons donc écrire :

$$\rho_1(z) = a_1 \cosh \left( \frac{z}{a_1} + C_1 \right), \quad (6.51)$$

$$\rho_2(z) = a_2 \cosh \left( \frac{z}{a_2} + C_2 \right). \quad (6.52)$$

Comme précédemment, supposons  $R_1, R_2$  et  $h$  fixés. Pour déterminer les 7 constantes  $(a_1, C_1, h_1, a_2, C_2, h_2, A)$ , les quatre premières conditions aux limites s'écrivent respectivement en  $z = 0, h_1, -h_2$  :

$$A = a_1 \cosh C_1, \quad (6.53)$$

$$A = a_2 \cosh C_2, \quad (6.54)$$

$$R_1 = a_1 \cosh \left( \frac{h_1}{a_1} + C_1 \right), \quad (6.55)$$

$$R_2 = a_2 \cosh \left( \frac{-h_2}{a_2} + C_2 \right), \quad (6.56)$$

avec également :

$$h = h_1 + h_2. \quad (6.57)$$

Pour pouvoir résoudre le système, deux conditions aux limites supplémentaires sont à imposer. Celles-ci sont dictées par la stabilité du bord de Plateau de part (1<sup>ère</sup> condition) et d'autre (2<sup>ème</sup> condition) du film plan horizontal. Rappelons ici que les deux premières lois de Plateau [140, 145] imposent pour toute surface d'un film de savon la dérivabilité (la surface est « lisse ») et une courbure moyenne uniforme en tout point. Cette courbure moyenne est d'ailleurs nulle ici, puisque toutes les surfaces minimales étudiées sont ouvertes. Dans le cas présent, la 3<sup>ème</sup> loi de Plateau énonce que les trois angles, autour du cercle de rayon  $A$  rejoignant les trois surfaces en présence  $\Sigma_1, \Sigma_2$  et  $\Sigma_p$ , doivent être identiques et égaux à  $2\pi/3$  (Fig. 6.28). Notons tout de même que ces conditions sont valables dans la limite d'un film de savon « sec ». En réalité, la fraction volumique de liquide contenue dans un film de savon n'est pas nulle, et des études récentes, vis-à-vis des conditions de Plateau, montrent que ceci engendre des angles légèrement différents de  $2\pi/3$  [127]. Cet effet, attribué à la présence d'une tension de ligne négative, concerne d'ailleurs plus généralement la physique des mousses, et montre que dans certaines conditions, une approche purement géométrique n'est pas suffisante pour décrire la conformation des films de savon. Comme la correction appliquée, de l'ordre de 2% sur les angles, reste très faible, nous laissons de côté cet effet dans la présente analyse. Mathématiquement, les pentes locales des deux caténoïdes en  $z=0$  s'expriment donc :

$$\rho_1'(z = 0) = \sinh C_1 = \tan \frac{\pi}{6} = \frac{1}{\sqrt{3}}, \quad (6.58)$$

$$\rho_2'(z = 0) = \sinh C_2 = -\tan \frac{\pi}{6} = -\frac{1}{\sqrt{3}}, \quad (6.59)$$

soit finalement :

$$C_1 = -C_2 = C \simeq 0.55. \quad (6.60)$$

Il vient donc<sup>15</sup>, en  $z = 0$  :

$$a_1 = a_2 = a = \frac{A}{\cosh C} = \frac{\sqrt{3}}{2}A. \quad (6.61)$$

En revenant ici à la caténoïde symétrique, remarquons que cette dernière impose, au lieu de  $2\pi/3$ , un angle de  $\pi$  au niveau du rayon de gorge : il n'y a en effet aucune rupture de pente dans cette géométrie simple. En plaçant de la même façon son rayon de gorge à la position  $z = 0$ , il vient alors immédiatement<sup>16</sup>  $C_1 = C_2 = 0$ . Ce point se révèle intéressant un peu plus loin. La résolution des conditions aux limites s'achève en écrivant à nouveau, en  $z = h_1, -h_2$  :

$$h_1 = a \left( \operatorname{arccosh} \frac{R_1}{a} - C \right), \quad (6.62)$$

$$h_2 = a \left( \operatorname{arccosh} \frac{R_2}{a} - C \right), \quad (6.63)$$

avec :

$$h_1 + h_2 = a \left( \operatorname{arccosh} \frac{R_1}{a} + \operatorname{arccosh} \frac{R_2}{a} - 2C \right) = h. \quad (6.64)$$

En contraste avec les résultats obtenus avec la caténoïde symétrique, remarquons que le fait d'imposer des angles de  $2\pi/3$  sur le bord de Plateau, ce qui revient à avoir  $C \neq 0$ , implique une borne supérieure différente pour  $a$ , en veillant à garder  $h_1 > 0, h_2 > 0$ . Ainsi :

$$a < \min \left( \frac{R_1}{\cosh C}, \frac{R_2}{\cosh C} \right). \quad (6.65)$$

En revanche, il est immédiat de montrer que  $A$  est borné de la même façon que le rayon de gorge de la caténoïde, c'est-à-dire :

$$A < \min(R_1, R_2). \quad (6.66)$$

Cette quantité étant par ailleurs aisément mesurable expérimentalement, le raisonnement se poursuit au moyen de cette grandeur, au détriment de la constante  $a$ .

#### 4.1.2 Existence et stabilité

Par analogie avec le traitement mathématique de la caténoïde, nous pouvons réécrire la condition aux limites en  $z = h_1$  (Éq. 6.55) de façon adimensionnée, en rappelant que dans le cas symétrique,  $R_1 = R_2 = R$  :

$$\cosh(\Delta_1 X + C) = X, \quad (6.67)$$

---

<sup>15</sup>. En anticipant sur la partie suivante, mentionnons que ces premières conditions sont aussi bien valables dans le cas symétrique ou asymétrique. L'asymétrie commence à se faire ressentir à partir de l'équation 6.62.

<sup>16</sup>. L'apparente contradiction avec le résultat obtenu précédemment pour une caténoïde symétrique,  $C = -h/2a$ , tient seulement d'un choix différent pour la position de l'origine de l'axe ( $Oz$ ).

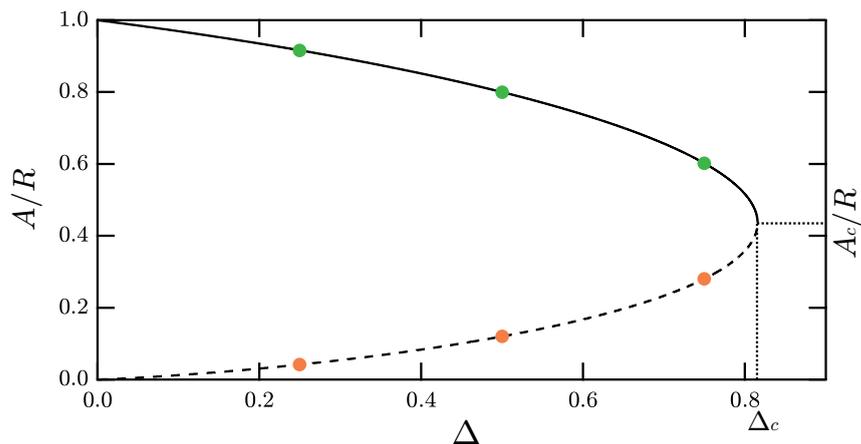


FIGURE 6.29: Évolution du rayon du film plan en fonction de la distance entre les anneaux. En trait plein, la diabolöide stable présente un film plan large. En pointillés, la diabolöide instable présente un film plan étroit. Les points verts et orange indiquent les solutions correspondant aux diabolöides montrées à la figure 6.30.

avec  $X = R/a$ ,  $\Delta_1 = h_1/R = h/2R$ , par symétrie. Soit, en introduisant  $\Delta = h/R$  :

$$\cosh\left(\frac{\Delta X}{2} + C\right) = X. \quad (6.68)$$

Cette équation implicite ressemble fortement à l'équation 6.10 obtenue dans le cas de la caténoïde symétrique, la seule différence provenant de la valeur non nulle de  $C$  ici. Par conséquent, une démarche analogue démontre que, comme pour la caténoïde, tant que les anneaux ne sont pas trop éloignés l'un de l'autre, une valeur de  $\Delta$  donnée correspond à deux valeurs de  $a$  (ou  $A$ , c'est équivalent), associées à deux diabolöides distinctes (Fig. 6.30). L'analyse énergétique effectuée plus bas montre que l'une des diabolöides est stable, alors que l'autre est instable, du fait de la différence de leurs énergies. Ceci est vrai jusqu'à ce que  $\Delta$  atteigne un seuil noté  $\Delta_c$ . La hauteur critique de stabilité est de nouveau notée  $h_c$ , le rayon du film plan correspondant est noté  $A_c$ . Il n'y a alors plus de solution sous la forme recherchée : la limite d'existence est atteinte et la diabolöide critique s'effondre. La figure 6.29 représente l'évolution du rayon du film plan adimensionné  $A/R$  en fonction de  $\Delta$  pour les deux diabolöides solutions au problème.

Remarquons notamment que, du fait de la présence du film plan central, la hauteur critique de la diabolöide symétrique ( $h_c \simeq 0.82R$ ) est relativement plus faible que celle d'une caténoïde symétrique de même rayon ( $h_c \simeq 1.33R$ ). Ce résultat suggère que les contraintes additionnelles imposées par la 3<sup>ème</sup> loi de Plateau sur les diabolöides rendent ces structures moins stables que les caténoïdes. Les nouveaux seuils d'existence ( $A_c, h_c$ ) peuvent à nouveau être retrouvés par le calcul en posant une fonction  $f$  telle que :

$$f(X) = \cosh\left(\frac{\Delta X}{2} + C\right) - X. \quad (6.69)$$

Résoudre l'équation implicite 6.68 au point critique revient à imposer une et une seule intersection entre la droite et le cosinus hyperbolique comprises dans l'expres-

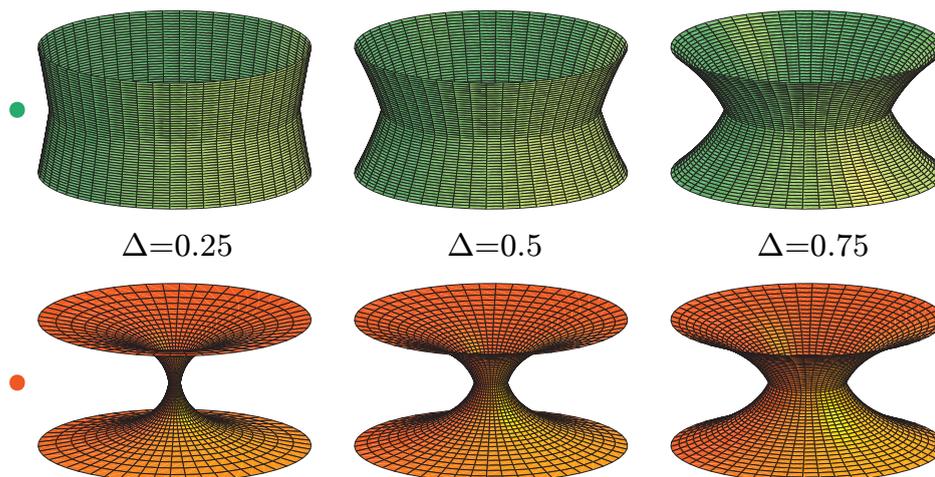


FIGURE 6.30: Représentations 3D de diaboloides symétriques typiques, obtenues pour  $\Delta = 0.25, 0.5, 0.75$  (valeurs indexées sur la figure précédente). En vert, les diaboloides présentant un film plan large. En orange, les diaboloides présentant un film plan étroit. L'échelle verticale est modifiée pour la clarté de la figure. En comparaison avec la figure 6.8, notons la rupture de pente du profil au niveau du film plan central.

sion de  $f$ , comme le montre la figure 6.6 dans le cas de la caténoïde. De façon analogue à l'analyse de stabilité des surfaces minimales précédentes, ceci est vérifié lorsque la fonction  $f$  s'annule ainsi que sa dérivée première  $\partial_X f$ . Il s'ensuit alors :

$$\coth\left(\frac{\Delta_c X_c}{2} + C\right) = \frac{\Delta_c X_c}{2}. \quad (6.70)$$

Cette nouvelle équation implicite a pour unique solution positive  $\Delta_c X_c/2 \simeq 1.08$ . En exploitant à nouveau l'annulation de  $\partial_X f$  et  $f$  en ce point, il vient :

$$h_c \simeq \frac{2R}{\sinh(1.08 + C)} \simeq 0.82R, \quad (6.71)$$

$$A_c = a_c \cosh C \simeq \frac{R \cosh C}{\cosh(1.08 + C)} \simeq 0.44R. \quad (6.72)$$

Ces seuils sont en accord avec la figure 6.29, et apportent une justification à une estimation expérimentale publiée par ailleurs dans la littérature :  $h_c \simeq 0.8R$  [127].

#### 4.1.3 Analyse énergétique

L'énergie potentielle  $\mathcal{E}$  de cette nouvelle configuration, encore adimensionnée par  $2\gamma\pi R^2$ , peut se décomposer comme :

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_p + \mathcal{E}_1 + \mathcal{E}_2, \quad (6.73)$$

où  $\mathcal{E}_p$ ,  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$  désignent respectivement les énergies des surfaces  $\Sigma_p$ ,  $\Sigma_1$  et  $\Sigma_2$ . Ainsi, en vertu des résultats précédents :

$$\mathcal{E}_p = \left(\frac{A}{R}\right)^2, \quad (6.74)$$

$$\mathcal{E}_1 = \frac{2}{R^2} \int_0^{h_1} \rho_1(z) \sqrt{1 + \rho_1'^2(z)} dz, \quad (6.75)$$

$$\mathcal{E}_1 = \left(\frac{a}{R}\right)^2 \left(\frac{h_1}{a} + \frac{\sinh 2\left(C + \frac{h_1}{a}\right) - \sinh 2C}{2}\right), \quad (6.76)$$

$$\mathcal{E}_1 = \mathcal{E}_2 = \left(\frac{A}{R \cosh C}\right)^2 \left(\frac{h \cosh C}{2A} + \frac{\sinh 2\left(C + \frac{h \cosh C}{2A}\right) - \sinh 2C}{2}\right). \quad (6.77)$$

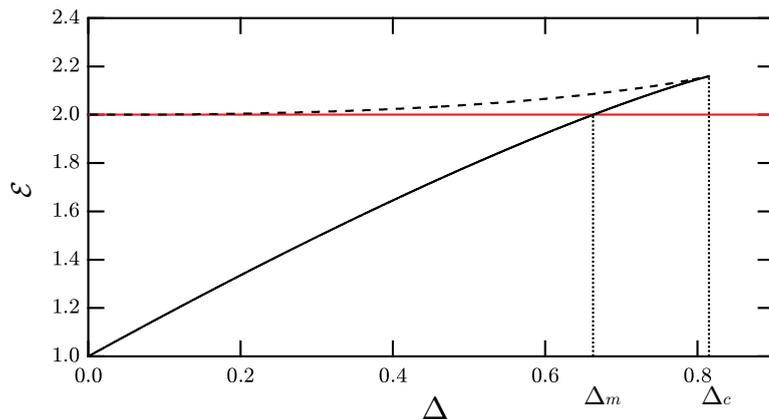


FIGURE 6.31: Évolution de l'énergie en fonction de la distance entre les anneaux. En trait plein, la diaboloidé stable. En pointillés, la diaboloidé instable. En rouge, la surface de Goldschmidt composée des deux anneaux.

La figure 6.31 représente l'évolution des énergies des deux diaboloides solutions au problème variationnel en fonction de  $\Delta$ . Comme auparavant, nous remarquons que la diaboloidé très échançrée, correspondant à un film horizontal étroit, possède une énergie supérieure à la diaboloidé peu échançrée, qui est effectivement celle observée expérimentalement. Par ailleurs, à la limite des anneaux accolés, la diaboloidé instable tend asymptotiquement vers la surface composée des deux anneaux, soit  $\mathcal{E} \sim 2$ . D'un autre côté, la diaboloidé stable se rapproche asymptotiquement d'une surface composée d'un cylindre de plus en plus écrasé, dont la surface tend vers 0, et du film plan, dont le rayon  $A$  tend vers  $R$  : soit finalement  $\mathcal{E} \sim 1$ . La surface de Goldschmidt, d'énergie  $\mathcal{E} = 2$ , apparaît de nouveau comme une surface minimale *a priori* accessible au système. Mais ici encore, le choix d'un chemin réactionnel analogue à la partie précédente fait apparaître une barrière d'énergie séparant cet état de la diaboloidé stable, jusqu'à la limite d'existence de cette dernière.

#### 4.1.4 Résultats expérimentaux

De la même manière que précédemment, une diaboloidé symétrique est formée expérimentalement en immergeant deux anneaux identiques et accolés dans la solution savonneuse. Les observables, mesurées de façon systématique, sont désormais la distance  $h$  séparant les cadres et le rayon  $A$  du film plan central. La série de clichés présentée sur la figure 6.32 fait clairement apparaître la rupture de pente au niveau du film plan, conséquence de la 3<sup>ème</sup> condition de Plateau discutée plus haut. Les

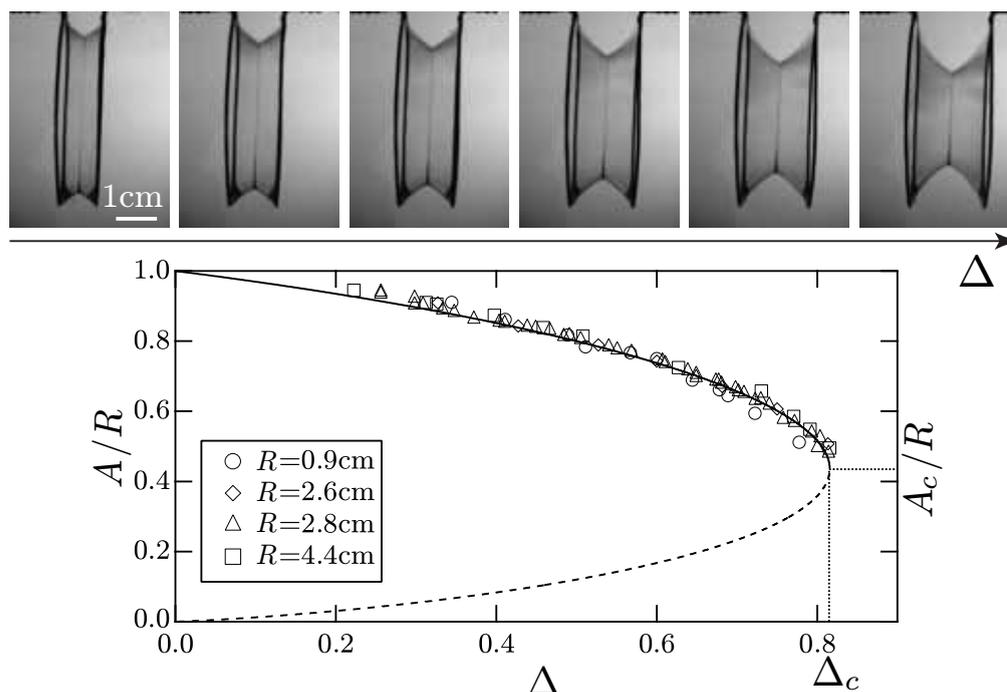


FIGURE 6.32: Série typique de photos illustrant l'évolution d'une diabololoïde symétrique expérimentale ( $R = 2.6$  cm) en fonction de l'écartement adimensionné des anneaux. Le rayon du film plan  $A$  est mesuré en fonction de la distance  $h$  séparant les anneaux. Le graphe représente ces deux quantités adimensionnées par le rayon  $R$ . Chaque série de symboles correspond à une valeur de  $R$  fixée.

données expérimentales sont en excellent accord avec la prédiction théorique, pour différentes valeurs de  $R$ . Ceci conforte l'hypothèse que cette surface minimale, du fait des contraintes supplémentaires imposées par rapport à la caténoïde symétrique de rayon identique, possède une zone d'existence sensiblement réduite, quelle que soit la valeur de  $R$ .

## 4.2 La diabololoïde asymétrique

### 4.2.1 Existence et stabilité

Brisons à présent la symétrie entre les deux cadres, de rayons  $R_1$  et  $R_2 = \alpha R_1$ , avec  $\alpha > 1$ . Comme dans le cas de la caténoïde, cette perte de symétrie a des conséquences importantes sur le comportement de la diabololoïde. La figure 6.33 représente de nouveau le rayon du film plan adimensionné  $A/R_1$  en fonction de  $\Delta = h/R_1$ , pour différents rapports d'aspect. La première observation concerne encore un décalage des seuils d'existence ( $A_c/R_1, h_c/R_1$ ) de la diabololoïde. Une nouveauté, en revanche, est ici l'apparition d'une nouvelle hauteur critique, dépendant de  $\alpha$ , en-dessous de laquelle la diabololoïde stable n'existe pas mathématiquement. Cet effet est une fois de plus dû aux contraintes angulaires dictées par le bord de Plateau présent entre les deux anneaux. Ce seuil inférieur d'existence est facilement déterminé en imposant que  $A$  prenne sa valeur maximale, soit  $A = R_1$ . D'après les équations 6.61 et 6.64,

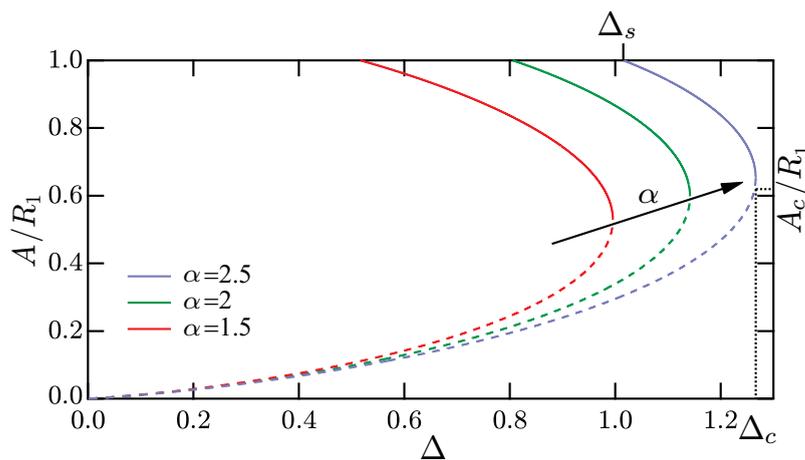


FIGURE 6.33: Évolution de  $A/R_1$  en fonction de  $\Delta = h/R_1$ , pour différents rapports d'aspect entre les anneaux :  $\alpha = 1, 1.5, 2, 2.5$ . En trait plein, les diaboloides stables correspondent à un film plan large. En pointillés, les diaboloides instables correspondent à un film plan étroit. La diaboloidé asymétrique stable présente un seuil inférieur d'existence donné par  $\Delta_s = (\text{arccosh}(\alpha \cosh C) - C) / \cosh C$ .

il vient donc :

$$\frac{R_1}{\cosh C} (\text{arccosh}(\cosh C) + \text{arccosh}(\alpha \cosh C) - 2C) = h, \quad (6.78)$$

$$\frac{h}{R_1} = \Delta_s = \frac{\text{arccosh}(\alpha \cosh C) - C}{\cosh C}. \quad (6.79)$$

Remarquons que cette quantité est nulle dans le cas symétrique  $\alpha = 1$  et croît avec  $\alpha$ , en accord avec la figure précédente. Dans le cas où la distance entre les cadres est inférieure à cette distance critique, quelle est donc la surface minimale adoptée par le système? Pour répondre à cette question, notons que la condition  $A = R_1$  se ramène à écrire de façon équivalente  $h_1 = 0$ , d'après l'équation 6.62. Par voie de conséquence, la surface recherchée est composée du film plan positionné sur le petit anneau de rayon  $R_1$ , et de la caténoïde asymétrique formée sur les deux cadres de rayons  $R_1$  et  $R_2$ . D'un autre côté, lorsque la distance entre les anneaux est suffisamment grande pour autoriser l'existence de la diaboloidé, une compétition entre deux surfaces minimales - la diaboloidé stable et l'ensemble caténoïde stable + un film plan porté par le petit cadre - est alors de mise, et peut éventuellement donner naissance à de nouveaux phénomènes de métastabilité. Cette discussion est reprise dans l'analyse énergétique effectuée ci-après, par comparaison des aires de ces deux configurations.

Avant ceci, revenons sur les seuils d'existence de la diaboloidé asymétrique. Encore de façon simpliste, il se conçoit bien que la hauteur critique d'existence  $h_c$  d'une diaboloidé asymétrique de rayons  $R_1$  et  $R_2$  vérifie l'encadrement  $0.82R_1 < h_c < 0.82R_2$ , soit  $0.82 < \Delta_c < 0.82\alpha$ . L'obtention du résultat exact passe par la réécriture des conditions aux limites en  $z = h_1, -h_2$  (Éq. 6.55, Éq. 6.56) :

$$\cosh(\Delta_1 X + C) = X, \quad (6.80)$$

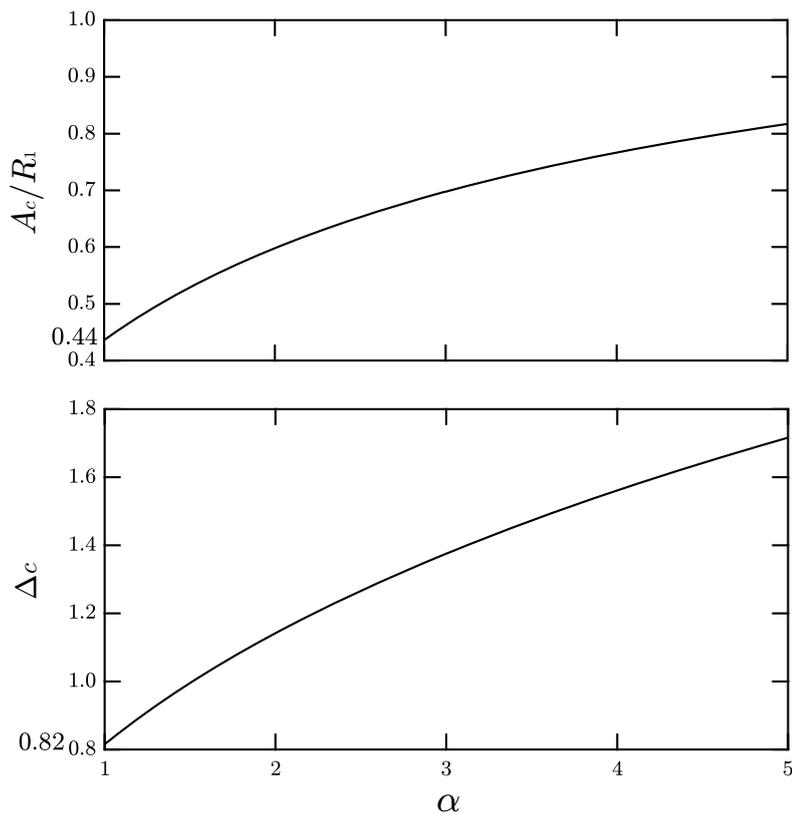


FIGURE 6.34: Évolution des seuils d'existence d'une diaboloidé asymétrique en fonction de  $\alpha = R_2/R_1$ .

$$\cosh(\Delta_2 X + C) = \alpha X, \quad (6.81)$$

avec  $X = R_1/a$ ,  $\Delta_1 = h_1/R_1$ ,  $\Delta_2 = h_2/R_1$ . Les équations sont manipulées afin de faire apparaître la hauteur totale. Nous utilisons ici la même méthode, en annulant simultanément une fonction et sa dérivée première au niveau du seuil d'existence. Il vient par la suite, en notant  $\Delta = h/R_1 = \Delta_1 + \Delta_2$  :

$$\operatorname{arccosh} X_c + \operatorname{arccosh} (\alpha X_c) = \Delta_c X_c + 2C, \quad (6.82)$$

soit, en utilisant la forme logarithmique :

$$\ln((X_c + \sqrt{X_c^2 - 1})(\alpha X_c + \sqrt{(\alpha X_c)^2 - 1})) = \Delta_c X_c + 2C. \quad (6.83)$$

Nous imposons *via* l'équation précédente au moins une intersection entre les courbes logarithmique et affine. Imposer au plus une intersection à ces courbes s'écrit par dérivation avec l'équation supplémentaire ci-dessous :

$$\frac{1}{\sqrt{X_c^2 - 1}} + \frac{\alpha}{\sqrt{(\alpha X_c)^2 - 1}} = \Delta_c. \quad (6.84)$$

Ce système de deux équations à deux inconnues  $(\Delta_c, X_c)$  se résout numériquement,  $\alpha$  jouant ici le rôle de paramètre. De même que pour la caténoïde asymétrique, nous en déduisons donc l'évolution des seuils d'existence  $(A_c/R_1, \Delta_c)$  de la diaboloidé en

stability thresholds: $\begin{cases} \operatorname{arccosh} X_c + \operatorname{arccosh}(\alpha X_c) = \Delta_c X_c + 2C \\ \frac{1}{\sqrt{X_c^2 - 1}} + \frac{\alpha}{\sqrt{(\alpha X_c)^2 - 1}} = \Delta_c \end{cases}$			
catenoids $C = 0$	symmetric $\alpha = 1$	asymmetric $\alpha > 1$	half-symmetric $\alpha = 1$ $\widetilde{\Delta}_c = 2\Delta_c$
	$\Delta_c \approx 1.33$	$\Delta_c(\alpha)$	$\Delta_c \approx 0.66$
diaboloids $C \approx 0.55$	symmetric $\alpha = 1$		asymmetric $\alpha > 1$
	$\Delta_c \approx 0.82$		$\Delta_c(\alpha)$

FIGURE 6.35: Tableau résumant les seuils d'existence des surfaces minimales étudiées jusque-là dans ce chapitre, ceux-ci étant obtenus à partir du système d'équations (Éq. 6.83, Éq. 6.84). Dans le cas des demi-caténoïdes symétriques, le seuil  $\Delta_c$  est déterminé en remplaçant  $\Delta_c$  par  $\widetilde{\Delta}_c$  dans ce jeu d'équations. Figure tirée de [146].

fonction de l'asymétrie  $\alpha$  du système (Fig. 6.34). Mentionnons enfin que le fait de prendre  $C = 0$  dans le système d'équations précédent permet de retrouver de façon élégante les seuils de la caténoïde asymétrique. En effet, au seuil d'existence d'une caténoïde asymétrique, le rayon de gorge se situe entre les anneaux : en plaçant, comme pour la diaboloid, ce rayon de gorge en  $z = 0$ , les conditions  $h_1 > 0$  et  $h_2 > 0$  sont réalisées. La seule différence réside dans la pente continue en ce point : ceci est encore une fois équivalent à poser  $C = 0$ . Le cas de la caténoïde symétrique se retrouve également en prenant  $C = 0$  et  $\alpha = 1$  ; enfin, le cas de la demi-caténoïde symétrique se déduit du précédent en divisant  $\Delta_c$  par 2. Ces différents résultats sont généralisés sur la figure 6.35.

#### 4.2.2 Analyse énergétique

Comme évoqué précédemment, la bistabilité engendrée par la coexistence de deux surfaces minimales nécessite de comparer leurs énergies respectives : la configuration « diaboloid stable » est notée dans la suite  $D$ , la configuration « caténoïde stable+cadre » est notée  $C$ . Les énergies de surface de ces deux géométries sont représentées sur la figure 6.36, dans le cas symétrique  $\alpha = 1$ , et pour une asymétrie  $\alpha = 2$ . Le cas symétrique, décrit par les courbes noires, illustre que l'état le plus favorable énergétiquement reste la diaboloid, quelle que soit la valeur finie de  $\Delta$ . La différence énergétique est par surcroît d'autant plus marquée que  $\Delta$  est grand. Ceci justifie d'ailleurs les expériences réalisées dans le cas symétrique, celles-ci ne laissant jamais entrevoir la configuration  $C$  (Fig. 6.32). Dans le cas asymétrique  $\alpha = 2$ , les courbes grises démontrent que dès que la diaboloid stable existe (le seuil étant donné par l'équation 6.79), elle est encore d'énergie inférieure à la configuration  $C$ , bien que la différence entre les deux états reste faible. Il reste donc à déterminer expérimentalement si ces deux états sont séparés par une barrière d'énergie lors de leur coexistence, et le cas échéant, s'il est possible de traverser cette barrière avant

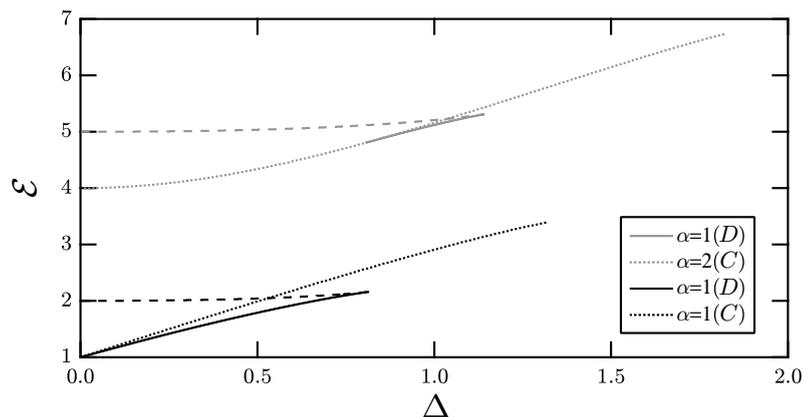


FIGURE 6.36: Énergies comparées des configurations « diabololoïde stable » (traits pleins) et « caténoïde stable+cadre » (pointillés courts) en fonction de l'écartement adimensionné  $\Delta$  entre les anneaux, dans les cas symétrique (courbes noires) et asymétrique (courbes grises). Dans les deux cas, les énergies des diabololoïdes instables sont également représentées en pointillés longs.

la limite supérieure d'existence de la diabololoïde. Bien entendu, la configuration de la diabololoïde instable, au film horizontal étroit, est laissée de côté du fait de son énergie plus élevée : dans le cas asymétrique, celle-ci s'apparente, à la limite des anneaux accolés, à la surfaces composée des deux anneaux, soit  $\mathcal{E} \sim \alpha^2 + 1 = 5$ .

### 4.2.3 Résultats expérimentaux

**Cycle d'hystérésis** Afin de répondre aux questions posées plus haut, nous plongeons de nouveau deux anneaux, de rayons différents et positionnés à  $h = 0$ , dans la solution savonneuse. Ils sont ensuite retirés du bain puis écartés progressivement. L'expérience est renouvelée en partant d'une diabololoïde formée à une certaine distance  $h$ , les cadres sont alors progressivement rapprochés. La figure 6.37 suit l'évolution du rayon du film plan adimensionné  $A/R_1$  en fonction de  $\Delta = h/R_1$ , à l'aller (écartement des cadres) et au retour (rapprochement des cadres). La première constatation surprenante provient de l'émergence d'un cycle d'hystérésis : les trajectoires empruntées à l'aller et au retour différent de façon significative.

Prenons pour exemple la courbe d'asymétrie  $\alpha=1.2$  (Fig. 6.37 (a)) : à l'aller, le film de savon reste dans la configuration « caténoïde stable+cadre » jusqu'à une certaine valeur de  $h/R_1 = \Delta_{C \rightarrow D}$ , où le système bifurque alors vers la configuration « diabololoïde stable ». Ainsi, en-dessous de ce ratio caractéristique,  $A = R_1$  car le film plan est situé sur le petit anneau ; au-delà de ce ratio, le film plan se décroche de l'anneau, par conséquent  $A < R_1$  et le rayon du film plan décroît jusqu'à l'effondrement de la diabololoïde. Au retour, la diabololoïde voit le rayon de son film plan augmenter au fur et à mesure du rapprochement des anneaux, jusqu'à un autre ratio caractéristique  $h/R_1 = \Delta_{D \rightarrow C}$ , inférieur au précédent : en ce point, le système transite de façon inverse vers la configuration « caténoïde stable+cadre » et y reste jusqu'en  $\Delta = 0$ .

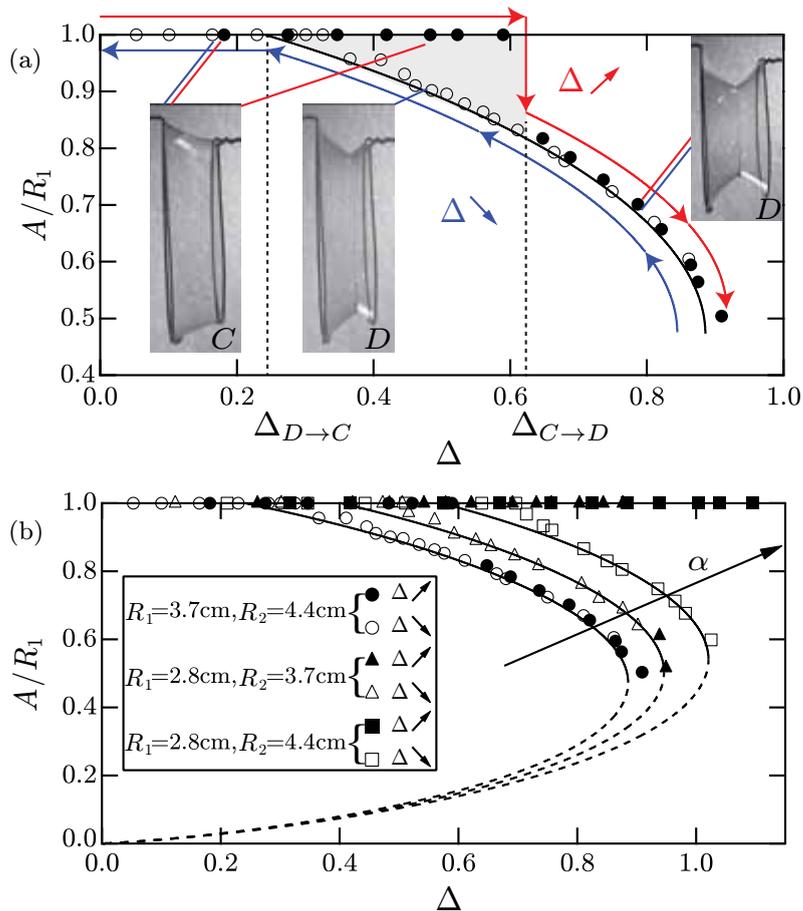


FIGURE 6.37: (a) Évolution expérimentale de  $A/R_1$  en fonction de  $\Delta = h/R_1$  pour une asymétrie  $\alpha = 1.2$ . Les symboles pleins correspondent aux mesures prises au cours de l'écartement des cadres, les symboles creux correspondent aux mesures prises au cours du rapprochement des cadres. Le système emprunte deux chemins différents selon que l'on éloigne ou que l'on rapproche les cadres, induisant l'existence d'un cycle d'hystérésis, grisé sur la figure. (b) Évolution expérimentale de  $A/R_1$  en fonction de  $\Delta = h/R_1$ , pour différents rapports d'aspect entre les anneaux :  $\alpha = 1.2, 1.3, 1.6$ . Chaque série de symboles correspond à une asymétrie donnée.

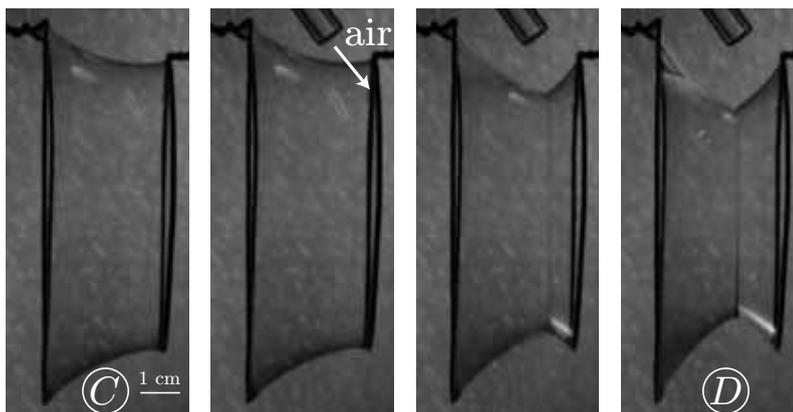


FIGURE 6.38: Illustration expérimentale de la métastabilité de la configuration  $C$ . Le souffle d'air induit une perturbation permettant au système de transiter de la configuration  $C$  à la configuration  $D$ .

Alors que la courbe d'asymétrie  $\alpha = 1.3$  présente les mêmes caractéristiques (Fig. 6.37 (b)), une plus forte asymétrie  $\alpha = 1.6$  fait apparaître quelque chose de nouveau à l'écartement des anneaux : le système s'effondre sans même passer par la configuration « diabololoïde stable ». Au rapprochement, la diabololoïde est alors préparée artificiellement, en venant toucher le film plan présent sur le petit anneau avec une spatule mouillée ou en soufflant dessus (Fig. 6.38). La diabololoïde suit alors au retour une évolution semblable aux deux autres courbes.

**Interprétation** L'existence d'un effet d'hystérèse est étroitement liée aux phénomènes de métastabilité conjecturés précédemment : une fois piégé dans un état donné et en l'absence de perturbations extérieures, le système peut, sous certaines conditions, rester dans cet état malgré l'apparition d'états plus favorables d'un point de vue énergétique. Commençons par décrire le comportement du film de savon au cours du rapprochement des anneaux : le système est initialement dans la configuration « diabololoïde stable », et les mesures réalisées sont en excellent accord avec les courbes théoriques analogues à celles de la figure 6.33, pour un rapport d'aspect donné. Alors que le rayon du film plan tend petit à petit vers le rayon du petit anneau, la diabololoïde stable transite à  $\Delta = (\operatorname{arccosh}(\alpha \cosh C) - C) / \cosh C = \Delta_{D \rightarrow C}$  vers la configuration « caténoïde stable+cadre », comme prédit théoriquement par l'équation 6.79. Il ne peut d'ailleurs en être autrement, puisque la configuration  $D$  est en tout point d'énergie inférieure à la configuration  $C$  lors de leur coexistence (Fig. 6.36). L'expérience justifie par ce biais que les contraintes angulaires sur le bord de Plateau induisent un seuil inférieur d'existence de la diabololoïde. Les légers écarts sont une fois de plus attribués aux incertitudes de mesure, mais également à l'épaisseur finie des cadres.

À l'écartement, la transition inverse de la configuration  $C$  à la configuration  $D$  (ou à l'effondrement pour une forte asymétrie) est nettement plus brusque expérimentalement, et s'opère pour une valeur  $\Delta = \Delta_{C \rightarrow D} > \Delta_{D \rightarrow C}$  dépendante du rapport d'aspect  $\alpha$ . Cela présuppose qu'il existe un chemin réactionnel entre les deux puits énergétiques principaux, faisant apparaître une barrière d'énergie tant

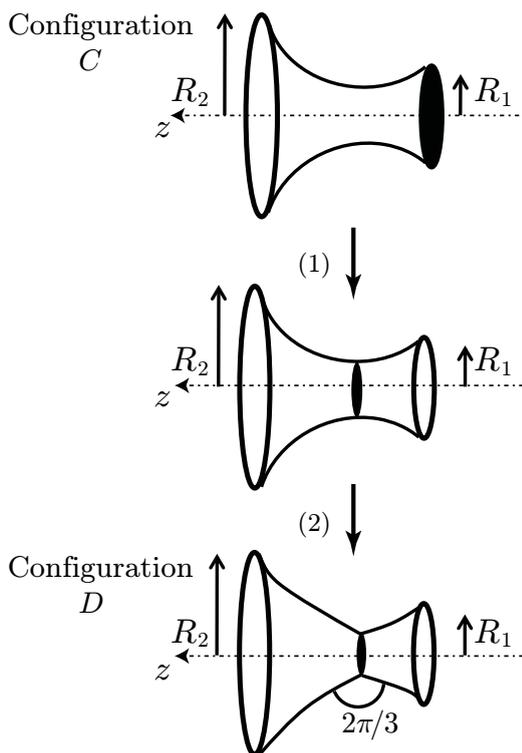


FIGURE 6.39: Schéma explicatif du mécanisme simplifié en deux étapes permettant d'interpréter la transition de la configuration  $C$  à la configuration  $D$ .

que  $\Delta_{D \rightarrow C} < \Delta < \Delta_{C \rightarrow D}$ . Ceci peut se comprendre de façon simple. À la manière d'une cinétique de réaction chimique, décomposons cette transition en deux processus élémentaires (Fig. 6.39).

- (1) Lors du premier processus, imaginons que le film plan coulisse sur l'axe ( $Oz$ ) jusqu'à sa position finale dans la configuration de la diabololoïde. L'hypothèse de travail, assez forte, est que cette première étape s'effectue indépendamment de la caténoïde, le rayon du film plan suit donc l'évolution du profil de la caténoïde asymétrique initiale.
- (2) Lors du second processus, la caténoïde se réadapte suite au déplacement du film plan, conduisant donc à la forme d'équilibre de la diabololoïde.

Une hypothèse sous-jacente de ce mécanisme simplifié est de considérer la première étape comme l'acte élémentaire « limitant » de la transition. De fait, si le film plan voit son aire augmenter au cours du premier processus, alors son énergie augmente, ceci menant à l'existence d'une barrière d'énergie à franchir, puisque l'état final est, quoi qu'il en soit, d'énergie moindre que l'état initial (Fig. 6.36). Selon ce petit modèle, la barrière énergétique disparaît lorsque le film plan n'accroît pas son aire lors de la première étape du mécanisme de transition. Cela se réalise précisément lors de l'inversion de courbure de la caténoïde asymétrique au niveau du petit anneau, soit pour  $\Delta = \operatorname{arccosh} \alpha = \Delta_{C \rightarrow D}$  (Éq. 6.30). Il est d'ailleurs aisé de se convaincre, à partir des expressions théoriques des deux ratios caractéristiques, que l'inégalité  $\Delta_{D \rightarrow C} < \Delta_{C \rightarrow D}$  est toujours vérifiée. Les arguments simples développés ici ont le mérite d'apporter au cycle d'hystérésis une explication physique, ainsi que les distances caractéristiques  $h$  pour lesquelles les transitions se font. Ce scénario explique

également la différence de comportement selon l'asymétrie  $\alpha$  du système.

- Pour  $\alpha < \alpha_c \simeq 1.55$ ,  $\Delta_{C \rightarrow D} < \Delta_c$  : à l'écartement, le film de savon est autorisé à transiter de la configuration  $C$  à la configuration  $D$ , l'hystérésis  $\Delta_{C \rightarrow D}$  à vaincre étant inférieur à la limite d'existence  $\Delta_c$  de la diabololoïde.
- Pour  $\alpha > \alpha_c$ ,  $\Delta_c < \Delta_{C \rightarrow D}$  : dans ce cas, l'hystérésis à l'écartement est supérieur à la limite d'existence de la diabololoïde : le système s'effondre donc de la configuration  $C$  sans passer par la configuration  $D$ .

Ces prédictions théoriques corroborent à nouveau les résultats obtenus expérimentalement (Fig. 6.37 (b)). Comme évoqué précédemment, il est également possible de vaincre l'hystérésis à l'écartement de façon externe en fournissant au système une énergie d'activation suffisante. En soufflant doucement sur la configuration  $C$  à l'aide d'un capillaire (Fig. 6.38), nous observons le film plan se détacher du petit anneau et rejoindre sa position d'équilibre dans la configuration  $D$ <sup>17</sup>.

**Comparaison avec l'expérience** La description théorique fait donc intervenir trois valeurs particulières de  $\Delta$ . Lorsque  $\Delta = \Delta_c$ , la diabololoïde atteint son seuil supérieur d'existence (Fig. 6.34). Lorsque  $\Delta = \Delta_{D \rightarrow C}$ , le système quitte la configuration  $D$  au cours du rapprochement des anneaux, ceci correspondant également au seuil inférieur d'existence de la diabololoïde (Éq. 6.79). Lorsque  $\Delta = \Delta_{C \rightarrow D}$ , le système quitte la configuration  $C$  au cours de l'écartement des anneaux, ceci correspondant également à l'inversion de courbure de la caténoïde asymétrique au niveau du petit anneau (Éq. 6.30). En faisant varier le rapport d'aspect du système, ces seuils caractéristiques sont mesurés de façon systématique et comparés aux prédictions théoriques. Rappelons de nouveau que lorsque  $\alpha > \alpha_c$ , l'inégalité  $\Delta_c < \Delta_{C \rightarrow D}$  impose expérimentalement de créer la diabololoïde artificiellement avec une spatule mouillée, afin de sonder ensuite son seuil supérieur d'existence à l'écartement, tout autant que son seuil inférieur d'existence au rapprochement. Le bon accord constaté permet de valider le modèle conjecturé plus haut, ce qui est remarquable compte tenu de son extrême simplicité.

La détermination de  $\Delta_c$  s'accompagne également de la mesure du rayon du film plan critique  $A_c$  avant l'effondrement de la diabololoïde. La figure 6.41 montre de nouveau que la comparaison est satisfaisante.

**Nappes énergétiques** Bien que l'approche précédente réussisse à rationaliser les différents comportements observés, une zone d'ombre subsiste quant au chemin précis suivi par le film de savon pendant sa transition de la configuration  $C$  à la configuration  $D$ . La décomposition du mécanisme en deux étapes discrètes est en effet une vision idéalisée de la réalité. Une façon de raffiner ce modèle est de considérer à présent, à  $\Delta = h/R_1$  et  $\alpha$  fixés, les deux variables continues :  $A/R_1$  et  $h_1/h$ . Ainsi, l'objectif est maintenant de déterminer l'énergie du système formé des deux portions de caténoïde et du film plan en fonction des deux variables déclarées précédemment. Pour  $A/R_1$  variant de 0 à  $\alpha$  et  $h_1/h$  variant de 0 à 1, l'énergie peut à présent être

---

<sup>17</sup>. La perturbation extérieure d'un état métastable rappelle la mésaventure rencontrée par l'armée de Napoléon au cours de la retraite de Russie au début du XIX<sup>ème</sup> siècle, où ses chevaux furent piégés dans un lac d'eau surfondue. La cristallisation brusque de ce dernier, engendrée par le passage des troupes, emprisonna les chevaux condamnés.

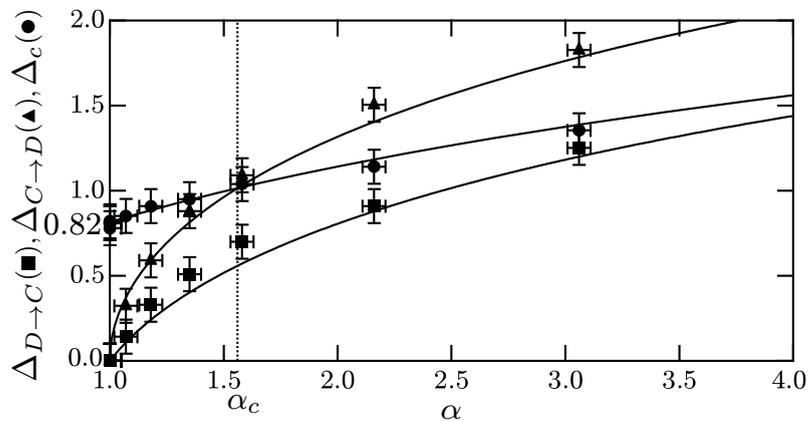


FIGURE 6.40: Variation des quantités caractéristiques  $\Delta_c$  (ronds),  $\Delta_{D \rightarrow C}$  (carrés),  $\Delta_{C \rightarrow D}$  (triangles) en fonction de l'asymétrie  $\alpha = R_2/R_1$  du système.

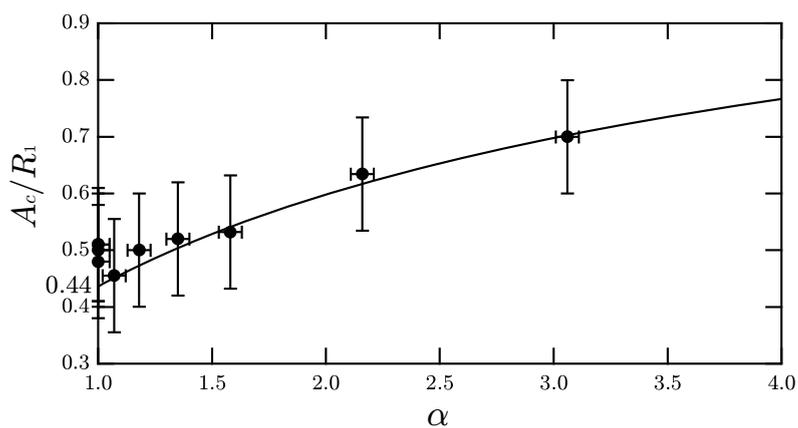


FIGURE 6.41: Rayon adimensionné du film plan critique  $A_c/R_1$  en fonction de  $\alpha$ .

tracée dans un graphe à trois dimensions sous forme de « nappe énergétique ».

**Cas symétrique** Nous identifions immédiatement les deux surfaces principales<sup>18</sup> (Fig. 6.42) : la configuration  $C$  se positionne en  $(h_1/h = 0, A/R_1 = 1)$ , alors que la configuration  $D$  se positionne dans le puits en  $(h_1/h > 0, A/R_1 < 1)$ . Quelle que soit la valeur finie de  $\Delta$ , la diabololoïde stable est, comme attendu, dans un puits énergétique plus profond que la configuration  $C$ . Par ailleurs, aucune barrière d'énergie n'apparaît : ainsi, dès que  $\Delta > 0$ , le système dévale tout naturellement la pente pour rejoindre la configuration  $D$  et la conserver jusqu'à sa limite d'existence. Cette limite d'existence transparait également sur les nappes énergétiques : lorsqu'elle est atteinte, le minimum énergétique associé à la diabololoïde n'en est plus un puisqu'une inflexion apparaît. De même que sur la figure 6.24, ce point d'inflexion est responsable de l'effondrement de la diabololoïde lorsque  $\Delta = \Delta_c$ . Ce comportement est également observé expérimentalement.

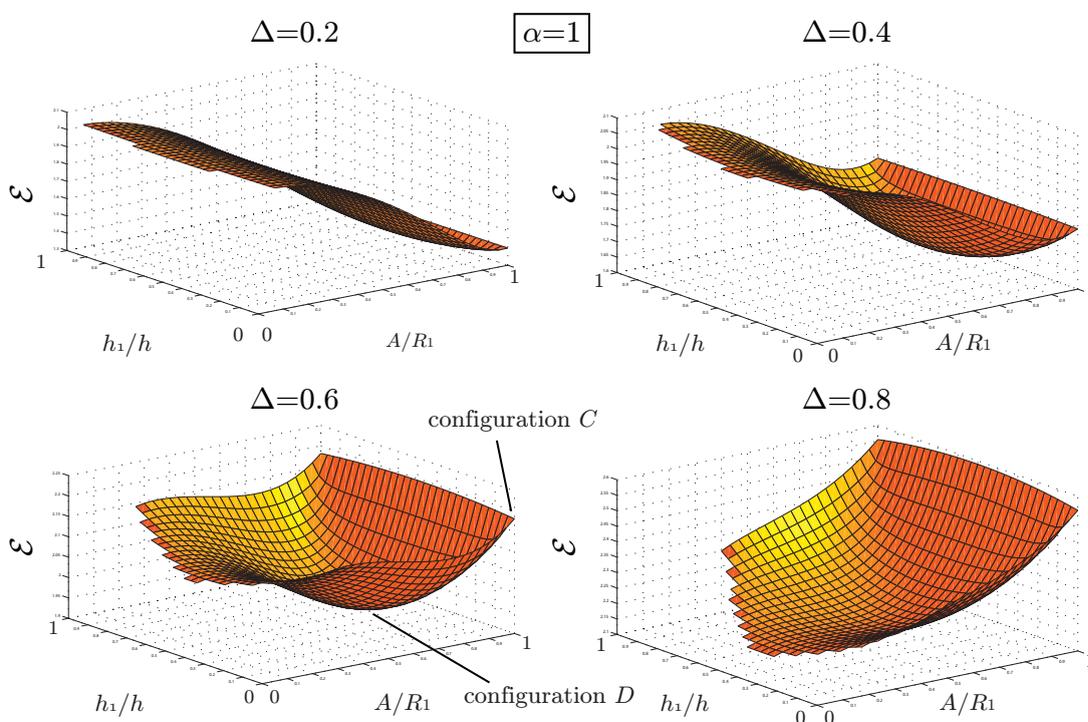


FIGURE 6.42: Nappes énergétiques décrivant l'état du système en fonction des variables  $A/R_1$  et  $h_1/h$ , dans le cas symétrique  $\alpha=1$  pour lequel  $\Delta_{D \rightarrow C} = \Delta_{C \rightarrow D} = 0$ ,  $\Delta_c \simeq 0.82$ .

**Cas asymétrique** Nous remarquons, comme pressenti, que le puits associé à la configuration  $D$  se creuse seulement à partir du seuil inférieur d'existence de la diabololoïde, soit  $\Delta = \Delta_{D \rightarrow C}$  (Fig. 6.43). En revanche, une fois que ce seuil est franchi, aucune barrière énergétique n'apparaît entre les deux configurations, le système doit donc, selon cette approche, transiter vers la diabololoïde stable pour  $\Delta = \Delta_{D \rightarrow C}$ .

<sup>18</sup> Observons d'ailleurs la symétrie plane des nappes par le plan d'équation  $h_1/h = 1/2$ .

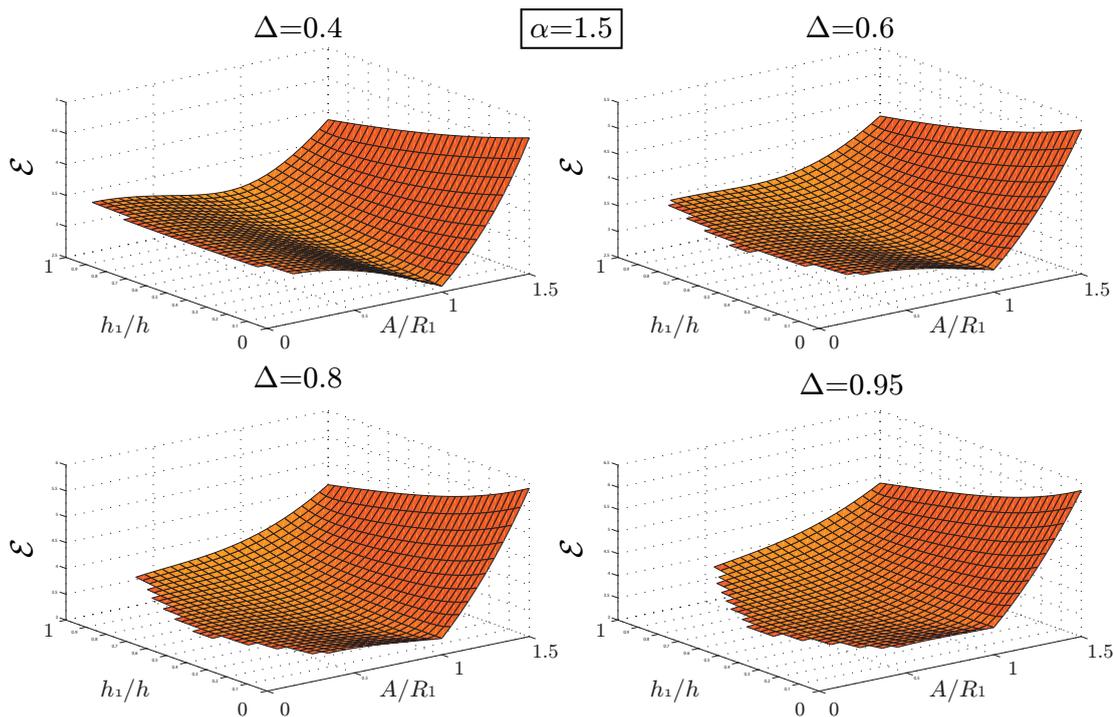


FIGURE 6.43: Nappes énergétiques décrivant l'état du système en fonction des variables  $A/R_1$  et  $h_1/h$ , dans le cas asymétrique  $\alpha=1.5$  pour lequel  $\Delta_{D \rightarrow C} \simeq 0.52$ ,  $\Delta_{C \rightarrow D} \simeq 0.96$ ,  $\Delta_c \simeq 1.00$ .

Ceci est en contradiction avec les expériences et le modèle simplifié en deux étapes. Il semble donc que ce choix de représentation ne soit pas adéquat pour décrire la transition de configuration que subit le film de savon. Une autre façon de le concevoir est de supputer que, sur les nappes énergétiques, certaines zones sont interdites au système, en lui empêchant donc de choisir la pente descendante la plus grande. Il est alors tentant de revenir à l'expérience et de sonder, aux temps courts, le chemin effectivement choisi par le système pendant la transition. Il est hélas difficile en pratique de réaliser cette expérience : malgré toutes les précautions prises quant à l'alignement et à la circularité des cadres, le moindre petit défaut fait que le film plan ne se décolle jamais uniformément, engendrant la perte de l'axisymétrie. Ceci nous conduit d'ailleurs à nous interroger sur le rôle du cadre. Cet aspect, totalement négligé dans l'étude théorique, constitue certainement le motif principal de désaccord entre le cycle d'hystérésis expérimental et les nappes énergétiques : le film plan tendu sur le petit anneau est en réalité soumis à des interactions avec le cadre, ceci expliquant peut-être la présence d'une barrière énergétique à franchir pour se décoller, non prise en compte jusque-là. De façon plus large, quelle est la réelle influence du cadre (épaisseur, état de surface, matériau) en termes d'actions de contact sur le film de savon et sur le cycle d'hystérésis qu'il subit ?

**Influence de l'épaisseur du cadre** Afin d'apporter des éléments de réponse à cette question, nous avons renouvelé l'expérience avec, en guise de cadres, des joints circulaires en caoutchouc : l'épaisseur de ces nouveaux anneaux est environ quatre fois plus grande que l'épaisseur des cadres en fer précédents. La figure 6.44 illustre

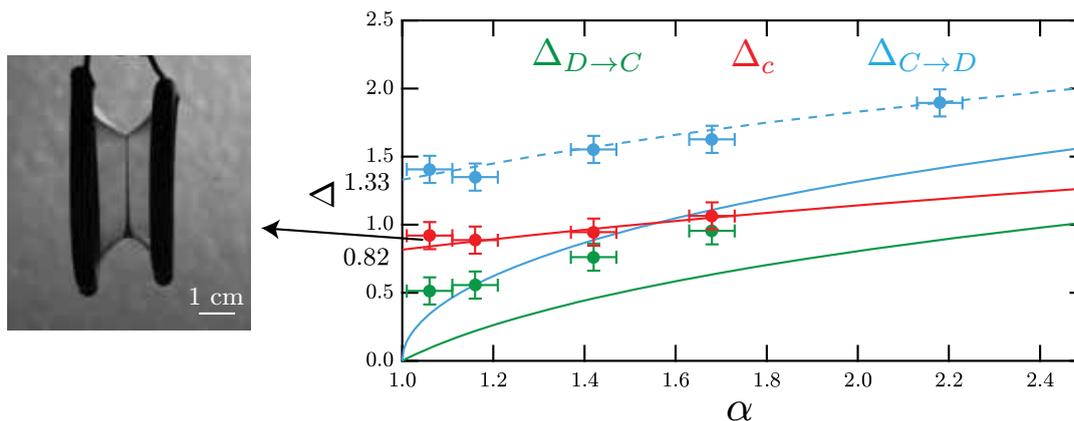


FIGURE 6.44: Variation des quantités caractéristiques  $\Delta_c$  (en rouge),  $\Delta_{D \rightarrow C}$  (en vert),  $\Delta_{C \rightarrow D}$  (en bleu) en fonction de l'asymétrie  $\alpha = R_2/R_1$  du système, pour des cadres épais en caoutchouc. La courbe bleue en pointillés représente le seuil d'existence de la caténoïde asymétrique associée au rapport d'aspect  $\alpha$ .

comme précédemment l'évolution des valeurs caractéristiques  $\Delta$  du cycle d'hystérésis. Nos observations montrent que, bien que les seuils supérieurs d'existence de la diabloïde, en rouge, demeurent en bon accord avec la théorie<sup>19</sup>, les mesures de  $\Delta_{D \rightarrow C}$  et  $\Delta_{C \rightarrow D}$  se décalent de façon nette, et surestiment à présent les tendances prédites. Cette déviation peut se concevoir de façon simple, en supposant tout d'abord le film dans la configuration  $C$ . En choisissant des cadres très épais, il est aisé de se convaincre expérimentalement que le film plan présent sur le petit anneau ne « voit » pas la caténoïde asymétrique, et *vice versa*. De par cette observation, nous pouvons alors prédire que le film va quitter la configuration  $C$  lorsque la caténoïde asymétrique atteint sa limite d'existence. Ainsi,  $\Delta_{C \rightarrow D}$  correspond non plus à l'inversion de courbure de la caténoïde asymétrique, mais à une valeur supérieure correspondant à son seuil d'existence, discuté également précédemment (Fig. 6.14). Ce nouveau critère phénoménologique est en très bon accord avec les mesures faites. En ce qui concerne  $\Delta_{D \rightarrow C}$ , nous pouvons intuire que ce décalage supérieur est une fois de plus dû à l'augmentation de l'épaisseur des anneaux : la hauteur  $h$  correspondante, mesurée entre les milieux des deux anneaux, surestime automatiquement ce seuil au rapprochement des anneaux. En effet, le film plan vient accrocher le petit cadre dès qu'il en touche l'extrémité, et non le milieu, comme convenu dans la mesure de  $h$ . Pour résumer, alors que la transition des films sur cadre fin est correctement modélisée par le mécanisme simplifié en deux étapes, la caténoïde et le film plan de la configuration  $C$  sont physiquement découplés dans la limite des grandes épaisseurs : le critère d'effondrement de cette configuration revient donc au seuil d'existence de la caténoïde asymétrique déjà déterminé précédemment.

### 4.3 La diabloïde rotatoire

Pour aller plus loin dans la compétition entre surfaces minimales, une dernière géométrie sondée expérimentalement se compose de deux anneaux de rayons diffé-

19. Ce fait est également vérifié avec les mesures du rayon de film plan critique.

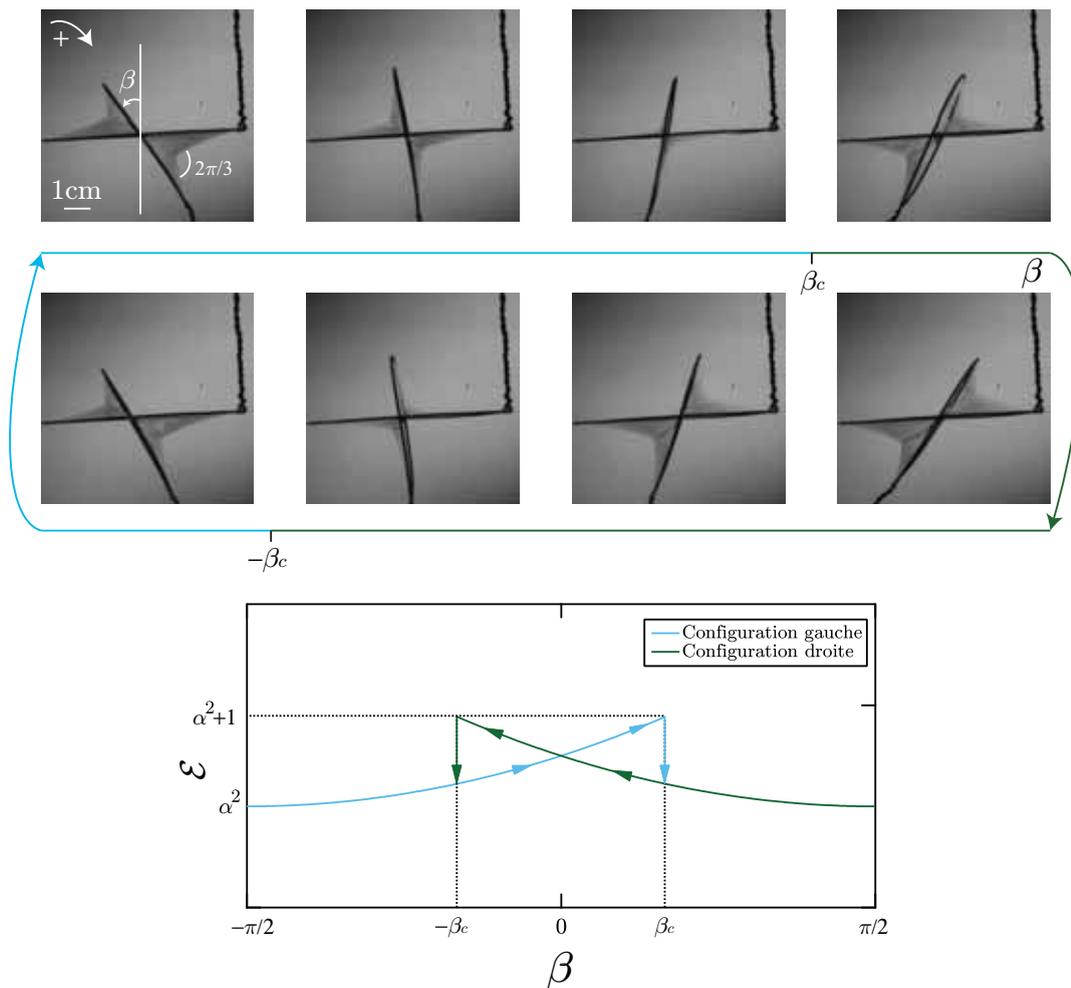


FIGURE 6.45: Illustration expérimentale et allure schématique du cycle d'hystérésis énergétique associé à la transition de configuration gauche/droite. Du fait de la symétrie plane, les courbes associées aux deux configurations sont nécessairement en miroir l'une de l'autre. Lorsque  $\beta = \pm\pi/2$ , les anneaux sont coplanaires, l'énergie de surface est simplement celle d'un disque de rayon  $R_2 = \alpha R_1$ , soit  $\mathcal{E} = \alpha^2$ . Lorsque  $\beta = \pm\beta_c$ , le bord de Plateau se réduit à la droite d'intersection des plans des deux anneaux, l'énergie de surface est simplement celle des deux disques, soit  $\mathcal{E} = \alpha^2 + 1$ .

rents, avec un rapport d'aspect  $\alpha > 1$ , de même centre mais dont les plans font un angle non nul entre eux (Fig. 6.45). La surface minimale engendrée par ce contour s'apparente en fait à une diabololoïde dont le film plan, placé dans le plan intermédiaire à ceux des deux anneaux, voit sa surface varier en fonction de l'angle  $\beta$ .

Cette diabololoïde rotatoire est une variante intéressante à la diabololoïde classique pour plusieurs raisons : d'une part, cette surface ne présente plus de symétrie de révolution, mais une symétrie plane. D'autre part, le paramètre de contrôle n'est plus une distance, mais un angle. Enfin, pour une certaine gamme angulaire, deux surfaces minimales coexistent (gauche/droite), et font encore apparaître de la métastabilité de façon nette. Une nuance importante est tout de même à souligner : dans ce cas, les transitions s'effectuent précisément lorsque l'une des configurations cesse

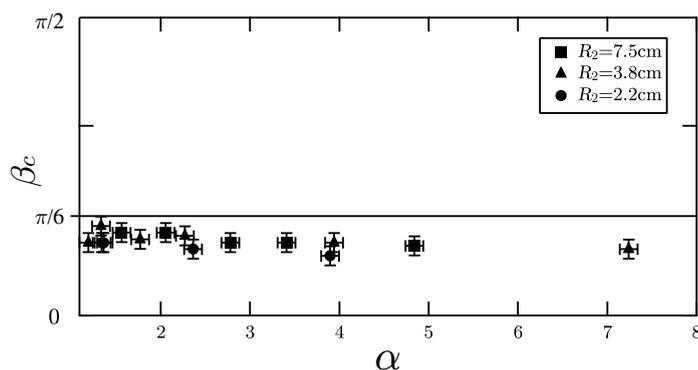


FIGURE 6.46: Angle critique de transition  $\beta_c$  en fonction de l'asymétrie  $\alpha = R_2/R_1$  du système. Chaque série de symboles correspond à une valeur de  $R_2$  fixée.

d'exister, au profit de l'autre [147]. Bien que les calculs se compliquent sérieusement dans cette géométrie, nous pouvons tenter d'esquisser le nouveau cycle d'hystérésis expérimentalement observé (Fig. 6.45) : en prenant comme référence angulaire  $\beta = 0$  lorsque les plans des cadres sont perpendiculaires entre eux, les transitions gauche/droite et droite/gauche s'opèrent, par symétrie, pour deux angles critiques égaux et opposés,  $\beta = \pm\beta_c$ , comme illustré sur la série de clichés expérimentaux (Fig. 6.45).

Cet angle critique de transition est assez simple à deviner : le changement de configuration s'effectue précisément lorsque le film plan, dans son inclinaison initiale, voit sa surface tendre vers zéro, pour ensuite rejoindre son inclinaison finale. Le point critique est donc atteint lorsque le bord de Plateau se réduit théoriquement à la droite d'intersection des plans des deux anneaux. Remarquons que la 3<sup>ème</sup> loi de Plateau s'applique encore sur le pourtour du film plan. En somme, l'angle de  $2\pi/3$  imposé au niveau du bord de Plateau correspond également à l'angle que font les deux anneaux entre eux lorsque le bord de Plateau se referme sur lui-même, soit à la transition. Par des considérations géométriques, ceci conduit immédiatement au critère suivant :  $\beta_c = 2\pi/3 - \pi/2 = \pi/6$ .

La figure 6.46 représente la mesure expérimentale de l'angle critique  $\beta_c$  en fonction du rapport d'aspect  $\alpha$  des anneaux. Nous remarquons un décalage systématique par rapport au critère géométrique présenté précédemment. Les mesures sous-estiment légèrement la prédiction : cela signifie que les transitions s'effectuent systématiquement avant d'atteindre l'angle critique théorique, quel que soit le sens choisi. Ceci peut avoir plusieurs causes : au vu du cycle d'hystérésis schématisé de la figure 6.45, il est envisageable que des perturbations extérieures à l'expérience (induites par exemple par le mouvement de rotation du petit anneau, les vibrations du film, les courants d'air), suffisent à faire bifurquer le système vers la configuration d'arrivée avant la perte d'existence de la configuration de départ. Ne perdons pas de vue que la barrière d'énergie séparant l'état métastable du minimum énergétique global peut parfois être franchie par l'application d'une infime perturbation externe (Fig. 6.38). Une deuxième hypothèse concerne encore l'épaisseur finie des cadres : le graphe expérimental démontre que plus  $\alpha$  est grand, plus les valeurs semblent s'éloigner de la

valeur théorique. Or, les grands rapports d'aspect correspondent également à l'utilisation de cadres assez petits, et dont les effets d'épaisseur semblent rentrer en jeu. Par ailleurs, il n'est pas à exclure que des effets de fraction volumique liquide finie, comme évoqué plus haut [127], altèrent la répartition des angles autour du bord de Plateau, et induisent donc un angle critique de transition légèrement différent de la valeur prédite par une approche purement géométrique.

De façon anecdotique, notons également la présence d'un second phénomène d'hystérésis lorsque les anneaux sont quasiment coplanaires ( $\beta \simeq \pm\pi/2$ ). Ce phénomène, lié au décollement du film plan du petit anneau, est similaire à celui observé dans le cas de la diabolioïde asymétrique, et se situant au cœur du cycle d'hystérésis modélisé dans la partie précédente. Dans le cas présent, cette hystérèse intervient pour des angles assez éloignés de la zone de transition d'intérêt, ce qui permet de découpler les deux types de transition intervenant dans ce problème :  $C/D$  et gauche/droite.

## 5 Analogies de comportement au voisinage du seuil d'existence

Dans cette partie, nous proposons enfin de discuter de certaines similarités de comportement entre les différentes surfaces minimales décrites dans ce chapitre. Comme nous l'avons vu, le système d'équations (Éq. 6.83, Éq. 6.84) fournit le seuil d'existence de chacune de ces surfaces minimales, selon les valeurs prises pour  $C$  et  $\alpha$ . Analysons maintenant de plus près leur comportement proche de ce seuil, dans le but de faire le lien avec la physique des instabilités et des transitions de phase. Au point critique, les transitions de phase du second ordre sont souvent caractérisées par des exposants critiques universels dépendant de la nature de la transition subie (la transition ferromagnétique/paramagnétique en est un exemple). Chaque seuil est ici dicté par la donnée des deux paramètres  $X_c$  et  $\Delta_c$  vérifiant, d'après les parties précédentes, une double condition de la forme :  $f(X_c, \Delta_c) = 0, \partial_X f(X_c, \Delta_c) = 0$ . Au voisinage du seuil, nous pouvons écrire  $\Delta = \Delta_c + \delta\Delta$  (resp.  $X = X_c + \delta X$ ) avec un déplacement infinitésimal  $\delta\Delta \ll \Delta_c$  (resp.  $\delta X \ll X_c$ ). Écrivons alors pour la fonction  $f$  un développement de Taylor à l'ordre 2 :

$$f(X, \Delta) \simeq f(X_c, \Delta_c) + \partial_X f \delta X + \partial_\Delta f \delta\Delta + \partial_{XX} f \frac{(\delta X)^2}{2} + \partial_{X\Delta} f \delta\Delta \delta X + \partial_{\Delta\Delta} f \frac{(\delta\Delta)^2}{2}, \quad (6.85)$$

où toutes les dérivées sont exprimées au seuil. Les conditions aux limites imposent  $f(X, \Delta) = 0$ , et le seuil est défini par  $f(X_c, \Delta_c) = 0, \partial_X f(X_c, \Delta_c) = 0$ . De fait, le développement de Taylor se réécrit simplement comme :

$$\partial_\Delta f \delta\Delta + \partial_{XX} f \frac{(\delta X)^2}{2} + \partial_{X\Delta} f \delta\Delta \delta X + \partial_{\Delta\Delta} f \frac{(\delta\Delta)^2}{2} \simeq 0. \quad (6.86)$$

Discutons l'ordre de grandeur des différents termes afin de simplifier cette dernière relation. Les déplacements infinitésimaux  $\delta\Delta$  et  $\delta X$  sont petits devant l'unité, mais rien ne nous permet à ce stade de comparer leur ordre de grandeur. À gauche de l'égalité, nous pouvons toutefois remarquer que le quatrième terme, en  $(\delta\Delta)^2$ , est nécessairement petit devant le premier terme, seulement en  $\delta\Delta$ . De la même façon, le

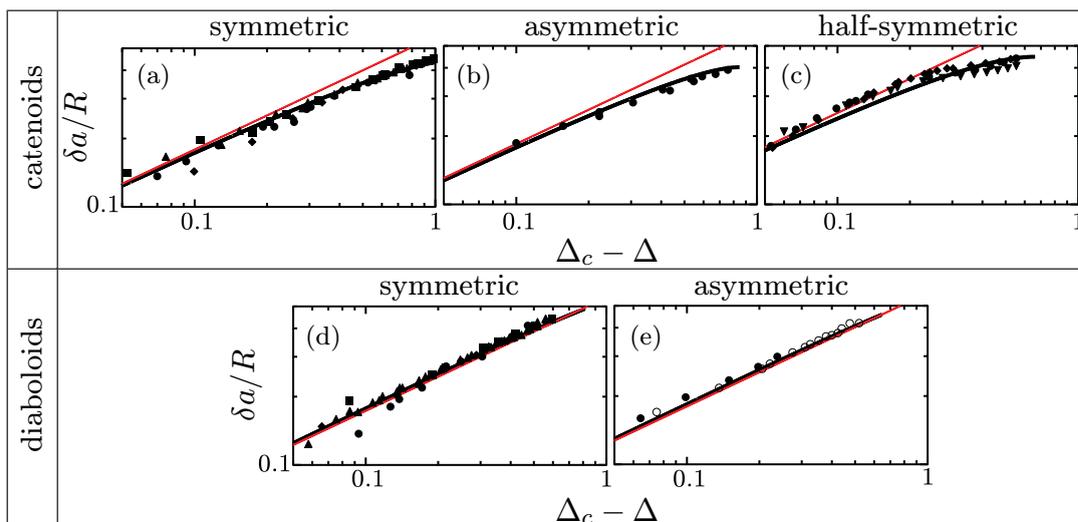


FIGURE 6.47: Évolution des quantités  $\delta a/R$  et  $-\delta\Delta$  au voisinage du seuil pour chaque surface minimale étudiée dans ce chapitre. Les jeux de données associés à la caténoïde asymétrique et à la diaboloidé asymétrique ont été mesurés pour un rapport d'aspect  $\alpha=1.2$  entre les anneaux. Les courbes noires et rouges correspondent respectivement à la résolution numérique des conditions aux limites et à l'approximation obtenue par le développement en série de Taylor (Éq. 6.88). Figure tirée de [146].

troisième terme, en  $\delta\Delta\delta X$ , est nécessairement petit devant ce même premier terme. Les deux termes restants sont donc forcément du même ordre de grandeur :

$$\delta X \simeq \pm \sqrt{\left| \frac{2\partial_{\Delta}f}{\partial_{XX}f} \right|} \sqrt{-\delta\Delta}. \quad (6.87)$$

Puisque  $X = R/a$ , nous avons, par différentiation,  $\delta X = -R\delta a/a_c^2$ . Finalement, le résultat final peut s'écrire :

$$\frac{\delta a}{R} = \frac{a - a_c}{R} \simeq \pm J \sqrt{\Delta_c - \Delta}, \quad (6.88)$$

avec le préfacteur  $J$  s'exprimant à l'aide du système d'équations (Éq. 6.83, Éq. 6.84) :

$$J = \sqrt{\left| \frac{2\partial_{\Delta}f}{X_c^4 \partial_{XX}f} \right|} = \sqrt{2} [X_c^4 ((X_c^2 - 1)^{-\frac{3}{2}} + \alpha^3 (\alpha^2 X_c^2 - 1)^{-\frac{3}{2}})]^{-\frac{1}{2}}. \quad (6.89)$$

Le symbole  $\pm$  provenant du précédent passage à la racine carrée fournit finalement les deux branches, stable (+) et instable (-), des diagrammes  $(\Delta, a/R)$  présentés plus haut (par exemple sur la figure 6.7) : le comportement hyperbolique, induisant la présence de tangentes verticales dans ces diagrammes, justifie d'ailleurs le caractère abrupt des courbes au voisinage du seuil d'existence. L'exposant critique 1/2 apporté par ce développement théorique rappelle celui obtenu dans le cas d'une bifurcation fourche classique [148, 149] ; la machine de Welandér en est un exemple illustratif en

mécanique du point. La non-linéarité entre les petites quantités  $\delta a/R$  et  $\delta\Delta$  provient de la nature de la condition imposée au seuil : nous remarquons en effet que la présence d'une dérivée partielle  $\partial_X f$  dans le système ( $f(X_c, \Delta_c) = 0, \partial_X f(X_c, \Delta_c) = 0$ ) a pour conséquence de donner des rôles différents aux quantités  $X$  et  $\Delta$ , elles ne sont donc pas interchangeables du fait de cette brisure de symétrie. Ainsi, l'exposant critique  $1/2$  est identique pour toutes les surfaces minimales décrites dans ce chapitre, le préfacteur  $J$  dépendant néanmoins de la surface minimale considérée *via* la connaissance de  $X_c$  et  $\alpha$ . La figure 6.47 reprend les résultats expérimentaux déjà présentés précédemment en représentation logarithmique, mettant en exergue le comportement en loi de puissance  $1/2$  au voisinage du seuil.

## 6 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre, nous avons étudié l'existence et la stabilité de quelques surfaces minimales. Malgré la simplicité apparente de leur géométrie, les expériences nous ont permis d'observer des comportements analogues à des transitions de phase en thermodynamique, et de constater d'intéressants phénomènes de métastabilité, présents par ailleurs dans différents domaines de la physique. Ce type de phénomène avait d'ailleurs déjà été observé dans d'autres géométries, aussi bien d'un point de vue statique [147] que dynamique [150]. L'intérêt de notre étude réside cependant dans le fait que l'axisymétrie (en laissant de côté la diabololoïde rotatoire) permet de mener les calculs de façon exacte, complète et relativement simple. Ces calculs ont pour le reste prouvé une universalité de comportement des différentes surfaces minimales étudiées, leurs seuils d'existence pouvant être déduits d'un seul et même système d'équations (Éq. 6.83, Éq. 6.84). Un autre point remarquable à souligner est le fait que les résultats expérimentaux, en très bon accord avec les prédictions théoriques tout au long de ce chapitre, sont indépendants de l'épaisseur, et donc de l'âge du film de savon formé : le drainage du film pendant la durée de l'expérience (de l'ordre de la minute) ne semble donc avoir aucune influence sur les résultats présentés ici.

Une perspective de cette étude réside dans la modification des contours bordant le film. Par exemple, quelle est l'influence de la forme des cadres (triangulaire, carrée...) sur les résultats présentés dans ce chapitre ? La brisure de l'axisymétrie entraîne-t-elle juste un facteur de forme, ou bien change-t-elle radicalement le comportement du système ? Par ailleurs, toutes les surfaces minimales décrites jusqu'alors sont des surfaces ouvertes, ceci justifiant une courbure moyenne nulle en tout point. Qu'en est-il des surfaces minimales fermées, vérifiant une courbure moyenne constante et non nulle ? Les nodoïdes et les onduloïdes, découvertes par Delaunay au XIX<sup>ème</sup> siècle, en sont de beaux exemples. L'analyse de stabilité d'un film de savon cylindrique a déjà fait l'objet de travaux il y a une dizaine d'années [151], et permet de retrouver le critère de stabilité classique de type Rayleigh-Plateau, portant sur le rapport d'aspect du cylindre. Une variante, en écho à la demi-caténoïde symétrique, serait une nouvelle fois de modifier le contour en remplaçant l'un des anneaux porteurs du cylindre par un bain liquide, et étudier l'influence de ce changement de conditions aux limites sur la stabilité du film formé (Fig. 6.48).

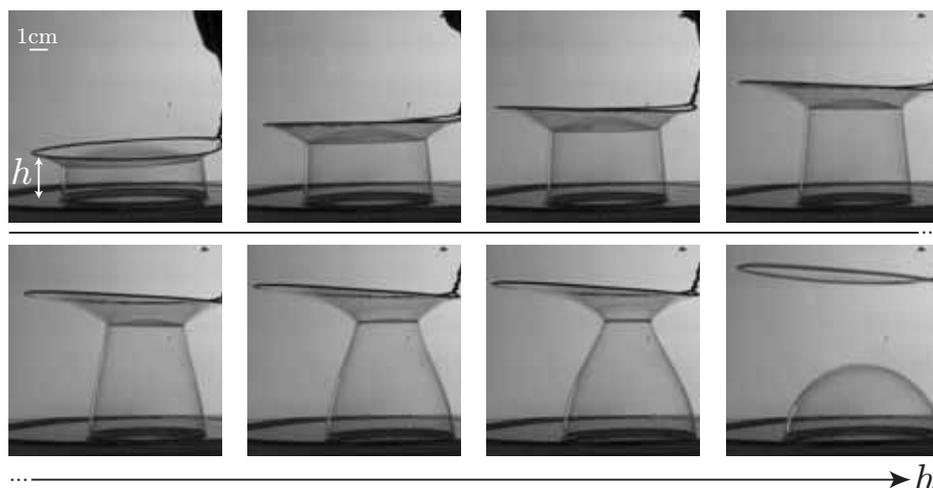


FIGURE 6.48: Surface fermée s'appuyant sur un anneau circulaire et un bain liquide. Notons encore le raccordement perpendiculaire du film à la surface libre du bain. Au-delà d'une certaine hauteur critique, cette dernière s'effondre en donnant naissance à une bulle interfaciale et un film plan sur l'anneau.

Une façon de rendre le problème plus riche est d'introduire, en plus des contraintes superficielles, des forces électromagnétiques. Dans la littérature, des travaux récents montrent que l'application d'un champ électrique intense conduit à modifier la courbure locale d'une caténoïde [152]. Dans le cas de la diabololoïde, cette perspective pourrait permettre de décaler les bornes caractéristiques du cycle d'hystérésis et de sélectionner ainsi, de façon active, la configuration adoptée par le film de savon.

La description des surfaces minimales investiguées dans ce chapitre est purement quasi-statique. Comme évoqué au cours de l'étude de la demi-caténoïde symétrique, l'effondrement du film au-delà du seuil d'existence nécessite d'adopter à présent une approche dynamique afin de sonder, aux temps courts, les phénomènes physiques qui régissent le pincement de ce film. La dynamique de pincement d'une caténoïde étant aujourd'hui bien connue (pour des films de savon [153, 154] ou plus originalement pour des films smectiques [155]), le cas original d'une demi-caténoïde symétrique est en revanche inexploré, et s'avère intéressant du fait de la présence du bain liquide surmonté par la demi-caténoïde. Ce travail fait l'objet du chapitre suivant.

La publication associée à ce travail [146] est reportée en fin de manuscrit (Publication D).



## Chapitre 7

# Étude dynamique d'une demi-caténoïde symétrique en montée

Dans le chapitre précédent, nous avons décrit l'existence et la stabilité de la demi-caténoïde symétrique, observée expérimentalement en émergeant de façon quasi-statique un anneau circulaire (de rayon  $R=0.2-40$  cm) hors d'un bain liquide. Au-delà d'une hauteur critique séparant l'anneau du bain, cette demi-caténoïde s'effondre et donne naissance à un film plan sur le cadre et éventuellement une bulle interfaciale, c'est-à-dire une bulle en contact avec l'interface bain/air. Ce chapitre décrit et tente de modéliser les différentes observations expérimentales portant sur le temps de pincement du film, la taille de la bulle interfaciale formée, ainsi que les oscillations amorties et le drainage du film plan formé sur le cadre après pincement. Il est également possible d'imposer au cadre une vitesse ascendante de sortie du bain (Fig. 7.1), ceci conférant un degré de liberté supplémentaire à cette expérience. Nous allons de surcroît faire varier la viscosité du liquide en effectuant les mêmes expériences avec du glycérol et des mélanges d'huiles siliconées.

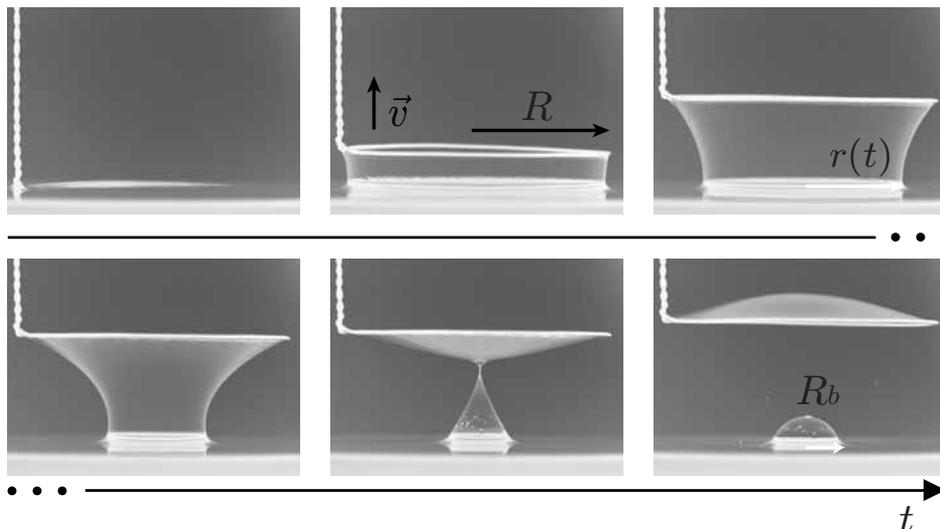


FIGURE 7.1: Série de photos expérimentales prises au cours de la remontée d'un anneau circulaire ( $R = 3.6$  cm) d'une solution d'eau savonneuse, à la vitesse d'ascension  $v = 2$  cm.s<sup>-1</sup>.

## 1 Montage expérimental

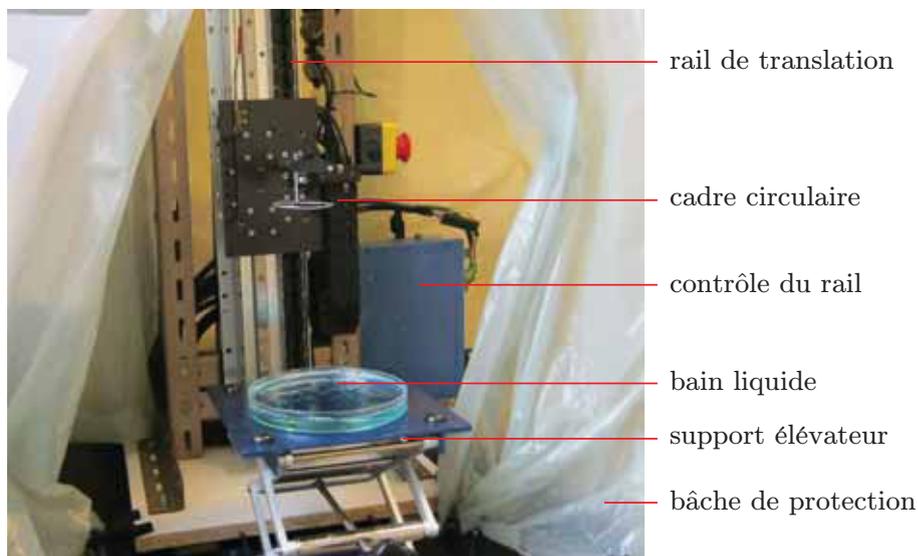


FIGURE 7.2: Photographie du montage expérimental utilisé.

Afin de contrôler la vitesse  $v$  du cadre dans une gamme 0.1–1000 mm.s<sup>-1</sup>, nous utilisons un rail de translation (MTC350P, Aerotech ; voir Fig. 7.2) composé d'une chaîne d'aimants et relié à un capteur de mouvement (Soloist HPe, Aerotech). Le rail est contrôlé avec le logiciel LabVIEW, l'interface ayant été réalisée avec l'aide d'Éric Gicquel, ingénieur au laboratoire. Cette machine offre de larges possibilités de mouvements ou de combinaisons de mouvements avec une grande précision sur ses

paramètres : vitesse, longueur du déplacement, rampe d'accélération initiale, temps de pause... Dans toutes les expériences, nous imposons que la vitesse du mouvement uniforme est atteinte au bout d'un millimètre de course, indépendamment de la vitesse choisie, de la taille du cadre et de la viscosité du fluide. Cette longueur étant inférieure à la profondeur initiale du cadre dans la solution (de l'ordre de 2 mm), nous pouvons négliger l'effet de l'accélération initiale du mouvement. Dans ce chapitre, nous considérerons uniquement le cas d'un mouvement ascendant uniforme. Ce moteur de translation sera utilisé pour effectuer un mouvement descendant uniforme dans le chapitre suivant. Les cadres sont identiques à ceux utilisés dans le chapitre précédent.

## 2 Effondrement quasi-statique : temps de pincement

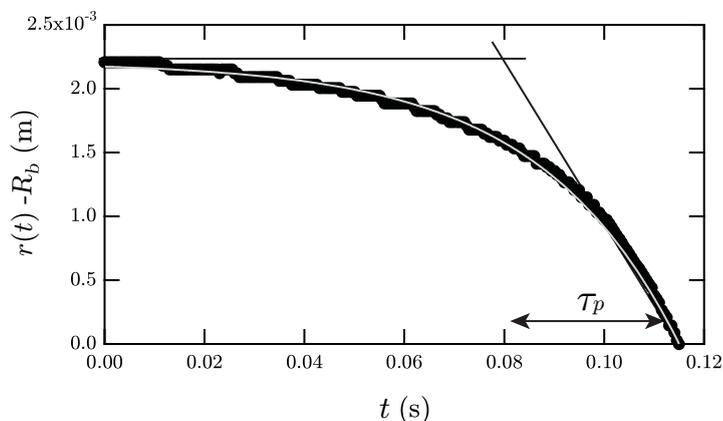


FIGURE 7.3: Allure typique de la décroissance de  $r(t)$  obtenue avec la solution savonneuse décrite dans ce paragraphe et un cadre de rayon  $R = 3$  mm. L'ajustement par l'équation 7.1 donne  $\tau_p \simeq 30$  ms.

Considérons tout d'abord le régime quasi-statique pour lequel  $v=0$ , et mesurons le temps d'effondrement de la demi-caténoïde symétrique, préparée puis déplacée juste au seuil de son existence, en fonction de  $R$ . Sans rentrer dans le détail de la dynamique de pincement, il est possible d'estimer une durée caractéristique<sup>1</sup>  $\tau_p$  de ce processus en mesurant la diminution du rayon du film au niveau du bain  $r(t)$ . Ce dernier passe de la valeur critique  $a_c$ , atteinte en  $t=0$ , à  $R_b$ , le rayon de la bulle interfaciale formée, atteint en  $t=t_f$  (avec  $R_b=0$  si aucune bulle ne se forme). En effet, dans le cas où une bulle interfaciale est formée, l'expérience montre que la valeur de  $r(t)$  mesurée au pincement est très proche du rayon  $R_b$  de cette bulle. De façon simple,  $r(t)$  est expérimentalement ajusté par une loi exponentielle de la forme :

$$\frac{r(t) - R_b}{a_c - R_b} = 1 - \exp\left(-\frac{t - t_f}{\tau_p}\right), \quad (7.1)$$

de laquelle nous pouvons extraire un temps caractéristique  $\tau_p$  pour pincer le film (Fig. 7.3). Nous développons dans la suite les résultats obtenus dans le cas d'une

1. Cette méthode s'inspire d'autres travaux issus de la littérature [156].

solution savonneuse, constituée d'eau et d'un produit vaisselle commercial (Fairy) dans les proportions volumiques respectives 98%/2%, et dont la viscosité  $\eta_l$  vaut  $10^{-3}$  Pa.s. Puis nous présentons les résultats obtenus avec une huile silicone de PDMS, de viscosité 6.4 Pa.s. La forte différence de viscosité entre ces deux solutions nous conduit à utiliser dans la suite les adjectifs *inviscide* et *visqueux*, afin de mieux pouvoir comparer leurs résultats. Cette distinction se retraduit à l'aide du nombre de Reynolds  $\mathcal{R}e = \rho_l v R / \eta_l$  défini pour le liquide, avec  $v \sim R / \tau_p$ . Les expériences sont réalisées dans les gammes  $\mathcal{R}e \simeq 10^2 - 10^5$  pour le cas inviscide, et  $\mathcal{R}e \simeq 10^{-4} - 10^{-1}$  pour le cas visqueux.

## 2.1 Cas inviscide

### 2.1.1 Résultats expérimentaux

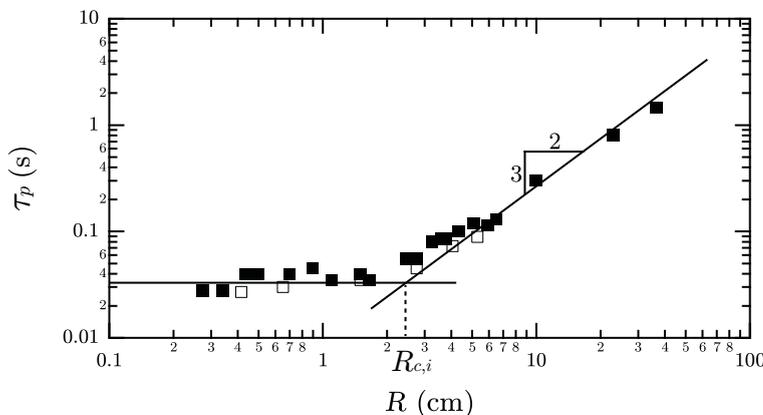


FIGURE 7.4: Évolution de  $\tau_p$  en fonction de  $R$ . Les symboles fermés correspondent à la solution savonneuse décrite précédemment. Les symboles ouverts correspondent à une solution de SDS, de concentration  $c = 15 \text{ g.L}^{-1}$  et de viscosité  $\eta_l = 10^{-3}$  Pa.s. Les droites servent de guide pour les yeux afin de mieux distinguer les deux régimes identifiés expérimentalement.

La figure 7.4 représente l'évolution du temps caractéristique de pincement  $\tau_p$  en fonction du rayon  $R$  du cadre utilisé, ces mesures ayant été effectuées avec la solution d'eau savonneuse. Certaines expériences ont également été réalisées avec un mélange eau/SDS, celles-ci donnent des résultats équivalents à la solution savonneuse. Le graphe présenté fait apparaître deux comportements distincts en fonction de la taille du cadre :

- pour  $R \leq R_{c,i} \simeq 2 \text{ cm}$ ,  $\tau_p$  ne dépend pas de  $R$  et vaut typiquement 30 ms,
- pour  $R \geq R_{c,i}$ ,  $\tau_p$  croît rapidement avec  $R$ . La tendance en loi de puissance, de pente 3/2, semble assez bien décrire cette croissance.

L'existence de deux régimes est la signature de deux mécanismes de pincement différents que nous essayons à présent d'interpréter.

### 2.1.2 Grands cadres : $R \geq R_{c,i}$

Nous allons tenter de décrire les résultats expérimentaux (Fig. 7.4) par une analyse dimensionnelle, en nous inspirant d'arguments utilisés par ailleurs dans le cas

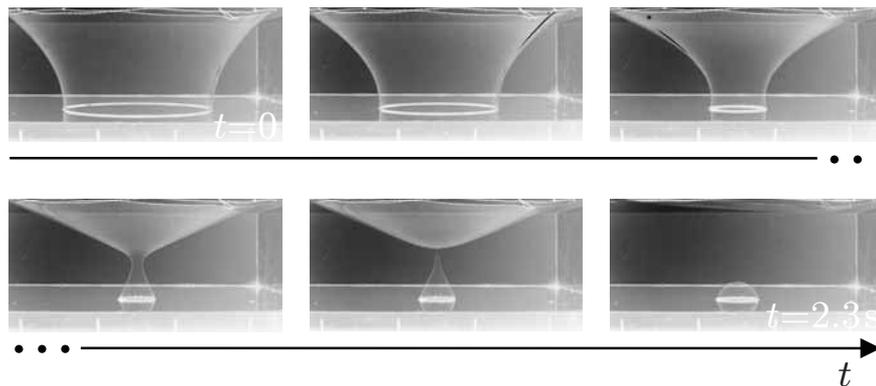


FIGURE 7.5: Effondrement quasi-statique d'une demi-caténoïde symétrique inviscide, pour un cadre de rayon  $R = 23 \text{ cm} > R_{c,i}$ .

d'une caténoïde symétrique [139, 153, 154]. Comme évoqué dans le chapitre précédent, le pincement de la demi-caténoïde symétrique, suivi de la formation d'un film plan, s'accompagne d'une diminution de surface, et donc d'énergie de surface. Comme  $R$  est la taille fixant les seuils d'existence de la demi-caténoïde,  $a_c \sim R$  et  $h_c \sim R$ , la perte d'énergie élastique varie comme  $\gamma R^2$ . Cette énergie est convertie sous forme cinétique au film de savon, ainsi qu'au volume d'air borné par les parois du film, ceci contribuant à en chasser une partie vers le haut, du fait de la présence du bain liquide (Fig. 7.5). En invoquant la même raison que précédemment, et en notant  $e$  l'épaisseur du film supposée homogène et constante<sup>2</sup>, les volumes de liquide et d'air varient respectivement comme  $eR^2$  et  $R^3$ . La vitesse de ce processus peut dimensionnellement s'écrire  $R/\tau_p$ . De fait, le bilan énergétique se met sous la forme :

$$\gamma R^2 \sim (\rho_l e R^2 + \rho_a R^3) \left( \frac{R}{\tau_p} \right)^2, \quad (7.2)$$

avec  $\gamma$  la tension de surface liquide/air,  $\rho_l$  et  $\rho_a$  désignant respectivement les masses volumiques du liquide et de l'air. Les inerties de l'air et du liquide sont comparables lorsque  $R \sim e\rho_l/\rho_a$ . Pour des films d'épaisseur typique<sup>3</sup>  $e=1-10 \text{ }\mu\text{m}$  et  $R > 2 \text{ cm}$ , le terme inertiel de l'air l'emporte systématiquement sur celui du liquide. De fait, en négligeant l'inertie du liquide dans ce bilan,  $\tau_p$  s'exprime finalement comme :

$$\tau_p \sim \sqrt{\frac{\rho_a R^3}{\gamma}}. \quad (7.3)$$

Ce temps inertio-capillaire est caractéristique des systèmes constitués de films de savon et correspond typiquement au temps de pincement d'une caténoïde [139, 153, 154]. Cette échelle de temps décrit également la période propre d'oscillation d'une bulle dans l'air, apparaissant comme l'analogue d'un oscillateur harmonique

2. En l'absence de drainage, notons que l'épaisseur varie probablement au cours du temps puisque la surface du film varie (voir Fig. 7.5).

3. Nous verrons plus loin que cet ordre de grandeur est cohérent avec les mesures d'épaisseur obtenues par interférométrie.

de masse typique  $\rho_a R^3$  et de constante de raideur  $\gamma$ . Nous remarquons que cette prédiction est en assez bon accord avec les résultats expérimentaux présentés plus haut, tant au niveau de la pente que du préfacteur : alors que la tendance tracée sur la figure 7.4 a pour équation  $\tau_p \simeq 8.5 \cdot 10^{-3} R^{\frac{3}{2}}$ , l'équation 7.8 prédit  $\tau_p \sim 6.8 \cdot 10^{-3} R^{\frac{3}{2}}$  pour la solution d'eau savonneuse ( $\gamma = 26 \text{ mN.m}^{-1}$ ),  $\tau_p \sim 5.9 \cdot 10^{-3} R^{\frac{3}{2}}$  pour la solution de SDS ( $\gamma = 35 \text{ mN.m}^{-1}$ ). Les légers écarts constatés proviennent sans doute de la démarche simpliste adoptée, mais également de l'estimation expérimentale de  $\tau_p$ , tiré d'un ajustement par une loi *ad hoc*, proposée sans justification théorique particulière.

### 2.1.3 Petits cadres : $R \leq R_{c,i}$

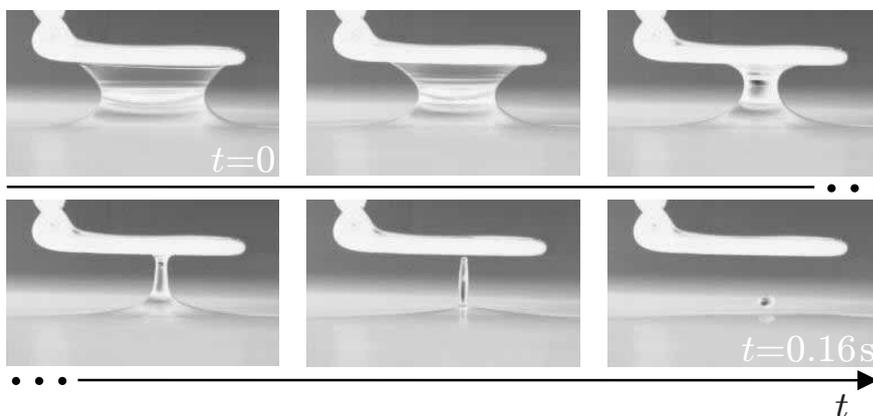


FIGURE 7.6: Effondrement quasi-statique d'une demi-caténoïde symétrique inviscide, pour un cadre de rayon  $R = 3.5 \text{ mm} < R_{c,i}$ .

Le plateau observé pour les petits cadres sur la figure 7.4 s'explique par l'intervention d'une seconde taille caractéristique dans ce problème, à savoir celle du ménisque reliant le film de savon au bain liquide (Fig. 7.6). Cette échelle de longueur est typiquement donnée par la longueur capillaire  $\kappa^{-1} = \sqrt{\gamma/\rho_l g}$ , d'ordre millimétrique. À ce titre, la figure montre que lors du pincement, l'énergie cinétique est en partie convertie au liquide présent dans le ménisque, ceci est particulièrement net sur la 3<sup>ème</sup> image de la séquence. Son volume s'exprime donc comme  $\kappa^{-3}$ , et le bilan énergétique peut se mettre sous la forme :

$$\gamma R^2 \sim \rho_l \kappa^{-3} \left( \frac{R}{\tau_p} \right)^2, \quad (7.4)$$

$$\tau_p \sim \sqrt{\frac{\rho_l \kappa^{-3}}{\gamma}} \sim \left( \frac{\gamma}{\rho_l g^3} \right)^{\frac{1}{4}}. \quad (7.5)$$

Conformément aux résultats expérimentaux, ce temps caractéristique ne dépend plus de  $R$ . Son ordre de grandeur,  $\tau_p \sim 13 \text{ ms}$ , est également en assez bon accord avec l'expérience, compte tenu de la non prise en compte de facteurs numériques sans dimension dans l'approche développée. Ce second régime, inobservé dans le cas d'une caténoïde symétrique, est propre à la présence d'un réservoir liquide dans notre système.

### 2.1.4 Transition entre les deux régimes

Selon ce qui précède, ces deux régimes se croisent lorsque  $\rho_a R_{c,i}^3 \sim \rho_l \kappa^{-3}$ . La transition se produit donc pour une taille critique  $R_{c,i}$  définie par :

$$R_{c,i} \sim \left( \frac{\rho_l}{\rho_a} \right)^{\frac{1}{3}} \kappa^{-1}. \quad (7.6)$$

Cette taille de coupure est de l'ordre de  $10\kappa^{-1} \sim 1.6$  cm. De nouveau, l'ordre de grandeur calculé corrobore la transition observée expérimentalement (Fig. 7.4). Il est intéressant de remarquer la présence inhabituelle du terme  $\rho_l/\rho_a$  dans cette longueur caractéristique. Le premier raisonnement auquel on pourrait penser consiste à supposer que  $R_{c,i} \sim \kappa^{-1}$ , puisque c'est la longueur naturelle en-dessous de laquelle les ménisques seraient susceptibles de jouer un rôle non négligeable. Au vu des expériences, il n'en est finalement rien, l'analyse énergétique confirmant le fait qu'il faille considérer, selon les cas, l'inertie de l'air ou du liquide, d'où l'intervention des deux masses volumiques dans cette taille de coupure.

## 2.2 Cas visqueux

### 2.2.1 Résultats expérimentaux

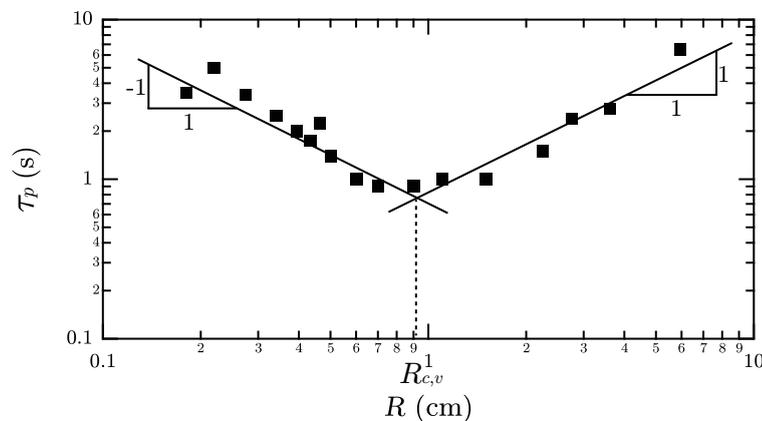


FIGURE 7.7: Évolution de  $\tau_p$  en fonction de  $R$ . La solution utilisée est une huile silicone, de viscosité égale à 6.4 Pa.s. Les droites servent de guide pour les yeux afin de mieux distinguer les deux régimes identifiés expérimentalement.

Procédons de la même façon avec une huile siliconée, dont la viscosité est 6400 fois plus grande que celle de l'eau à température ambiante. La possibilité de créer des demi-caténoïdes symétriques visqueuses à l'équilibre est non triviale et vaut la peine d'être soulignée ici : bien que les interfaces soient nues en surfactants, la grande viscosité ralentit considérablement le drainage du film, lui conférant ainsi une certaine stabilité. La tension de surface liquide/air, de l'ordre de  $20 \text{ mN.m}^{-1}$ , est par ailleurs inférieure à celle de l'eau savonneuse. En lien avec d'autres travaux issus de la littérature portant sur les films visqueux [157, 158], il est intéressant d'étudier la dynamique d'effondrement de telles structures. Dans le cas présent, les échelles

de temps sont bien supérieures à celles du cas inviscide (Fig. 7.7), nous remarquons également que  $\tau_p$  est, de façon surprenante, une fonction non monotone de  $R$ .

- Pour  $R \leq R_{c,v} \simeq 9$  mm,  $\tau_p$  est une fonction décroissante de  $R$ . La tendance hyperbolique tracée sur le graphe semble assez bien décrire cette décroissance.
- Pour  $R \geq R_{c,v}$ ,  $\tau_p$  est une fonction croissante de  $R$ . La tendance linéaire tracée sur le graphe semble assez bien décrire cette croissance.

Tentons à nouveau d'interpréter ces différents comportements.

### 2.2.2 Grands cadres : $R \geq R_{c,v}$

Le ralentissement du processus de pincement au cours de l'effondrement d'une demi-caténoïde visqueuse suggère d'introduire de la dissipation dans le bilan énergétique. Nous pouvons postuler que l'énergie élastique est entièrement dissipée sous forme visqueuse dans le liquide. Les bas nombres de Reynolds impliqués ici justifient le choix d'une force de frottement fluide de type Stokes :  $\eta_l Rv$ . Cette dernière travaillant sur une distance de l'ordre de  $R$ , l'énergie dissipée s'estime finalement comme  $\eta_l R^2 v$ . Équilibrons comme précédemment les deux contributions énergétiques :

$$\gamma R^2 \sim \frac{\eta_l R^3}{\tau_p}, \quad (7.7)$$

$$\tau_p \sim \frac{\eta_l R}{\gamma}. \quad (7.8)$$

Ce nouveau temps visco-capillaire décrit assez bien les résultats expérimentaux obtenus pour des cadres assez grands, tant en termes de tendance linéaire que de préfacteur. La tendance tracée sur le graphe de la figure 7.7 a pour équation  $\tau_p \simeq 0.83R$ , alors que l'équation 7.8 prédit la loi  $\tau_p \sim 3.2R$ . D'autres données expérimentales prises avec des huiles plus ou moins visqueuses s'apparentent juste à des translations du jeu de données présenté sur la figure 7.7, en conformité avec l'équation 7.8.

### 2.2.3 Petits cadres : $R \leq R_{c,v}$

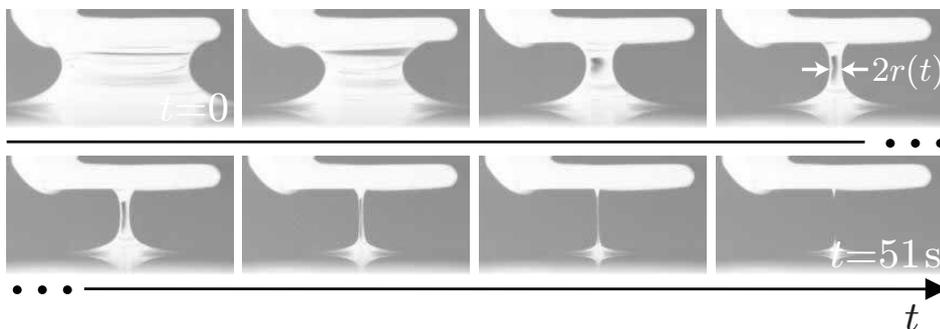


FIGURE 7.8: Effondrement quasi-statique d'une demi-caténoïde symétrique visqueuse, pour un cadre de rayon  $R = 3$  mm.

La décroissance de  $\tau_p$  pour les petits cadres résulte encore d'un autre mécanisme. On pourrait imaginer que la substitution de la taille  $R$  par la longueur capillaire  $\kappa^{-1}$

dans le bilan énergétique établi pour les grands cadres fasse à nouveau apparaître un plateau atteint en  $\tau_p \sim \eta_l \kappa^{-1} / \gamma \simeq 0.46$  s pour des cadres suffisamment petits. Ce raisonnement est en complète contradiction avec les résultats expérimentaux, tant en termes de variation que d'ordre de grandeur. La figure 7.8 illustre la dynamique de pincement obtenue avec un cadre de taille millimétrique. Cette taille étant comparable à la taille typique du ménisque liquide, nous observons la formation d'une colonne liquide, qui s'amincit ensuite au cours du temps sous l'effet de la gravité. Cet amincissement est à nouveau ralenti par la dissipation visqueuse au sein de la colonne liquide. Évaluons le temps nécessaire à cet amincissement par un bilan de forces. Le poids de cette colonne liquide varie typiquement comme  $\rho_l g R^3$ , alors que la force de friction visqueuse, encore de type Stokes, peut s'écrire  $\eta_l R v$ , avec  $v \sim R / \tau_p$ . De fait :

$$\rho_l g R^3 \sim \frac{\eta_l R^2}{\tau_p}, \quad (7.9)$$

$$\tau_p \sim \frac{\eta_l}{\rho_l g R}. \quad (7.10)$$

Il apparaît que  $\tau_p$  admet une dépendance hyperbolique avec le rayon  $R$  du cadre. Cette décroissance de nature visco-gravitaire est en accord qualitatif avec les résultats expérimentaux. La comparaison des préfacteurs entre l'expérience et cette prédiction est en revanche assez éloignée : le préfacteur expérimental est environ 10 fois trop grand. Cet écart, également rencontré dans d'autres expériences mettant en jeu des filaments visqueux [159, 160], pourrait être attribué à des effets non newtoniens, c'est-à-dire à la nature de la viscosité mise en jeu. La géométrie très effilée de la colonne liquide (Fig. 7.8) peut faire penser à des effets de viscosité élongationnelle qui, dans le cas des huiles siliconées de forte masse molaire, est susceptible de devenir bien plus grande que la viscosité mesurée classiquement avec un rhéomètre. Cette hypothèse semble en tout cas aller dans le sens des expériences.

En guise de piste de réflexion, et en conservant un caractère newtonien pour l'huile utilisée, tentons de décrire ce régime de drainage visco-gravitaire de manière plus quantitative : aux temps longs, le filament visqueux épouse la forme d'un cylindre de longueur  $L$  fixée et de rayon  $r(t)$  (Fig. 7.8). Cette géométrie suggère de pouvoir décrire l'écoulement à l'aide d'une loi de Poiseuille reliant le débit volumique  $q$  aux forces volumiques de gravité  $\rho_l g L$  par l'intermédiaire de la résistance hydrodynamique  $R_h$ , avec une condition de non-glissement aux bords :

$$q = \frac{\rho_l g L}{R_h} = \frac{\pi r^4}{8 \eta_l L} \rho_l g L. \quad (7.11)$$

Le volume de fluide présent dans le filament à l'instant  $t$  vaut  $V(t) = \pi r^2(t) L$ . Par différentiation, pendant un court instant  $dt$ , le rayon diminue d'une quantité  $dr$ , le volume diminue donc d'une quantité  $dV = 2\pi r L dr$ . Par définition du débit,  $dV = -q dt$  implique :

$$-\frac{dr}{r^3} = \frac{\rho_l g}{16 \eta_l L} dt. \quad (7.12)$$

Cette équation différentielle s'intègre de la façon suivante :

$$\frac{1}{r^2} = \frac{1}{r_0^2} + \frac{\rho_l g t}{8 \eta_l L}, \quad (7.13)$$

avec  $r_0 = r(t = 0)$ . Cette dynamique peut se mettre sous la forme :

$$r(t) = \frac{r_0}{\sqrt{1 + t/\tau_p}}, \quad (7.14)$$

avec  $\tau_p = 8\eta_l L / (\rho_l g r_0^2)$ . L'instant initial correspond au seuil d'existence de la demi-caténoïde, soit  $r_0 \sim R$  et  $L \sim R$ , soit finalement  $\tau_p \sim 8\eta_l / (\rho_l g R)$ . Le facteur 8 apparaissant dans cette expression tend à aller dans le sens des résultats expérimentaux<sup>4</sup>.

### 2.2.4 Transition entre les deux régimes

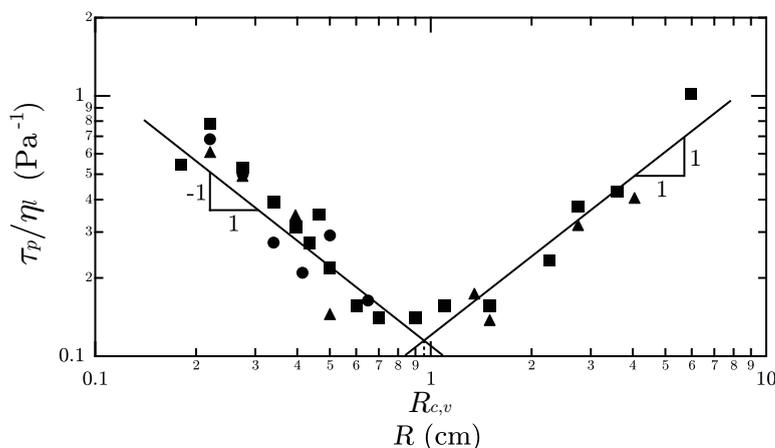


FIGURE 7.9: Évolution de la quantité  $\tau_p/\eta_l$  en fonction de  $R$ . Chaque jeu de symboles correspond à une solution visqueuse donnée : huiles siliconées de viscosités  $\eta_l=6.4$  Pa.s (■) et 35 Pa.s (▲) ; glycérol de viscosité  $\eta_l = 1.1$  Pa.s (●).

La transition entre les deux mécanismes présentés ci-dessus est atteinte lorsque :

$$\frac{\eta_l R_{c,v}}{\gamma} \sim \frac{\eta_l}{\rho_l g R_{c,v}}, \quad (7.15)$$

$$R_{c,v} \sim \kappa^{-1}. \quad (7.16)$$

Cette taille de coupure est à présent de l'ordre de la longueur capillaire. Du fait de l'écart de préfacteur dans le régime des petits cadres, cette prédiction sous-estime la valeur expérimentale, d'un facteur 6 environ. Mais notons néanmoins que la taille de coupure mesurée est bien inférieure à celle obtenue dans le cas inviscide, conformément aux prédictions proposées.

Afin de tester expérimentalement l'influence de la viscosité sur le temps de pincement, nous renouvelons l'expérience avec d'autres solutions visqueuses. Au vu des expressions obtenues pour les grands cadres (Éq. 7.8) et les petits cadres (Éq. 7.10), la figure 7.9 représente la quantité  $\tau_p/\eta_l$  en fonction de  $R$ . Comme attendu, les

4. Une analyse plus poussée de ce problème d'écoulement de filament visqueux peut être trouvée dans la thèse de Jacopo Seiwert [160].

différentes séries expérimentales semblent se superposer selon une seule et même tendance, et font apparaître une unique taille de coupure  $R_{c,v}$  en assez bon accord avec l'équation 7.16.

Nous pouvons résumer l'ensemble de ces résultats dans le tableau suivant :

Mécanismes en compétition	Petits cadres	Grands cadres
Cas inviscide	$\frac{\text{capillarité}}{\text{inertie liquide}}$	$\frac{\text{capillarité}}{\text{inertie gazeuse}}$
Cas visqueux	$\frac{\text{gravité}}{\text{viscosité}}$	$\frac{\text{capillarité}}{\text{viscosité}}$

### 3 Formation d'une bulle interfaciale à la surface du bain

#### 3.1 Régime quasi-statique

En régime quasi-statique ( $v=0$ ), le pincement d'une demi-caténoïde symétrique placée juste au-dessus de son seuil d'existence conduit éventuellement à la formation d'une bulle interfaciale, de rayon  $R_b$  à la surface du bain liquide. La figure 7.10 présente l'évolution de  $R_b$  en fonction de  $R$  pour différentes solutions : deux solutions inviscides et deux solutions visqueuses. Les lignes verticales illustrent, dans les cas inviscides et visqueux, la taille limite de cadre en-dessous de laquelle aucune bulle interfaciale ne se forme. À la lumière des résultats précédents, cette taille peut facilement être prédite.

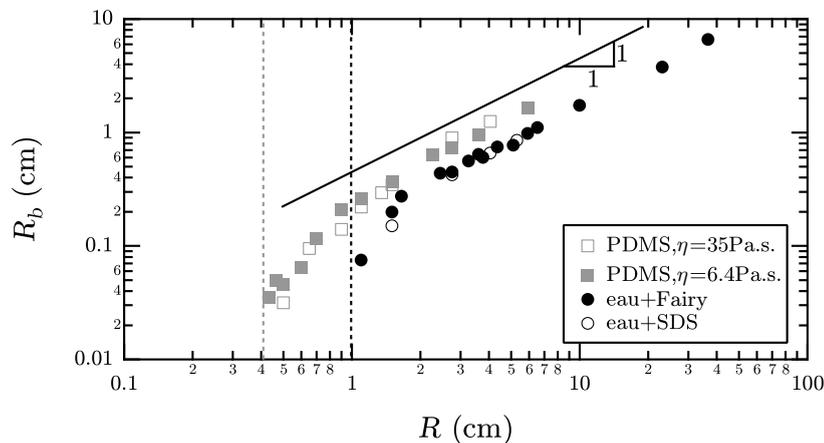


FIGURE 7.10: Évolution du rayon de la bulle interfaciale  $R_b$  en fonction du rayon  $R$  du cadre utilisé. Chaque jeu de symboles correspond à une solution donnée.

- Dans le cas des systèmes inviscides, aucune bulle ne peut se former si l'énergie élastique est convertie sous forme cinétique au liquide, l'ascension de celui-ci permettant de chasser l'air environnant. D'après l'analyse énergétique, la taille critique est donc de l'ordre de  $R_{c,i} \sim (\rho_l/\rho_a)^{\frac{1}{3}}\kappa^{-1}$ , soit environ 1.5 cm.
- Dans le cas des systèmes visqueux, de la même façon, aucune bulle ne peut se former si l'énergie élastique contribue à la formation d'une colonne liquide

visqueuse, permettant encore de chasser l'air. La taille critique recherchée est donc de l'ordre de  $R_{c,v} \sim \kappa^{-1}$ , soit environ 1.5 mm.

Ces critères de création de bulle sont assez bien reproduits expérimentalement. Au-delà du seuil de création,  $R_b$  est une fonction linéaire de  $R$  sur une large gamme, avec des préfacteurs légèrement différents entre les cas inviscide et visqueux. Cette dépendance linéaire pour les grands cadres est encore une fois naturelle, compte tenu de la présence d'une unique taille pertinente,  $R$ , lors du processus de pincement. Le préfacteur légèrement supérieur dans le cas visqueux se comprend qualitativement en remarquant que la dissipation visqueuse ralentit la mise en mouvement du ménisque et autorise donc le système à emprisonner plus d'air au moment du pincement, en comparaison avec le cas inviscide.

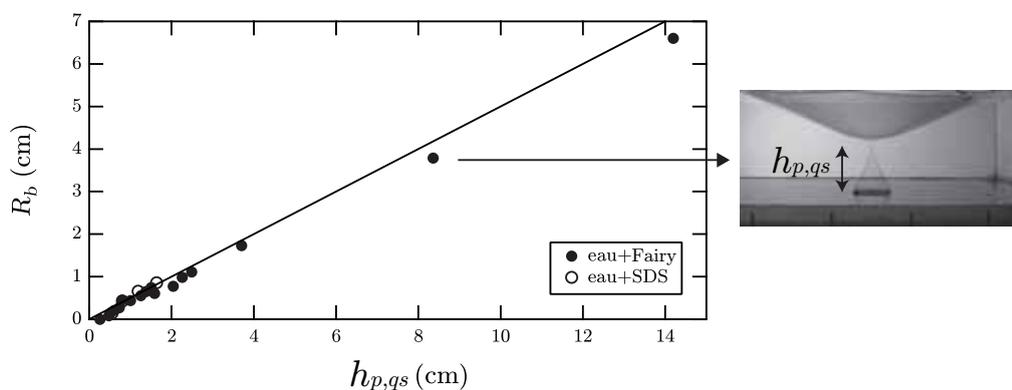


FIGURE 7.11: Rayon de la bulle interfaciale en fonction de la hauteur de pincement  $h_{p,qs}$  définie sur la photographie adjacente au graphe (cadre de rayon  $R = 23$  cm). Chaque jeu de symboles correspond à une solution donnée. La droite noire, de pente  $1/2$ , correspond à l'équation 7.18.

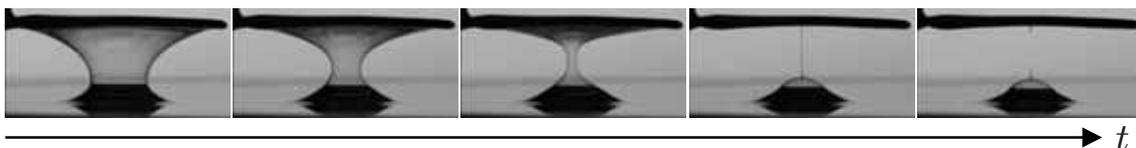


FIGURE 7.12: Effondrement quasi-statique d'une demi-caténoïde symétrique visqueuse, pour un cadre de rayon  $R = 1.1$  cm.

Par ailleurs, remarquons que dans le cas inviscide, la poche d'air emprisonné adopte la forme d'un cône à l'instant précis du pincement (Fig. 7.11) ; notons  $h_{p,qs}$  la hauteur de ce cône. En outre, l'expérience montre que le rayon de sa base reste quasiment égal à  $R_b$  après effondrement. La conservation du volume d'air contenu dans la bulle nous permet alors d'écrire :

$$\frac{\pi R_b^2 h_{p,qs}}{3} = \frac{2\pi R_b^3}{3}, \quad (7.17)$$

$$R_b = \frac{h_{p,qs}}{2}. \quad (7.18)$$

L'équation précédente lie ainsi la hauteur de pincement, résultant du processus dynamique de pincement non décrit dans cette étude, à la taille de la bulle formée (Fig. 7.11). Cette vision très simplifiée néglige la présence de la cavité située sous la bulle. Cette propriété géométrique n'est par ailleurs plus vérifiée dans le cas visqueux, pour lequel la dynamique de pincement, non décrit ici, suit un comportement différent (Fig. 7.12).

## 3.2 Régime dynamique

Étudions maintenant la formation de bulle interfaciale lorsque la vitesse de montée  $v$  est non nulle. Au lieu de se placer au seuil d'existence de la demi-caténoïde symétrique et de sonder son effondrement, nous imposons maintenant au cadre, initialement immergé dans le bain liquide, une vitesse d'ascension constante  $v$ . Nous nous intéressons à l'évolution de la taille  $R_b$  de la bulle interfaciale créée en fonction de  $R$  et  $v$ , dans les cas inviscide et visqueux.

### 3.2.1 Petits cadres : vitesse critique

Dans le paragraphe précédent, nous avons montré que lorsque  $R$  était inférieur à une certaine taille de coupure, respectivement de l'ordre de  $R_{c,i}$  et  $R_{c,v}$  dans les cas inviscide et visqueux, aucune bulle ne se formait en régime quasi-statique. Nous montrons dans la suite qu'il est possible de créer une bulle en régime dynamique en imposant une vitesse  $v$  suffisamment grande. Au-delà de cette vitesse critique, la taille de la bulle est une fonction croissante de la vitesse; nous cherchons ici à déterminer cette vitesse seuil, en présentant de façon disjointe les résultats obtenus dans le cas inviscide, puis le cas visqueux.

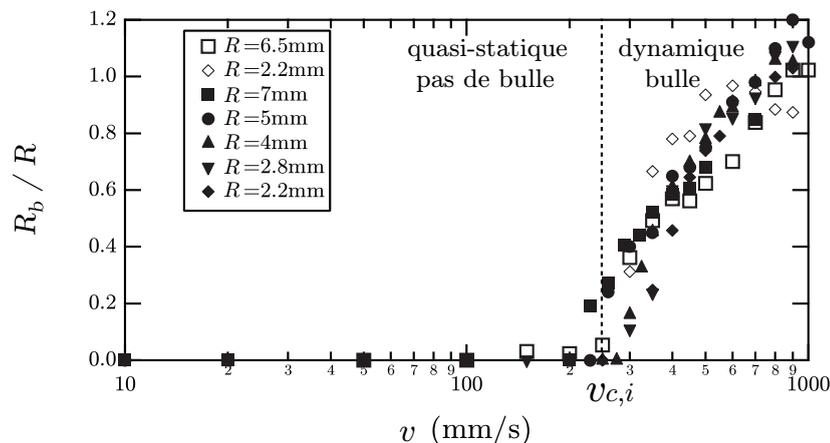


FIGURE 7.13: Cas inviscide : évolution de la taille de la bulle interfaciale  $R_b$ , normalisée par  $R$ , en fonction de  $v$ . Les symboles pleins correspondent à la solution d'eau savonneuse, les symboles vides correspondent à la solution de SDS.

**Cas inviscide** La figure 7.13 présente les résultats obtenus en dynamique avec les deux solutions inviscides. Chaque série de symboles correspond à une solution et une valeur de  $R$  données, cette dernière étant située en-dessous du seuil de création de bulles en statique. Nous pouvons remarquer que chaque jeu de données fait apparaître une vitesse seuil de création de bulle. Cette vitesse critique, notée  $v_{c,i}$ , est de l'ordre de  $250 \text{ mm.s}^{-1}$ , et semble ne pas dépendre de  $R$  de façon drastique. Essayons à présent d'interpréter l'existence de cette vitesse seuil, et en donner une prédiction théorique tirée d'arguments similaires à ceux précédemment utilisés.

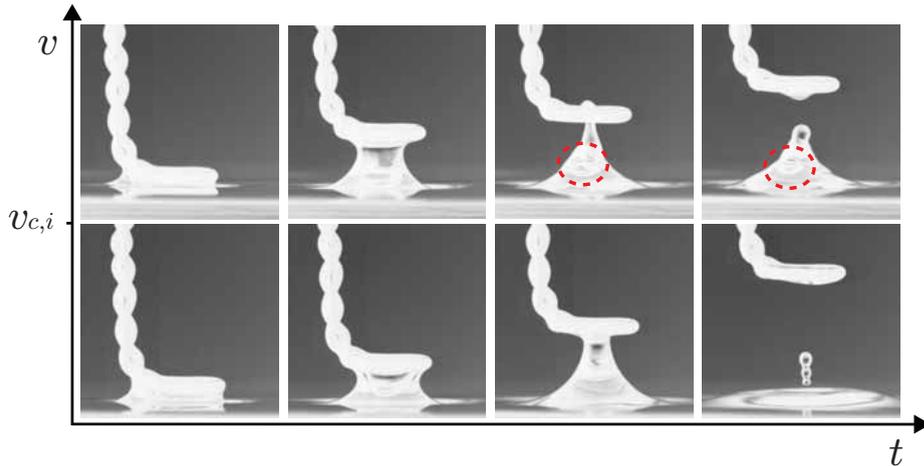


FIGURE 7.14: Cas inviscide : séries de photos expérimentales prises de part et d'autre de la vitesse critique de transition  $v_{c,i}$ , avec la solution de SDS et  $R = 2.2 \text{ mm}$ . Notons en particulier la présence d'une « langue » d'air envahissant l'intérieur du film de savon qui, si elle n'est pas chassée par le liquide provenant du ménisque ( $v > v_{c,i}$ ), donne naissance à une bulle, entourée en rouge pour plus de visibilité.

Lorsque  $R \leq R_{c,i}$ , le liquide présent dans le ménisque est mis en mouvement pendant un temps typique  $\tau_p \sim (\gamma/\rho_l g^3)^{\frac{1}{4}}$  (voir Éq. 7.5), permettant ainsi de chasser intégralement l'air compris à l'intérieur du film de savon. Mais le film est tout de même capable d'emprisonner de l'air situé plus haut, et donc former une bulle (Fig. 7.14), si le temps de montée du cadre sur une longueur typique du ménisque  $\kappa^{-1}$  est suffisamment court devant le temps de mise en mouvement de ce même ménisque. Nous pouvons donc traduire ce critère de création de bulle en termes mathématiques :

$$\frac{\kappa^{-1}}{v} < \left( \frac{\gamma}{\rho_l g^3} \right)^{\frac{1}{4}}, \quad (7.19)$$

$$v > v_{c,i} \sim \left( \frac{\gamma g}{\rho_l} \right)^{\frac{1}{4}}. \quad (7.20)$$

L'expression de cette vitesse critique ne dépend pas de  $R$ , et son ordre de grandeur est de  $130 \text{ mm.s}^{-1}$ . Ce mécanisme conforte donc les résultats expérimentaux dans le cas inviscide. Il est intéressant de remarquer que cette échelle de vitesse intervient également dans les ondes gravito-capillaires : à un facteur près, elle fixe la

vitesse minimale d'une perturbation de la surface libre pouvant engendrer de telles ondes [161].

**Cas visqueux** Le même type de comportement est observé avec des fluides visqueux pour des cadres de rayon  $R \leq R_{c,v}$ , mais les vitesses critiques mesurées sont désormais plus faibles, et dépendent fortement de la viscosité de la solution (Fig. 7.15). Après avoir préparé des mélanges permettant d'explorer une large échelle de viscosité, il apparaît que cette nouvelle vitesse critique, notée  $v_{c,v}$ , est une fonction décroissante de la viscosité, et semble tendre vers une valeur de l'ordre de  $v_{c,i}$  pour des viscosités suffisamment faibles.

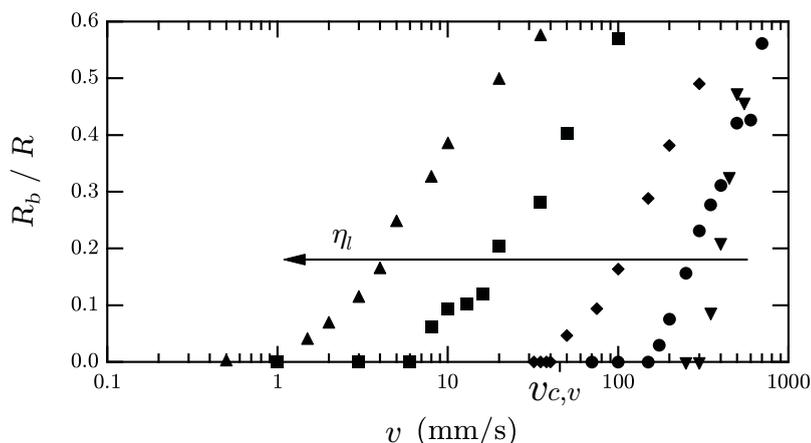


FIGURE 7.15: Cas visqueux : évolution de la taille de la bulle  $R_b$ , normalisée par  $R$ , en fonction de  $v$ . Chaque série de symboles correspond à une solution de viscosité donnée :  $\eta_l = 0.1$  Pa.s ( $\blacktriangledown$ ),  $0.35$  Pa.s ( $\bullet$ ),  $1.44$  Pa.s ( $\blacklozenge$ ),  $6.4$  Pa.s ( $\blacksquare$ ),  $35$  Pa.s ( $\blacktriangle$ ). Toutes les mesures ont été effectuées avec un cadre de rayon  $R = 2.2$  mm.

Pour comprendre ce nouveau résultat, tentons de réexprimer un critère temporel permettant au système de piéger une bulle d'air au cours du processus de pincement (Fig. 7.16). Puisque  $R_{c,v} \sim \kappa^{-1}$ , la taille pertinente devient ici la longueur capillaire  $\kappa^{-1}$ , indépendamment de la taille  $R$  du cadre. En reprenant l'expression des temps caractéristiques de pincement dans le cas visqueux, prenons garde au fait que le temps de mise en mouvement du ménisque à prendre en compte ici n'inclut pas le temps d'amincissement de la colonne liquide, celui-ci s'effectuant *a posteriori*, indépendamment de la présence ou de l'absence de bulle. De fait, par analogie avec le raisonnement précédent, le système parviendra à emprisonner de l'air si le temps de montée sur une longueur typique du ménisque  $\kappa^{-1}$  est suffisamment petit devant le temps de mise en mouvement  $\eta_l \kappa^{-1} / \gamma$  de ce même ménisque. Ce critère se réexprime donc comme :

$$\frac{\kappa^{-1}}{v} < \frac{\eta_l \kappa^{-1}}{\gamma}, \quad (7.21)$$

$$v > v_{c,v} \sim \frac{\gamma}{\eta_l}. \quad (7.22)$$

Cette prédiction est testée sur la figure 7.17, celle-ci prouvant une excellente corrélation, avec un préfacteur satisfaisant de l'ordre de 2.

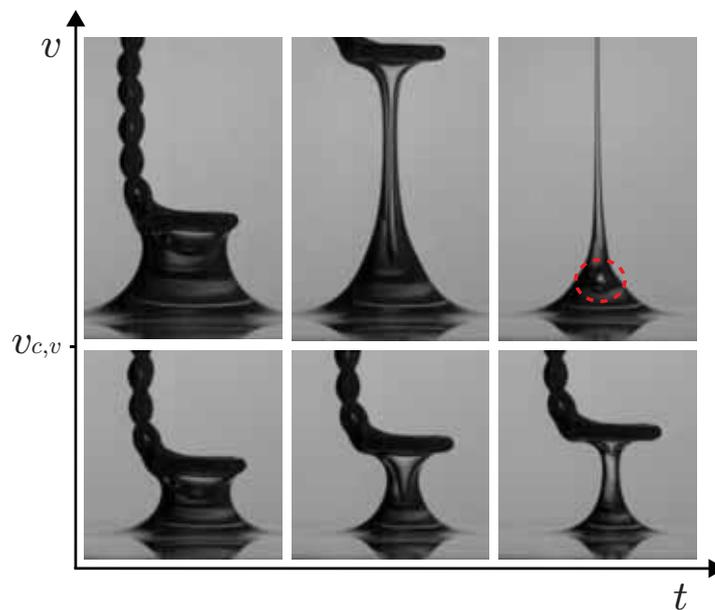


FIGURE 7.16: Cas visqueux : séries de photos expérimentales prises de part et d'autre de la vitesse critique de transition  $v_{c,v}$ , avec l'huile silicone de viscosité 6.4 Pa.s et  $R = 2.2$  mm. La bulle, formée pour  $v > v_{c,v}$ , est entourée en rouge pour plus de visibilité.

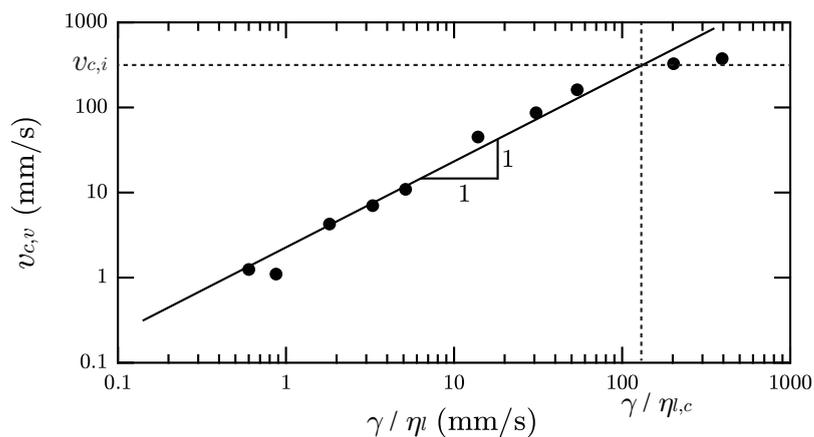


FIGURE 7.17: Vitesse seuil de création de bulle dans le cas visqueux : comparaison entre l'expérience et la prédiction donnée par l'équation 7.22.

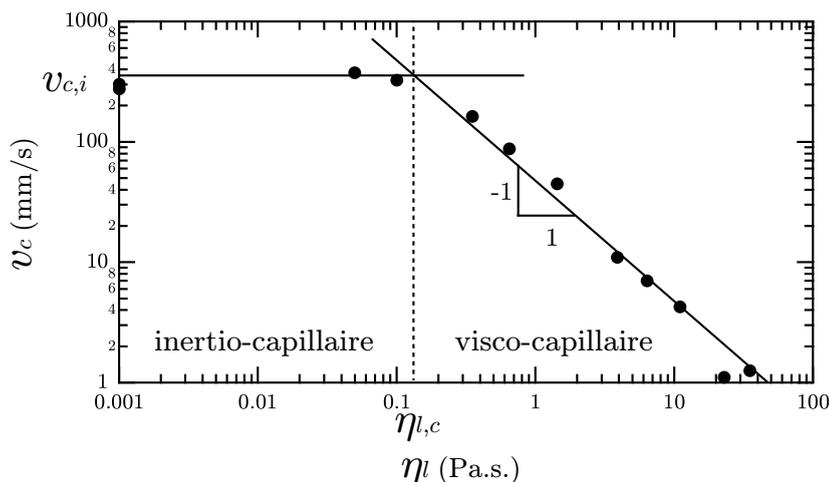


FIGURE 7.18: Allure générale de la vitesse critique en fonction de la viscosité de la solution, cas inviscide et visqueux confondus. Toutes les mesures ont été effectuées avec un cadre de rayon  $R = 2.2$  mm.

**Transition entre les deux régimes** Étudions à présent le raccordement entre les cas inviscide et visqueux décrits plus haut, afin d'estimer à partir de quelle viscosité critique  $\eta_{l,c}$  la solution peut être considérée comme visqueuse vis-à-vis de cette expérience. La transition s'effectue lorsque les vitesses critiques associées aux deux cas deviennent du même ordre de grandeur :

$$\left(\frac{\gamma g}{\rho l}\right)^{\frac{1}{4}} \sim \frac{\gamma}{\eta_{l,c}}, \quad (7.23)$$

$$\eta_{l,c} \sim \left(\frac{\rho l \gamma^3}{g}\right)^{\frac{1}{4}}. \quad (7.24)$$

Tous les mélanges utilisés ayant approximativement la même tension de surface  $\gamma = 20$  mN.m<sup>-1</sup>, nous obtenons  $\eta_{l,c} \sim 0.17$  Pa.s. Ainsi, au-dessus de cette viscosité, le mécanisme est visco-capillaire ; en-dessous, le mécanisme est inertio-capillaire (Fig. 7.18). L'évaluation de cette viscosité typique justifie également que les vitesses critiques mesurées pour les mélanges les moins visqueux soient proches de la valeur déterminée dans le cas inviscide  $v_{c,i}$ , indépendante de la viscosité de la solution.

### 3.2.2 Grands cadres

La figure 7.19 représente la variation de la quantité  $R_b/R$  en fonction de la vitesse, dans les cas inviscide et visqueux. Les deux graphes montrent que la taille de la bulle créée est une fonction croissante de la vitesse d'ascension du cadre, et que cette croissance est très différente selon le graphe considéré.

**Cas inviscide** Dans le cas inviscide, nous pouvons distinguer un plateau quasi-statique lorsque la vitesse est typiquement inférieure à 10 mm.s<sup>-1</sup>, et pour lequel  $R_b/R$  ne dépend pas de  $v$  : on retrouve la valeur discutée dans le régime quasi-statique. Au-delà de cette vitesse typique, le système évolue continûment vers un

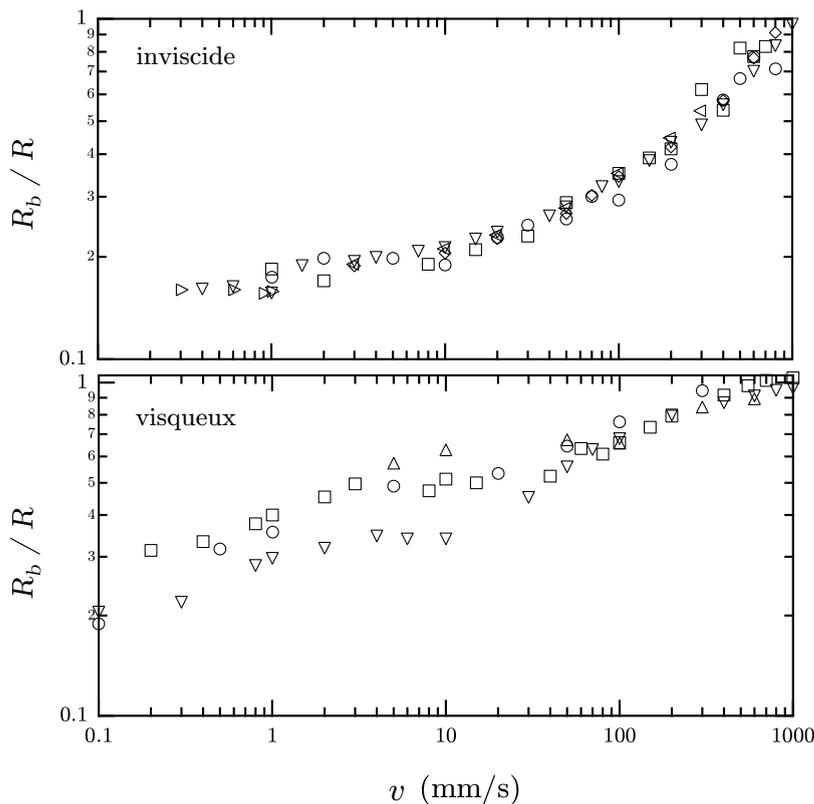


FIGURE 7.19: Évolution de la taille de la bulle interfaciale  $R_b$ , normalisée par  $R$ , en fonction de  $v$ . Le graphe supérieur correspond au cas inviscide : la gamme de rayon sondée est  $R = 2.5\text{--}6.5$  cm. Le graphe inférieur correspond au cas visqueux ( $\eta_l = 6.4$  Pa.s) : la gamme de rayon sondée est  $R = 0.7\text{--}3.6$  cm. Chaque jeu de symboles correspond à un rayon  $R$  fixé.

régime dynamique pour lequel  $R_b/R$  croît avec  $v$ . Tentons de décrire cette croissance en utilisant des arguments physiques simples. Dans le régime quasi-statique, rappelons que la forme conique du film de savon au moment du pincement a permis de déterminer la taille  $R_b$  de la bulle interfaciale en fonction de la hauteur de pincement  $h_{p,qs}$  (Éq. 7.18). De fait, la hauteur de pincement quasi-statique vérifie :

$$h_{p,qs} \sim R, \quad (7.25)$$

puisque nous avons montré que la taille de la bulle interfaciale formée dans le régime quasi-statique était elle-même proportionnelle au rayon  $R$  du cadre (Fig. 7.10). En imposant désormais au cadre une vitesse  $v$ , introduisons empiriquement dans l'expression généralisée de la hauteur de pincement  $h_p$  une contribution dynamique  $h_{p,d}$  telle que :

$$h_p = h_{p,qs} + h_{p,d}. \quad (7.26)$$

Le raccordement au régime quasi-statique impose d'avoir  $h_{p,d} = 0$  si  $v = 0$ . En tenant compte de cette condition, la façon la plus simple d'écrire  $h_{p,d}$ , et confortée par les expériences, correspond à la relation suivante :

$$h_{p,d} = \int_0^{\tau_p} v dt \sim v \sqrt{\frac{\rho_a R^3}{\gamma}}, \quad (7.27)$$

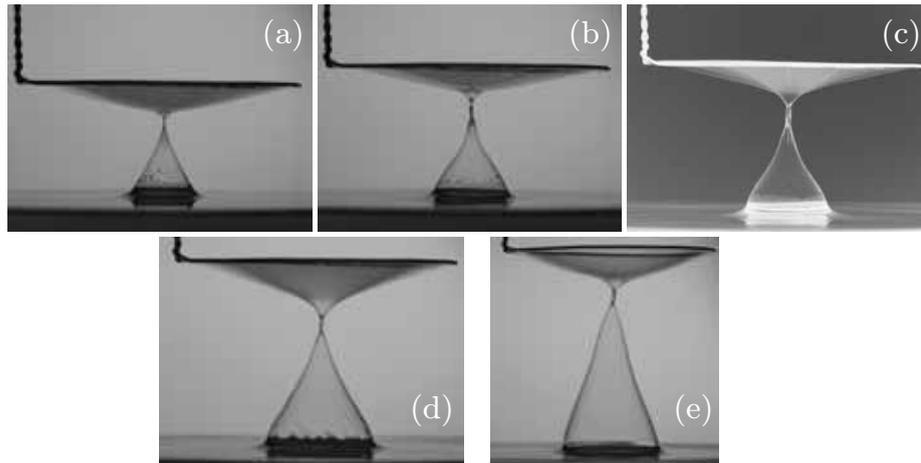


FIGURE 7.20: En régime dynamique, le film de savon adopte une forme approximativement conique au moment du pincement, quelle que soit la vitesse  $v$  : 20 (a), 50 (b), 100 (c), 200 (d), 400 (e)  $\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ . Le rayon du cadre vaut  $R = 3.6$  cm.

en faisant intervenir le temps de pincement inertio-capillaire pour les grands cadres dans le cas inviscide. Physiquement, cette hauteur de pincement dynamique s'interprète comme la distance verticale supplémentaire parcourue par le cadre pendant le temps de pincement typique du film. En première approximation, le film de savon conserve au moment du pincement une forme conique en régime dynamique (Fig. 7.20), dont le rayon à la base est fixé par le rayon du cadre. De fait la conservation du volume impose à présent :

$$h_p R^2 \sim R_b^3, \quad (7.28)$$

soit en injectant la forme de  $h_{p,d}$  donnée par l'équation 7.27 :

$$R_b^3 \sim c_1 R^3 + c_2 v \sqrt{\frac{\rho_a}{\gamma}} R^{\frac{7}{2}}, \quad (7.29)$$

avec  $c_1$  et  $c_2$  deux coefficients d'ajustement sans dimension. Il vient finalement :

$$\frac{R_b}{R} \sim C_1 (1 + C_2 \sqrt{We})^{\frac{1}{3}}, \quad (7.30)$$

avec  $C_1$  et  $C_2$  deux nouveaux paramètres d'ajustement sans dimension, et  $We$  le nombre de Weber défini comme :

$$We = \frac{\rho_a v^2 R}{\gamma}. \quad (7.31)$$

Cette analyse dimensionnelle prédit ainsi aux fortes vitesses une dépendance en  $We^{\frac{1}{6}}$ , soit une dépendance en  $v^{\frac{1}{3}}$  du rapport  $R_b/R$ . Remarquons que la très faible puissance en  $R^{\frac{1}{6}}$  justifie le fait que les séries expérimentales mesurées pour différentes valeurs de  $R$  ne se séparent presque pas sur la gamme de taille sondée pour les grands cadres<sup>5</sup> :  $R=2.5-6.5$  cm. Un ajustement des différents jeux de données

5. Il est expérimentalement difficile de travailler avec des cadres de rayon plus grand dans le régime dynamique.

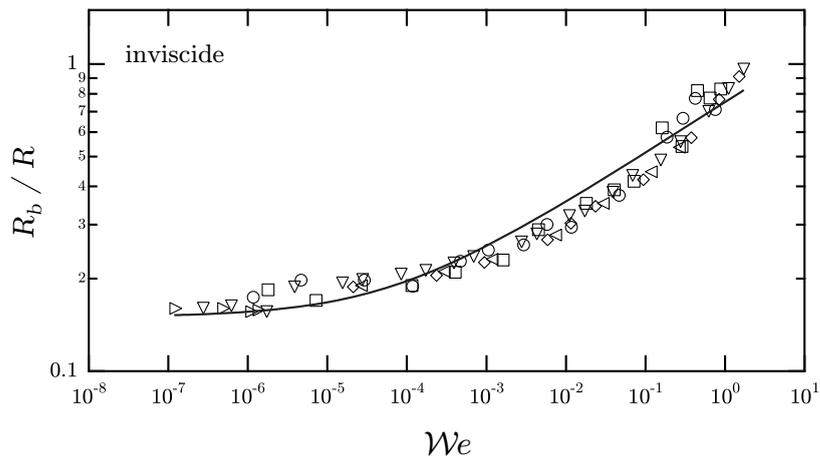


FIGURE 7.21: Cas inviscide : ajustement des résultats expérimentaux tirés de la figure 7.19 par l'équation 7.30, avec pour paramètres  $C_1 = 0.15$ ,  $C_2 = 125$ .

expérimentaux par la relation 7.30 est en assez bon accord (voir Fig. 7.21), même s'il convient de garder à l'esprit que ce processus est en réalité bien plus compliqué.

**Cas visqueux** Les résultats expérimentaux dans le cas visqueux apparaissent plus dispersés, il semble difficile de dégager une tendance générale d'évolution. En particulier, les différentes séries expérimentales ne se superposent pas aux vitesses faibles, suggérant que  $R$  ne soit pas l'unique taille pertinente dans le processus de pincement. Cette constatation confirme par ailleurs que le pincement d'une demi-caténoïde symétrique visqueuse apparaisse très différent du cas inviscide, tant au regard des films (voir Fig. 7.22) qu'au niveau des échelles de temps mises en jeu, par comparaison directe des figures 7.4 et 7.7. En revanche, au-delà d'une vitesse de l'ordre de  $v_{c,i}$ , les courbes se superposent.



FIGURE 7.22: Séquence de photos illustrant l'effondrement d'un film visqueux (huile silicone de viscosité  $\eta_l=6.4$  Pa.s), pour un cadre de rayon  $R=0.9$  cm et une vitesse ascendante  $v = 0.3$  m.s $^{-1}$ .

## 4 Formation d'un film plan sur le cadre

Observons à présent le comportement du film plan formé suite à l'effondrement de la demi-caténoïde symétrique, et venant s'appuyer sur le cadre circulaire. Nous décorrélons ici deux processus subis par ce film plan. Aux temps courts (en-dessous de la seconde), celui-ci subit des oscillations amorties, nous tentons de comprendre et de décrire l'onde stationnaire qui ébranle le film pendant ces premiers instants. Aux temps longs (de l'ordre de quelques secondes à quelques minutes dans le cas inviscide), les oscillations sont complètement atténuées, et le film voit son épaisseur diminuer au cours du temps. Nous proposons une modélisation de cet amincissement.

### 4.1 Oscillations du film aux temps courts

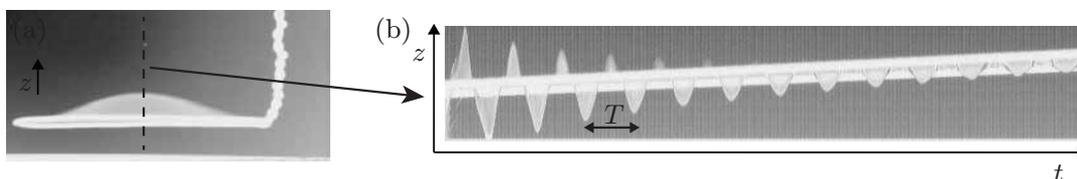


FIGURE 7.23: (a) Illustration du mode d'oscillation subi par le film au suivi du processus de pincement. (b) Diagramme spatio-temporel tracé selon la direction verticale passant par le centre du cadre. L'expérience a été réalisée avec la solution d'eau savonneuse et les paramètres suivants :  $R = 2$  cm,  $v = 5$  mm.s<sup>-1</sup>.

Nous pouvons observer sur la figure 7.23 un diagramme spatio-temporel illustrant les oscillations amorties subies par le film de savon immédiatement après le pincement de la demi-caténoïde. Les conditions aux limites imposent ici une structure d'onde stationnaire. En faisant abstraction d'une résolution exhaustive, mentionnons juste que l'axisymétrie du problème permet de chercher des solutions du profil du film sous la forme de fonctions de Bessel de première espèce  $J_n$ , tout comme pour la membrane vibrante d'un instrument à percussions. L'expérience montre que le mode prédominant correspond à un unique ventre de vibration du film au centre, et un unique nœud de vibration imposé sur le cadre. Ce mode, noté (0,1), correspond à la fonction de Bessel  $J_0$  à laquelle il convient d'imposer sa première annulation sur le pourtour du cadre, soit  $J_0(r=R) = 0$ . La fréquence propre  $f$  du mode correspondant s'écrit, en notant  $c$  la célérité des ondes dans le film :

$$f \simeq \frac{2.4c}{2\pi R}. \quad (7.32)$$

La quantité observable expérimentalement étant la période temporelle d'oscillation  $T = 1/f$ ,

$$T \simeq \frac{2.6R}{c}, \quad (7.33)$$

il reste à connaître l'expression de la célérité  $c$  des ondes dans un tel film. Comme il existe plusieurs types d'ondes pouvant se propager dans un film [162, 163], commençons par analyser les résultats expérimentaux obtenus.

#### 4.1.1 Période d'oscillation en régime quasi-statique : résultats expérimentaux

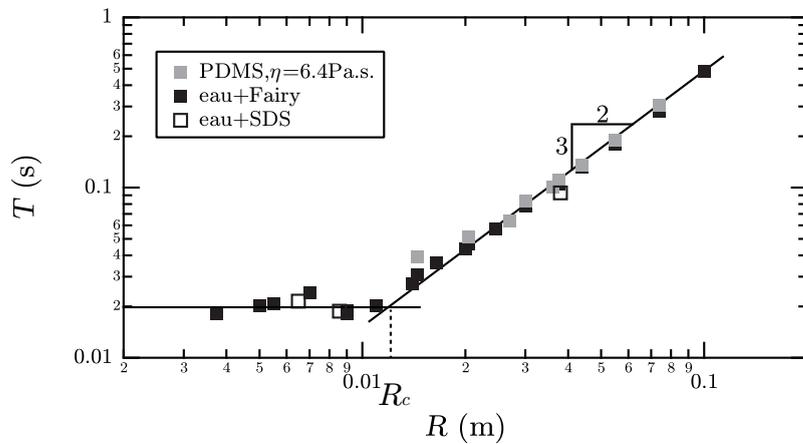


FIGURE 7.24: Période d'oscillation en fonction de  $R$  pour différentes solutions, la vitesse de montée valant  $v = 5 \text{ mm.s}^{-1}$ . Les lignes servent de guide pour les yeux.

Nous avons mesuré l'évolution de la période d'oscillation  $T$  en fonction du rayon du cadre  $R$ , dans les cas inviscide et visqueux, en moyennant sa valeur sur une dizaine de périodes pour une précision accrue (Fig. 7.24). Dans un premier temps, nous avons fixé la vitesse d'ascension à une valeur constante  $v = 5 \text{ mm.s}^{-1}$ , suffisamment faible devant  $v_{c,i}$  afin de se placer dans une approximation quasi-statique. Le graphe fait apparaître une première caractéristique frappante : contrairement aux mesures de temps de pincement, tous les systèmes inviscides et visqueux semblent ici suivre des tendances communes, que nous décrivons ci-après.

Dans le cas inviscide :

- pour  $R \leq R_c \simeq 1 \text{ cm}$ ,  $T$  ne dépend pas de  $R$ , et vaut typiquement 20 ms,
- pour  $R \geq R_c$ ,  $T$  croît rapidement avec  $R$ . La tendance en loi de puissance, de pente  $3/2$ , semble très bien décrire cette croissance.

Dans le cas visqueux :

- pour  $R \leq R_c$ , le film n'oscille pas,
- pour  $R \geq R_c$ , le film oscille avec une période temporelle  $T$  identique à celle du cas inviscide.

Ces régimes ne sont pas sans rappeler ceux entrevus dans la mesure du temps de pincement d'une demi-caténoïde symétrique inviscide. Nous essayons dans la suite d'extraire les ingrédients physiques permettant de justifier l'apparition de tels comportements.

#### 4.1.2 Grands cadres : $R \geq R_c$

En négligeant l'élasticité du film (c'est-à-dire l'influence de l'épaisseur  $e$  du film sur la tension de surface) et le mode d'oscillation dû à ces effets, il existe deux

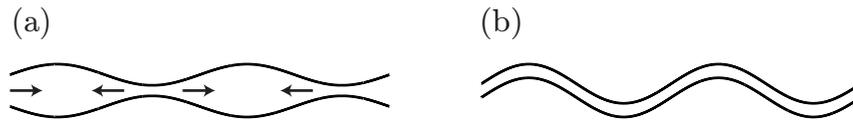


FIGURE 7.25: Modes d'oscillation symétrique (a) et antisymétrique (b) dans un film de savon. Figure adaptée de [163].

modes d'oscillation distincts, de célérités différentes (Fig. 7.25). Le mode symétrique correspond à un mouvement des deux surfaces du film en opposition de phase, contrairement au mode antisymétrique pour lequel les deux surfaces du film vibrent en phase. Comme le mode symétrique engendre des mouvements visqueux, et donc de la dissipation dans le film liquide, celui-ci s'amortit bien plus vite que le mode antisymétrique. Ainsi, nous ne considérons *a priori* que ce dernier mode, dont la célérité s'exprime comme :

$$c = \sqrt{\frac{2\gamma}{\rho_l e}}. \quad (7.34)$$

En injectant cette expression dans l'équation 7.33, la période d'oscillation est censée varier linéairement avec le rayon  $R$ , ce qui est en désaccord avec les résultats expérimentaux (Fig. 7.24). Par ailleurs, le fait que tous les jeux de données correspondant à divers fluides se superposent peut paraître suspect, puisque rien ne garantit que les épaisseurs d'un film inviscide et d'un film visqueux soient comparables. Cette apparente contradiction est levée en considérant, en plus de l'inertie du liquide, l'inertie de l'air mis en mouvement pendant les oscillations du film [164, 165]. De fait, nous apportons une correction dans ce sens en introduisant dans l'équation précédente une épaisseur effective  $e^*$  telle que [164, 165] :

$$\rho_l e^* \simeq \rho_l e + \rho_a \lambda, \quad (7.35)$$

avec  $\lambda$  la longueur d'onde, fixée par les conditions aux limites :

$$\lambda = cT = 2.6R, \quad (7.36)$$

d'où, en reprenant l'expression de la période  $T$  :

$$T \simeq 2.6R \sqrt{\frac{\rho_l e + 2.6\rho_a R}{2\gamma}}. \quad (7.37)$$

Ce résultat fait alors apparaître, au numérateur de la racine carrée, la somme de deux termes. En prenant des cadres suffisamment grands, il apparaît que l'inertie de l'air prédomine devant celle du liquide, conduisant à une période temporelle variant comme :

$$T \sim \sqrt{\frac{\rho_a R^3}{\gamma}}. \quad (7.38)$$

Nous retrouvons ainsi un temps d'origine inertio-capillaire, pour lequel les pentes et préfacteurs associés sur la figure 7.24 sont en bon accord avec les résultats expérimentaux : la tendance tracée a pour équation  $T \simeq 1.5 \cdot 10^{-2} R^{\frac{3}{2}}$ , alors que l'équation 7.38 prédit respectivement pour la solution savonneuse, la solution de SDS et

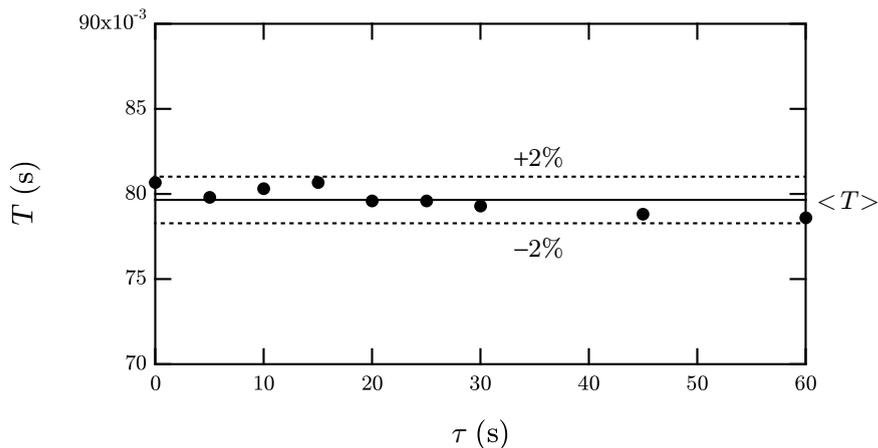


FIGURE 7.26: Influence du temps d'attente  $\tau$  sur la période d'oscillation  $T$ , pour la solution savonneuse et  $R = 3$  cm. La vitesse de montée du cadre est  $v = 5$  mm.s<sup>-1</sup>.

le PDMS,  $T \sim 6.8 \cdot 10^{-3} R^{\frac{3}{2}}$ ,  $T \sim 5.9 \cdot 10^{-3} R^{\frac{3}{2}}$  et  $T \sim 7.7 \cdot 10^{-3} R^{\frac{3}{2}}$ . Ce temps est par ailleurs indépendant de la viscosité, et donc de la solution utilisée. Pour montrer que l'épaisseur du film joue un rôle négligeable dans la période d'oscillation lorsque les cadres sont suffisamment grands, nous avons reproduit l'expérience avec la solution savonneuse et une vitesse d'ascension  $v$  identique (5 mm.s<sup>-1</sup>), en attendant un certain temps  $\tau$  au seuil d'existence avant de provoquer le pincement de la demi-caténoïde (Fig. 7.26). L'amincissement du film pendant cette durée  $\tau$  provoque une légère diminution de la période  $T$ , en lien avec l'équation 7.37, mais cette diminution relative<sup>6</sup>, de l'ordre de 2%, est effectivement « noyée » par le terme prépondérant d'inertie de l'air. Le rayon critique  $R_c$  au-dessus duquel cette limite est valable peut s'estimer en équilibrant les deux termes évoqués plus haut, ceci nous donnant :

$$R_c \sim \frac{\rho_l e}{\rho_a}. \quad (7.39)$$

Pour un film dont l'épaisseur vaut quelques microns à quelques dizaines de microns,  $R_c$  est au plus de l'ordre du centimètre, cette estimation justifie donc la limite considérée dans ce paragraphe. Cela dit, la disparition des oscillations dans le cas visqueux, ou l'émergence d'un plateau dans le cas inviscide pour les petits cadres (Fig. 7.24) ne sont pas incluses dans ce modèle. Intéressons-nous donc à présent aux petits cadres.

#### 4.1.3 Petits cadres : $R \leq R_c$

**Cas inviscide** Décrivons tout d'abord le cas inviscide, et remarquons dans un premier temps que  $R_c \simeq R_{c,i}$ . Nous avons vu que lorsque  $R < R_{c,i} \sim (\rho_l/\rho_a)^{\frac{1}{3}} \kappa^{-1}$ , le ménisque liquide était mis en mouvement au cours du pincement, celui-ci venant nourrir le film. Il est donc à attendre que l'épaisseur  $e$  de ce dernier devienne bien supérieure à celle obtenue avec des cadres de rayon  $R > R_{c,i}$ . Ce fait se devine d'ailleurs en observant attentivement les vidéos expérimentales. De fait, la célérité

6. Nous verrons plus loin que l'épaisseur varie effectivement assez vite sur les échelles de temps considérées sur la figure 7.26.

pertinente est maintenant celle fournie par l'équation 7.34, sans la prise en compte de l'entraînement de l'air. En développant les calculs comme ci-dessus, la période d'oscillation peut dans ce cas s'écrire :

$$T = 2.6R\sqrt{\frac{\rho_l e}{2\gamma}}. \quad (7.40)$$

En supposant le film plan homogène en épaisseur, la conservation du volume de liquide impose que ce qu'il y avait dans le ménisque, de volume typique  $\kappa^{-3}$ , se retrouve dans le film plan, de volume typique  $eR^2$ , soit :

$$e \sim \frac{\kappa^{-3}}{R^2}. \quad (7.41)$$

Notons que la dépendance de l'épaisseur  $e$  avec le rayon  $R$  est simplement indicative du taux de variation de  $e$ , sa variation réelle étant certainement plus compliquée. Pour un cadre de rayon  $R$  suffisamment petit, on imagine mal un film liquide plus épais que le millimètre! Il est alors raisonnable de penser que de nouveaux effets puissent rentrer en ligne de compte (épaisseur finie du cadre, forces de van der Waals), permettant de contrecarrer cette apparente divergence. En revenant à la période d'oscillation et en passant  $R$  sous le racine, il vient finalement :

$$T \sim \sqrt{\frac{\rho_l \kappa^{-3}}{\gamma}} \sim \left(\frac{\gamma}{\rho_l g^3}\right)^{\frac{1}{4}}. \quad (7.42)$$

Nous retrouvons ici le temps de pincement d'une demi-caténoïde symétrique inviscide, dans le régime des petits cadres. Ce temps est indépendant de  $R$ , et son ordre de grandeur,  $T \sim 13$  ms, est en bon accord avec le plateau mesuré expérimentalement :  $T \simeq 20$  ms.

**Cas visqueux** Dans le cas visqueux, nous remarquons expérimentalement que la disparition des oscillations est corrélée à l'apparition d'une fine colonne liquide visqueuse décrite plus haut. Nous avons montré, dans l'analyse des temps de pincement, que la présence de cette colonne liquide engendrait une grande dissipation, lorsque  $R < R_{c,v}$ . Il est donc logique que toute l'énergie libérée au cours du pincement ne soit plus transférée dans les oscillations du film mais dissipée entièrement dans la colonne liquide, conduisant à la disparition des oscillations.

#### 4.1.4 Transition entre les deux régimes

**Cas inviscide** La taille critique de transition  $R_c$  est obtenue en équilibrant directement les expressions de la période  $T$  dans les régimes des petits et grands cadres, correspondant finalement à une équipartition des inerties de l'air et du liquide dans l'expression générale de la célérité. Il vient, comme pour l'analyse du temps de pincement :

$$R_c \sim \left(\frac{\rho_l}{\rho_a}\right)^{\frac{1}{3}} \kappa^{-1} \sim R_{c,i}. \quad (7.43)$$

Ce critère peut également être obtenu en reconsidérant le seuil  $R_c$  donné par l'équation 7.39,  $R_c \sim \rho_l e / \rho_a$ , puis en s'abstrayant de l'épaisseur  $e$  *via* la relation de conservation de volume du ménisque (Éq. 7.41) écrite au seuil :  $e \sim \kappa^{-3} / R_c^2$ .

**Cas visqueux** L'apparition d'une colonne visqueuse intervient lorsque  $R$  devient inférieur à la valeur critique expérimentale  $R_{c,v}$  relevée sur la figure 7.7.  $R_c$  est également de l'ordre de grandeur du centimètre.

#### 4.1.5 Période d'oscillation en régime dynamique : résultats expérimentaux

Étudions maintenant l'influence de la vitesse d'ascension du cadre sur la période d'oscillation du film. La figure 7.27 présente quatre jeux de données expérimentales mesurées pour différentes valeurs de  $R$ . Décrivons l'allure des résultats obtenus.

- À faible vitesse, toutes les séries comportent un plateau, raccordant au régime quasi-statique décrit auparavant.
- Au-delà d'une certaine vitesse critique  $v_c$  dépendant de  $R$ , la période est une fonction croissante de la vitesse sur une gamme assez large. La transition est plus difficilement décelable sur la série de plus grand rayon  $R = 3$  cm dans la gamme de vitesse sondée expérimentalement.

Tentons d'analyser ces résultats dans la suite, en découplant le cas des grands cadres et des petits cadres. Il semble en effet que  $v_c$  soit successivement une fonction décroissante de  $R$  aux petits cadres, puis une fonction croissante de  $R$  pour les grands cadres.

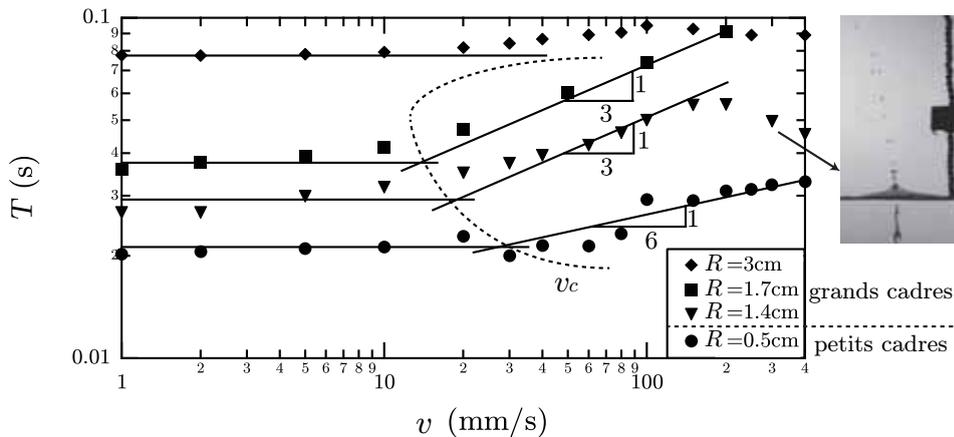


FIGURE 7.27: Période d'oscillation en fonction de  $v$  : chaque série correspond à une valeur de  $R$  fixée. Les droites en traits pleins servent de guide pour les yeux afin de mieux distinguer les deux régimes. La courbe en traits pointillés souligne le caractère non monotone de la vitesse critique  $v_c$  séparant ces deux régimes en fonction de  $R$ . Toutes les séries ont été effectuées avec la solution d'eau savonneuse. À droite du graphe, la photographie montre l'éjection de gouttelettes hors du film aux vitesses élevées.

#### 4.1.6 Grands cadres : $R \geq R_c$

Pour les grands cadres, nous avons montré que l'inertie du liquide entraîné ne jouait que peu de rôle devant l'inertie de l'air. Mais on peut s'attendre à ce que l'application d'une vitesse d'ascension au cadre puisse lui permettre d'emporter plus

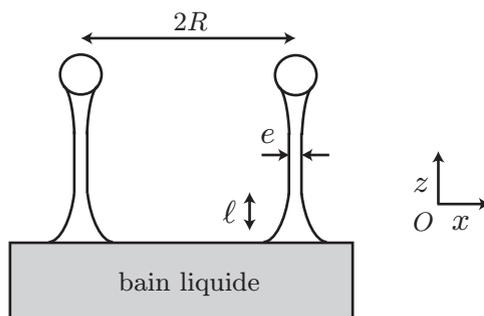


FIGURE 7.28: Schéma représentant le film liquide d'épaisseur  $e$  entraîné par le cadre.

de liquide, et ainsi inverser cette tendance. Bien que la géométrie soit différente (Fig. 7.28), cette expérience comporte quelques similarités avec le problème classique de Landau-Levich-Derjaguin [100, 166], pour lequel une plaque verticale est retirée d'un bain liquide à vitesse constante. Ce problème, possédant par ailleurs de nombreuses applications industrielles (procédés d'enduction), s'intéresse à l'épaisseur du film liquide laissé sur la plaque extraite du bain ; redécrivons-en les principaux résultats. En notant respectivement  $p$  et  $u$  les champs de pression et de vitesse dans le film, l'équation de Navier-Stokes, écrite dans l'approximation de lubrification et projetée selon les axes  $(Oz)$  et  $(Ox)$  définis sur la figure 7.28, fournit les relations suivantes<sup>7</sup> :

$$\frac{\partial p}{\partial z} = \eta \frac{\partial^2 u}{\partial x^2}, \quad (7.44)$$

$$\frac{\partial p}{\partial x} = 0. \quad (7.45)$$

Nous avons pris la liberté de négliger la gravité dans l'équation 7.44, cette hypothèse sera vérifiée *a posteriori*. D'après l'équation 7.45,  $p$  ne dépend que de  $z$ . L'équilibre des contraintes normales à l'interface air/liquide est dicté par la loi de Young-Laplace :

$$p(z) = p_0 - \gamma \frac{\partial^2 e}{\partial z^2}. \quad (7.46)$$

Une troisième relation impose la continuité de la courbure entre les ménisques statique et dynamique. En valeur absolue, celle-ci vaut respectivement  $\kappa$  et  $\partial^2 e / \partial z^2$  dans les deux cas. En notant  $\ell$  la hauteur typique du ménisque dynamique, et en raisonnant en ordres de grandeur, il vient alors :

$$\ell \sim \sqrt{e\kappa^{-1}}. \quad (7.47)$$

En tirant parti de ce résultat, les échelles de longueur varient donc comme  $e$  selon la direction  $x$ , et comme  $\sqrt{e\kappa^{-1}}$  selon la direction  $z$ . La projection de l'équation de Navier-Stokes selon  $(Oz)$  se réécrit alors en ordre de grandeur comme :

$$\gamma \frac{e}{\ell^3} \sim \eta \frac{v}{e^2}, \quad (7.48)$$

7. Nous négligeons dans ce problème tout effet d'élasticité élongationnelle due à la variation de tension de surface. En d'autres termes, nous supposons l'incompressibilité de l'écoulement des surfactants à l'interface liquide/air.

$$e \sim \kappa^{-1} \mathcal{C}^{\frac{2}{3}}, \quad (7.49)$$

avec  $\mathcal{C} = \eta v / \gamma$  le nombre capillaire, comparant les effets visqueux et capillaires. Ce résultat est également connu sous le nom de loi de Frankel [167] pour les films de savon. Fort de cette relation, la condition de validité de l'hypothèse de gravité négligeable se réécrit comme :

$$\rho_l g \ll \eta \frac{v}{e^2}, \quad (7.50)$$

$$\mathcal{C} \ll 1. \quad (7.51)$$

Dans la gamme des vitesses explorées ( $v=10^{-4}-1$  m.s<sup>-1</sup>), cette condition est aisément réalisée dans nos expériences. Nous supposons donc que l'épaisseur du film entraîné par le cadre dans notre expérience suit une loi de ce type. De fait, en injectant cette forme dans la comparaison des inerties de l'air et du liquide, il est possible de tirer une estimation de  $v_c$  par la relation suivante :

$$\rho_l \kappa^{-1} \left( \frac{\eta v_c}{\gamma} \right)^{2/3} \sim \rho_a R, \quad (7.52)$$

$$v_c \sim \frac{\gamma}{\eta} \left( \frac{\rho_a R}{\rho_l \kappa^{-1}} \right)^{\frac{3}{2}}. \quad (7.53)$$

Cette vitesse critique est du bon ordre de grandeur en comparaison avec l'expérience : en exploitant par exemple la série de rayon  $R = 1.4$  cm, les valeurs expérimentales et prédites sont respectivement de l'ordre de 20 mm.s<sup>-1</sup> et 30 mm.s<sup>-1</sup>. En se plaçant ainsi à une vitesse supérieure à cette vitesse critique, l'inertie liquide devient prépondérante, se traduisant à l'aide des équations 7.37 et 7.49 par une expression de la période  $T$  sous la forme :

$$T \sim \sqrt{\frac{\rho_l R^2 \kappa^{-1}}{\gamma}} \left( \frac{\eta v}{\gamma} \right)^{\frac{1}{3}}. \quad (7.54)$$

Le comportement en loi de puissance 1/3 avec la vitesse, observé sur la figure 7.27, est donc en accord avec ces arguments empruntés au problème de Landau-Levich-Derjaguin. L'expérience montre par ailleurs que la période rediminue et donc dévie de la tendance prédite pour des vitesses typiquement supérieures à 100 mm.s<sup>-1</sup>. Ce fait est corrélé à l'éjection de gouttes liquides hors du film de savon dans cette gamme de vitesse. Par conséquent, l'épaisseur du film est amenée à diminuer, induisant une diminution de la période  $T$  d'oscillation, conformément à l'équation 7.37. La taille de ces gouttes étant typiquement donnée par la longueur capillaire, celles-ci sont amenées à s'extraire du film lorsque leur énergie cinétique  $\rho_l \kappa^{-3} v^2$  leur permet de gagner une énergie de surface de l'ordre de  $\gamma \kappa^{-2}$ , soit  $v \sim (\gamma g / \rho_l)^{\frac{1}{4}} \sim v_{c,i}$ , en accord avec l'ordre de grandeur relevé expérimentalement sur la figure 7.27. La série de plus grand rayon présentée sur la figure 7.27 est justement caractérisée par une équivalence des deux vitesses critiques discutées dans cette partie. De fait, la transition attendue par les équations 7.53 et 7.54 est « noyée » par cette équivalence. Cet effet rend difficile la mesure de la dépendance de  $v_c$  avec  $R$  prédite par l'équation 7.53.

#### 4.1.7 Petits cadres : $R \leq R_c$

Le cas des petits cadres est légèrement différent, puisque l'inertie de l'air peut de toute façon être négligée. En régime dynamique, l'expérience montre que le liquide tend à s'accumuler dans un bourrelet central formé au cours du mécanisme de pincement. Alors que ce bourrelet ne semble pas jouer de rôle prépondérant pour les grands cadres, celui-ci concentre une majeure partie du volume liquide emporté pour les petits cadres, sa taille fixe donc *a priori* la période d'oscillation du film. D'après l'analyse de Landau-Levich-Derjaguin, le volume emporté par la colonne liquide est de l'ordre de  $\ell^3 \sim \kappa^{-3}\mathcal{C}$ , la taille du bourrelet est donc fixée par  $\ell \sim \kappa^{-1}\mathcal{C}^{\frac{1}{3}}$ . En remplaçant l'épaisseur  $e$  par cette longueur typique dans l'équation 7.40, il vient, pour l'expression de la période :

$$T \sim \sqrt{\frac{\rho_l R^2 \kappa^{-1}}{\gamma}} \left( \frac{\eta_l v}{\gamma} \right)^{\frac{1}{6}}. \quad (7.55)$$

La loi de puissance 1/6 semble en assez bon accord avec la série expérimentale de rayon  $R=0.5$  cm. L'expression de la vitesse critique s'obtient en équilibrant l'expression des périodes en régime quasi-statique et dynamique :

$$\sqrt{\frac{\rho_l \kappa^{-3}}{\gamma}} \sim \sqrt{\frac{\rho_l R^2 \kappa^{-1}}{\gamma}} \left( \frac{\eta_l v_c}{\gamma} \right)^{\frac{1}{6}}, \quad (7.56)$$

$$v_c \sim \frac{\gamma}{\eta_l} \left( \frac{\kappa^{-1}}{R} \right)^6. \quad (7.57)$$

Cette vitesse critique est à présent une fonction décroissant très rapidement avec  $R$ , son ordre de grandeur est assez bien vérifié expérimentalement : pour  $R = 0.5$  cm, les valeurs prédite et expérimentale valent respectivement  $18 \text{ mm.s}^{-1}$  et  $30 \text{ mm.s}^{-1}$ . Il convient toutefois de nuancer ce raisonnement, au vu des hypothèses faites. Par ailleurs, du fait de l'intervention d'une seconde vitesse caractéristique  $v_{c,i}$  dans ce mécanisme, il est compliqué de réaliser une étude expérimentale quantitative de  $v_c$  en fonction de  $R$ .

#### 4.1.8 Transition entre les deux régimes

La taille de coupure  $R_c$  peut se retrouver en équilibrant les expressions de la vitesse critique  $v_c$  obtenues pour les petits et les grands cadres. Nous obtenons  $R_c \sim (\rho_l/\rho_a)^{\frac{1}{5}}\kappa^{-1}$ , de l'ordre de 6 mm, en accord avec les expériences.

#### 4.1.9 Temps d'amortissement : résultats expérimentaux

Maintenant que nous avons décrit la période  $T$  des oscillations, tentons de quantifier leur amortissement. De la figure 7.23, il est possible de tirer, après soustraction du mouvement uniforme ascendant à la vitesse  $v$ , le profil temporel des oscillations du film. La figure 7.29 illustre un graphe expérimental typique représentant ces oscillations amorties, pour la solution d'eau savonneuse et le PDMS. De prime abord, la superposition des séries associées aux cas inviscide et visqueux montre que l'amortissement ne semble pas dépendre de la viscosité du liquide utilisé, ce qui peut paraître

surprenant. Il n'en est finalement rien, puisque nous avons vu que les oscillations du film correspondent au mode antisymétrique, pour lequel les interfaces vibrent en phase. Ce mode n'induit donc pas de dissipation dans le film, et de fait ne dépend pas de sa viscosité. L'amortissement est finalement dû à la friction de l'air entourant le film. Afin de sonder cet amortissement, l'ajustement opéré sur la figure 7.29 correspond à une sinusoïde amortie, dont les enveloppes supérieure et inférieure (en pointillés) sont des exponentielles convergentes symétriques l'une de l'autre et tendant vers zéro. Leur temps caractéristique commun, noté  $\tau_d$ , donne une information sur la dissipation des oscillations. La figure 7.30 présente les résultats expérimentaux obtenus en fonction du rayon  $R$  du cadre pour la solution savonneuse, nous observons une décroissance du temps d'amortissement dans le régime des petits cadres, et une croissance dans le régime des grands cadres.

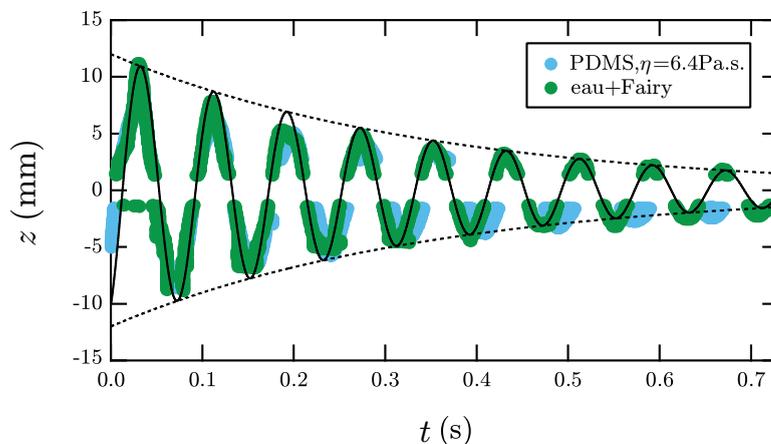


FIGURE 7.29: Suivi temporel  $z(t)$  des oscillations amorties du film plan. Chaque couleur correspond à une solution donnée, les deux séries expérimentales ont été mesurées avec un cadre de rayon  $R = 3 \text{ cm} > R_c$ .

En reconsidérant des arguments physiques utilisés auparavant, évaluons le nombre de Reynolds  $\mathcal{R}e$  dans la couche d'air entraînée par les oscillations du film :

$$\mathcal{R}e = \frac{\rho_a v R}{\eta_a}. \quad (7.58)$$

Avec  $v \sim R/T$  et  $T \sim \sqrt{\rho_a R^3 / \gamma}$ , il vient, en prenant  $R \simeq 5 \text{ cm}$  :

$$\mathcal{R}e \sim \frac{\sqrt{\rho_a \gamma R}}{\eta_a} \simeq 2000. \quad (7.59)$$

Le nombre de Reynolds étant suffisamment élevé, écrivons la friction de l'air sous la forme  $\rho_a R^2 v^2$ , avec maintenant  $v \sim R/\tau_d$ . En équilibrant l'énergie élastique du film et l'énergie associée à la dissipation de l'air, il vient :

$$\gamma R^2 \sim \frac{\rho_a R^4}{\tau_d^2}, \quad (7.60)$$

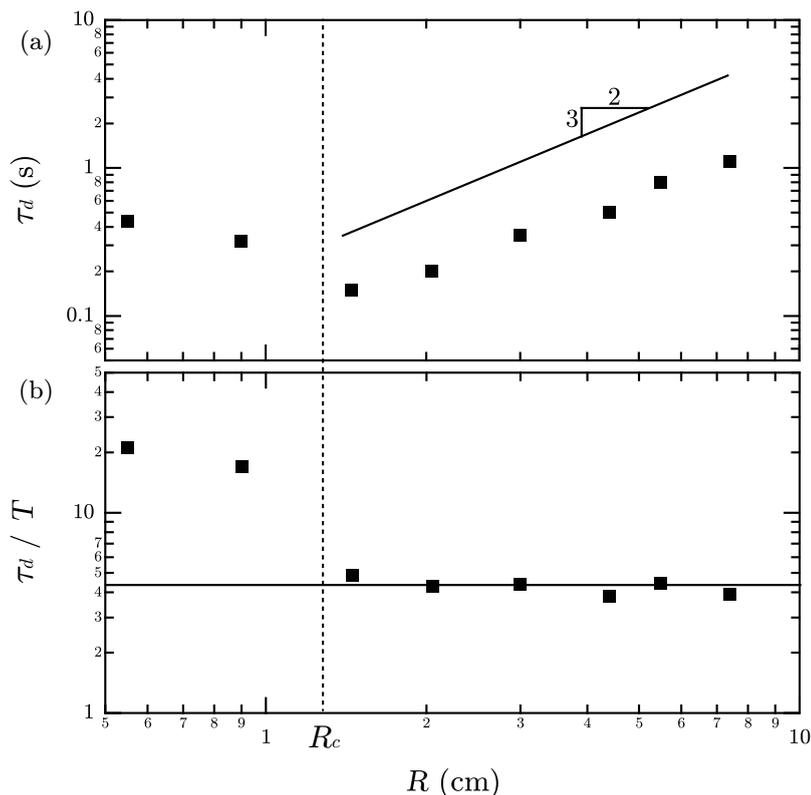


FIGURE 7.30: (a) Évolution du temps d'amortissement  $\tau_d$  en fonction de  $R$ . Ces mesures ont été effectuées avec la solution savonneuse. (b) Rapport entre le temps d'amortissement et la période d'oscillation  $T$  en fonction de  $R$ .

$$\tau_d \sim \sqrt{\frac{\rho_a R^3}{\gamma}}. \quad (7.61)$$

C'est à nouveau ce temps inertio-capillaire de l'air qui émerge naturellement. La tendance de pente  $3/2$  est en assez bon accord avec les résultats expérimentaux pour les grands cadres. Ainsi, le fait d'avoir un rapport  $\tau_d/T$  ne dépendant pas de  $R$  de façon notable pour les grands cadres (Fig. 7.30) confirme l'observation expérimentale selon laquelle chaque suivi temporel exhibe un nombre équivalent de périodes, de l'ordre de la dizaine, indépendamment de la taille du cadre choisie. Les écarts peuvent être attribués, une fois de plus, à la façon de mesurer l'amortissement : le fait que la dissipation soit une fonction non linéaire de la vitesse [168, 164] rentre *a priori* en contradiction avec le choix d'ajuster les courbes par un régime pseudo-périodique valable en régime linéaire. Le cas des petits cadres semble faire apparaître une dissipation d'une autre nature. Comme suggéré dans la littérature [164], l'ordre de grandeur de  $R$  pour les petits cadres est compatible avec l'émergence d'un processus de dissipation visqueuse supplémentaire dans le film de savon.

Essayons de décrire cet amortissement de façon plus approfondie. Nous allons considérer le film plan comme l'analogue d'un oscillateur harmonique amorti de façon non linéaire, appliquons-lui le principe fondamental de la dynamique en calculant chacun des termes de façon empirique.

- La tension de surface agit comme une force de rappel sur le film de savon. Celui-ci est de surface  $\pi R^2$  lorsque  $z = 0$  (film plan). Lorsque  $z \neq 0$ , ce dernier est supposé adopter la forme d'une calotte sphérique dont le rayon de courbure  $\rho$  vérifie, d'après le théorème de Pythagore :

$$\rho^2 = (\rho - z)^2 + R^2, \quad (7.62)$$

$$\rho = \frac{1}{2} \left( \frac{R^2}{z} + z \right). \quad (7.63)$$

La surface de la calotte s'exprime comme :

$$S = 2\pi\rho z, \quad (7.64)$$

soit, en utilisant l'équation 7.63 :

$$S = \pi(R^2 + z^2). \quad (7.65)$$

La surface est quadratique avec la déflexion centrale  $z$  du film, donc l'énergie de surface  $2\gamma S$  également. Par dérivation, ceci fournit une force de rappel élastique typique de  $\gamma z$ .

- Pour les grands cadres, la force de frottement est principalement donnée par la friction de l'air. Celle-ci s'exerce dans la couche limite d'air entraîné, d'épaisseur  $\delta$  telle que :

$$\delta \sim \sqrt{\nu_a R / |\dot{z}|}, \quad (7.66)$$

avec  $\nu_a = \eta_a / \rho_a$  la viscosité cinématique de l'air. Le cisaillement visqueux varie donc comme  $\eta_a |\dot{z}| / \delta \sim \sqrt{\eta_a \rho_a} |\dot{z}|^3 / R$ , la force associée est de l'ordre de  $\sqrt{\rho_a \eta_a R^3} |\dot{z}|^{\frac{3}{2}}$  [168, 164]. Nous nous plaçons ici en régime quasi-statique afin de pouvoir négliger la vitesse d'ascension  $v$  du cadre devant la vitesse d'oscillation du film.

- Le terme inertiel de ce processus comporte, d'après précédemment, une composante pour le liquide, de volume typique  $eR^2$ , et une composante pour l'air entraîné, de volume typique  $R^3$ . Ce dernier terme s'écrit donc  $(\rho_a R^3 + \rho_l e R^2) \ddot{z}$ .

Ainsi, la déformation  $z$  du film doit satisfaire à une équation différentielle non linéaire d'ordre 2 dans le temps, celle-ci s'écrivant en ordre de grandeur :

$$(\rho_a R^3 + \rho_l e R^2) \ddot{z} + \sqrt{\rho_a \eta_a R^3} |\dot{z}|^{\frac{3}{2}} + \gamma z = 0. \quad (7.67)$$

En adimensionnant à l'aide des échelles naturelles d'espace  $R$  et de temps  $T = \sqrt{(\rho_a R^3 + \rho_l e R^2) / \gamma}$ , cette équation différentielle s'exprime à présent comme :

$$\ddot{Z} + A |\dot{Z}|^{\frac{3}{2}} + Z = 0, \quad (7.68)$$

avec  $Z = z/R$ , et  $A$  un paramètre d'amortissement sans dimension s'écrivant :

$$A = \left( \frac{\eta_a^2}{\rho_a \gamma R \left(1 + \frac{\rho_l e}{\rho_a R}\right)^3} \right)^{\frac{1}{4}}. \quad (7.69)$$

Du fait de son caractère non linéaire, intégrons l'équation différentielle 7.68 numériquement. En reprenant la valeur  $R = 3$  cm associée au graphe de la figure 7.29, nous

obtenons  $A \simeq 0.025 \ll 1$ . Ainsi, le terme d'amortissement est négligeable devant les autres termes, la résolution numérique arborant de fait un très grand nombre d'oscillations. En prenant pour conditions initiales  $Z = 1$ ,  $\dot{Z} = 0$ , et en considérant que  $t = \tau_d$  lorsque l'amplitude est réduite de moitié, nous obtenons  $\tau_d \simeq 2.4 \cdot 10^4 T$ , alors que l'expérience donnait plutôt  $\tau_d \simeq 10T$  ! Il semble donc que cette modélisation soit insuffisante pour décrire l'amortissement des oscillations subies par le film. Nous pouvons supposer l'existence d'une autre source de dissipation dans des transferts d'énergie entre les différents modes d'oscillation du film.

## 4.2 Amincissement du film aux temps longs

Nous suivons à présent la dynamique d'amincissement du film au cours du temps. Par analogie avec le problème classique de Landau-Levich-Derjaguin, nous nous intéressons ici à déterminer la quantité de liquide emportée par le cadre au cours de sa remontée du bain, et comment cette quantité draine dans le temps. Du fait de la surprenante stabilité des films réalisées avec une solution suffisamment visqueuse (certains films peuvent tenir plus de 24 heures), nous nous intéressons ici au cas inviscide. Nous détaillons dans la suite deux tentatives de modélisation permettant de décrire la diminution de l'épaisseur  $e$  du film en fonction du temps.

### 4.2.1 1<sup>ère</sup> cause d'amincissement : drainage capillaire

Supposons dans toute cette partie que l'épaisseur  $e$  du film est homogène sur tout le cadre. Le ménisque situé sur le pourtour du cadre est, de par sa courbure, le siège d'une dépression d'après la loi de Young-Laplace. Ainsi, le gradient de pression résultant induit un écoulement radial dans le film, contribuant à diminuer son épaisseur [169, 170]. Écrivons donc le champ de vitesse associé à cet écoulement sous la forme :

$$\vec{u} = u_r(r, z)\vec{u}_r. \quad (7.70)$$

L'équation de Stokes appliquée dans le film et projetée selon  $\vec{u}_r$  s'écrit :

$$\frac{\partial p}{\partial r} = \eta_l \frac{\partial^2 u_r}{\partial z^2}, \quad (7.71)$$

en ayant légitimement négligé le terme  $\eta_l \partial^2 u_r / \partial r^2$ , du fait des ordres de grandeur en présence :  $e \ll R$ . L'intégration de cette équation conduit au profil parabolique de Poiseuille :

$$u_r(r, z) = \frac{1}{2\eta_l} \left( \frac{\partial p}{\partial r} \right) \left( z^2 - \frac{e^2}{4} \right) + U(r), \quad (7.72)$$

en ayant supposé l'existence d'une éventuelle vitesse de glissement sur les parois du film :  $u_r(r, \pm e/2) = U(r)$ . Le débit par unité de ligne se calcule comme :

$$q(r) = \int_{-e/2}^{e/2} u_r(r, z) dz = -\frac{e^3}{12\eta_l} \left( \frac{\partial p}{\partial r} \right) + U(r)e. \quad (7.73)$$

La conservation du volume implique que la déplétion, pendant un court instant  $dt$ , d'un volume liquide  $dV$  due à cet écoulement radial soit reliée à la variation d'épaisseur de du film par la relation :

$$dV = 2\pi r q(r) dt = -\pi r^2 de, \quad (7.74)$$

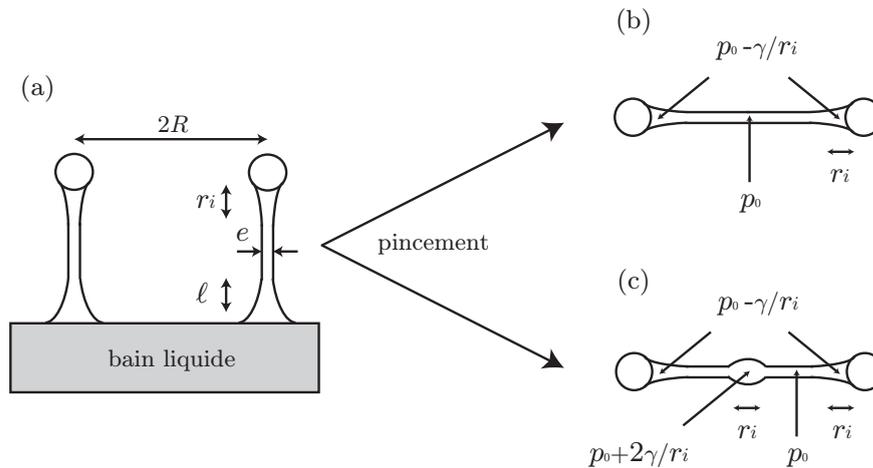


FIGURE 7.31: Schéma illustrant les gradients de pression en présence, selon deux scénarios, (b) et (c), différents. Ces derniers conduisent néanmoins au même comportement général.

soit :

$$\frac{de}{dt} = \dot{e} = \frac{1}{r} \left( \frac{e^3}{6\eta_l} \left( \frac{\partial p}{\partial r} \right) - 2U(r)e \right). \quad (7.75)$$

Intégrons cette relation afin de faire disparaître le gradient de pression :

$$\int_R^0 \frac{\partial p}{\partial r} dr = p(0) - p(R) = -\frac{3\eta_l \dot{e}}{e^3} R^2 + \frac{12\eta_l}{e^2} \int_R^0 U(r') dr'. \quad (7.76)$$

Or,  $p(0) = p_0$  et  $p(R) = p_0 - \gamma/r_i$ , où  $r_i$  correspond au rayon de courbure du ménisque (Fig. 7.31 (b)). Nous avons ici négligé d'éventuels effets de pression de disjonction<sup>8</sup>. En supposant pour simplifier l'interface infiniment rigide, soit une élasticité de surface nulle :  $U(r) = 0$  (le cas  $U \neq 0$  est beaucoup plus complexe à résoudre), l'épaisseur  $e$  est solution de l'équation différentielle suivante :

$$\dot{e} = -\frac{\gamma e^3}{3\eta_l r_i R^2}, \quad (7.77)$$

soit, en intégrant par séparation des variables :

$$-\frac{de}{e^3} = \frac{\gamma}{3\eta_l r_i R^2} dt, \quad (7.78)$$

$$\frac{1}{e^2} = \frac{1}{e_0^2} + \frac{2\gamma t}{3\eta_l r_i R^2}, \quad (7.79)$$

où  $e_0 = e(t = 0)$ .

#### 4.2.2 Comparaison avec l'expérience

Il reste à expliciter la valeur prise pour le rayon de courbure  $r_i$  du ménisque responsable du drainage, et comprendre de quoi il dépend. Afin de répondre à ces

8. Cette hypothèse est raisonnable tant que le film est suffisamment épais, typiquement  $e \geq 100$  nm. Nous verrons que ce critère est bien vérifié expérimentalement, le film de savon éclatant bien avant d'atteindre une telle épaisseur.

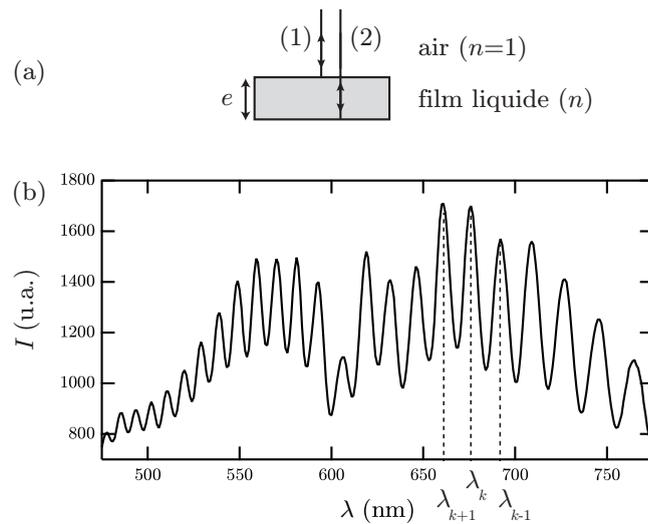


FIGURE 7.32: (a) Illustration de la différence de marche acquise entre les deux rayons. (b) Spectre cannelé. Les pics associés aux interférences constructives ne sont pas tous de même intensité, du fait du profil spectral non plat de la source. Notons également que les positions  $\lambda_k$  ne sont pas régulièrement réparties, de par la nature homographique de la relation 7.81.

questions, nous avons mesuré l'épaisseur du film de savon au cours du temps par interférométrie en utilisant un spectromètre (Avantes). En utilisant une source polychromatique, l'analyse de la lumière en réflexion du film de savon conduit à l'obtention d'un spectre cannelé (Fig. 7.32), dont les longueurs d'onde  $\lambda_k$  associées aux maxima d'intensité correspondent à des différences de marche induisant des interférences constructives. Puisque le rayon lumineux arrive en incidence normale au film, la condition d'interférence constructive s'écrit :

$$2ne + \frac{\lambda_k}{2} = k\lambda_k, \quad (7.80)$$

où le terme  $\lambda_k/2$  provient du déphasage supplémentaire  $\pi$  associé au rayon réfléchi à l'interface air/liquide. Il vient alors :

$$\frac{1}{\lambda_k} = \frac{k}{2ne} - \frac{1}{4ne}, \quad (7.81)$$

avec  $n \simeq 1.33$  l'indice de réfraction du liquide et  $k$  l'entier associé à la longueur d'onde  $\lambda_k$ . L'épaisseur peut donc être déduite d'une simple régression affine sur le graphe  $1/\lambda_k = f(k)$ . Nous avons par ailleurs vérifié la reproductibilité de l'expérience avec cette méthode de mesure.

La figure 7.33 montre les résultats de plusieurs séries expérimentales, pour un cadre de taille  $R$  fixée et différentes vitesses  $v$  d'ascension. Bien que chaque série semble dévier d'une tendance affine aux temps suffisamment longs (ce point est discuté dans la partie suivante), il est possible d'ajuster raisonnablement chaque série par une droite aux premiers instants, et de retrancher ensuite l'ordonnée à l'origine  $1/e_0^2$  tirée de l'ajustement de la quantité  $1/e^2$  en fonction de  $t$ . Pour un même rayon de

cadre, la pente de ces droites est une fonction décroissante de la vitesse. Au vu de l'équation 7.79, cela semble indiquer que  $r_i$  est une fonction croissante de la vitesse : d'emblée, ce constat exclut de choisir pour  $r_i$  l'échelle typique d'un ménisque statique donnée par  $\kappa^{-1}$ , puisque cette taille ne dépend pas de la vitesse. Il est possible d'interpréter ce résultat en reconsidérant le problème de Landau-Levich-Derjaguin. Celui-ci fournit une prédiction sur l'épaisseur du film, exploitée précédemment, mais également sur la taille typique du ménisque dynamique  $\ell \sim \kappa^{-1}C^{\frac{1}{3}}$  (Éq. 7.47, Éq. 7.49). En appliquant les mêmes équations de ce modèle au niveau du cadre, dont l'épaisseur est de l'ordre de la longueur capillaire, il est donc attendu que  $r_i \sim \ell$  soit la taille pertinente intervenant dans le gradient de pression capillaire moteur du processus. Ainsi, en prenant pour  $r_i$  cette taille typique  $\ell$  fournie par le problème de Landau-Levich-Derjaguin, la pente  $m$  des courbes  $1/e^2 = f(t)$  mesurée aux temps courts de l'amincissement est censée décroître avec la vitesse, en loi de puissance  $-1/3$  :

$$m \sim \frac{\gamma}{\eta\kappa^{-1}R^2} \left( \frac{\eta v}{\gamma} \right)^{-\frac{1}{3}}. \quad (7.82)$$

Testons cette prédiction en faisant tout d'abord varier la vitesse à  $R=7$  mm fixé. La tendance prédite, ainsi que le préfacteur associé sont en très bon accord avec les résultats expérimentaux présentés sur la figure 7.34 (a) : la loi de puissance tracée a pour équation  $m \simeq 1.1 \cdot 10^{-2}v^{-\frac{1}{3}}$ , alors que l'équation 7.82 prédit  $p \sim 1.0 \cdot 10^{-2}v^{-\frac{1}{3}}$ . Analysons maintenant la dépendance de  $m$  avec le rayon  $R$ , pour une vitesse fixée  $v = 5$  mm.s<sup>-1</sup>. La figure 7.34 (b) démontre un accord satisfaisant, avec un préfacteur de l'ordre de 2 en comparaison avec l'équation 7.82. Notons quand même la relative dispersion des résultats présentés, provenant en particulier de la méthode d'ajustement affine aux temps courts, assez sensible au choix de l'intervalle temporel sur lequel cet ajustement est effectué. Nous pouvons également supposer que de faibles effets de drainage gravitaire puissent rentrer en ligne de compte, les cadres n'étant pas parfaitement plans et horizontaux. Enfin, les mesures semblent faire apparaître un plateau aux petits cadres : cet effet de saturation peut éventuellement être attribué, d'après précédemment, à la nature du mécanisme de pincement, différente selon que  $R$  soit supérieur ou inférieur à  $R_{c,i}$ .

On pourrait également reconsidérer l'idée selon laquelle le processus de pincement ait pour conséquence de créer localement un surplus de liquide au centre du film plan. En supposant à nouveau que ce bourrelet s'établisse sur la taille caractéristique  $\ell$ , le gradient de pression en serait magnifié, comme le montre la figure 7.31 (c) : on peut alors imaginer que cet effet puisse justifier le préfacteur expérimental, tiré de la figure 7.34 (b), un peu plus élevé que celui attendu par l'équation 7.82. En guise de corrélation supplémentaire, la figure 7.34 (c) représente l'évolution de l'épaisseur au centre du cadre de rayon  $R = 7$  mm fixé, mesurée à  $t = 4$  s après le pincement afin de s'affranchir au maximum du drainage du film, en fonction de la vitesse. Le graphe fait apparaître une loi de puissance  $1/3$ , et non  $2/3$  comme le voudrait la loi de Frankel. Ceci pourrait corroborer ce dernier scénario, puisque  $\ell \sim \kappa^{-1}C^{\frac{1}{3}}$ . Comme la présence de ce bourrelet central se traduit seulement par la prise en compte d'un facteur multiplicatif supplémentaire dans l'analyse, et de fait ne change rien à l'interprétation physique du drainage, nous l'occultons dans la suite de cette étude.

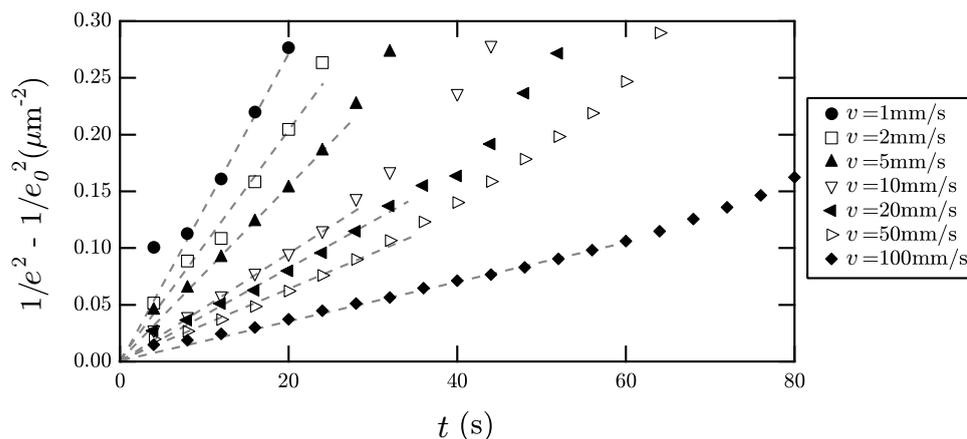


FIGURE 7.33: Amincissement du film : évolution de  $1/e^2 - 1/e_0^2$  en fonction du temps. Chaque jeu de symboles correspond à une vitesse fixée. Toutes les séries de mesures ont été réalisées avec un cadre de rayon  $R = 7$  mm. Aux temps courts, les droites en pointillés illustrent les tendances linéaires permettant d'ajuster les résultats expérimentaux selon l'équation 7.79.

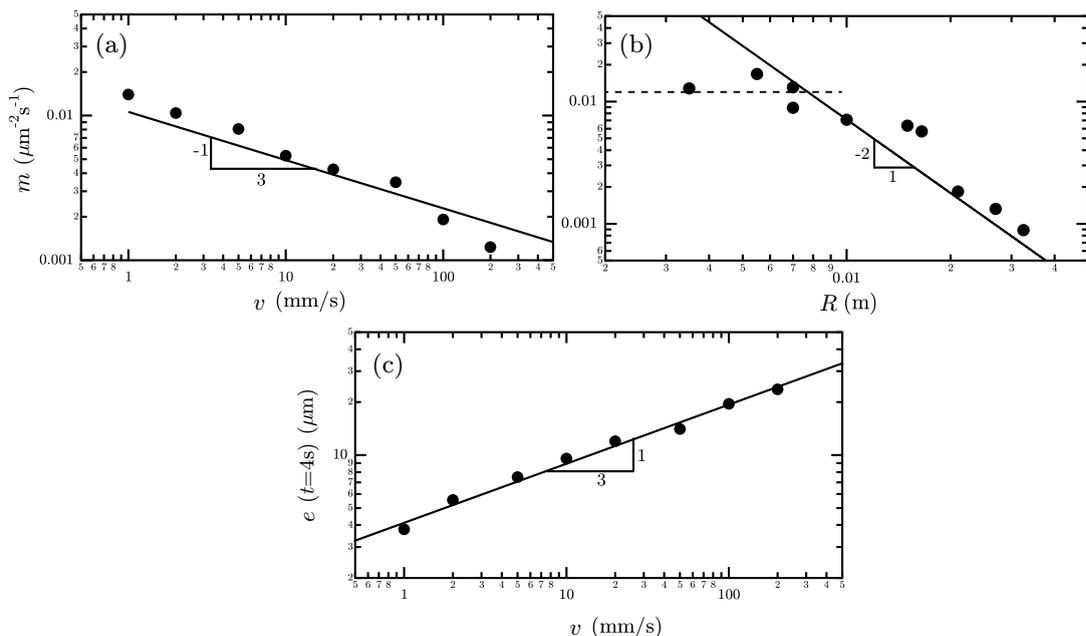


FIGURE 7.34: (a) Pente expérimentale des courbes de la figure 7.33 mesurée aux premiers instants en fonction de  $v$ , à  $R=7$  mm fixé. (b) Pente mesurée aux premiers instants en fonction de  $R$ , à  $v=5$  mm.s<sup>-1</sup> fixée. (c) Variation de l'épaisseur mesurée au centre du film à l'instant  $t = 4$  s en fonction de  $v$ , à  $R=7$  mm fixé.

La déviation observée aux temps longs suggère que l'amincissement du film s'effectue plus vite que ne le prévoit ce premier mécanisme de drainage capillaire. Nous proposons dans la suite de prendre en compte l'évaporation du film, cause possible de l'accélération du processus d'amincissement aux temps longs de la dynamique.

### 4.2.3 2<sup>nde</sup> cause d'amincissement : évaporation

Afin de tenir compte de l'évaporation, reprenons le bilan de matière décrit par l'équation 7.74, en supposant qu'il se soit évaporé, pendant  $dt$ , un volume  $2\pi r^2 J dt$ , où  $J$  correspond à la vitesse d'évaporation du liquide dans l'air, et le facteur 2 tient compte des deux faces du film. L'équation 7.74 devient donc :

$$2\pi r(q(r) + rJ)dt = -\pi r^2 de, \quad (7.83)$$

$$\frac{de}{dt} = \frac{e^3}{6\eta r} \left( \frac{\partial p}{\partial r} \right) - 2J, \quad (7.84)$$

en supposant à nouveau des interfaces rigides, soit une vitesse nulle sur les parois du film. En suivant une démarche analogue à la partie précédente, nous pouvons réécrire cette équation sous la forme :

$$\frac{de}{dt} = - \left( \frac{\gamma e^3}{3\eta r_i R^2} + 2J \right), \quad (7.85)$$

où le terme supplémentaire d'évaporation décuple effectivement le processus de diminution de l'épaisseur  $e$  au cours du temps. En-deçà d'une certaine épaisseur, le terme d'évaporation devient prépondérant devant le terme de drainage capillaire. En laissant ce dernier de côté dans la limite des films fins, la résolution est immédiate et conduit à une diminution affine de l'épaisseur en fonction du temps :

$$e = e_0 - 2Jt, \quad (7.86)$$

où  $e_0 = e(t = 0)$ . Ainsi, au-delà d'un certain temps, la diminution de l'épaisseur se produit à vitesse constante  $2J$ , cette vitesse étant notamment indépendante de  $R$  et de  $v$ .

### 4.2.4 Comparaison avec l'expérience

La figure 7.35 montre à nouveau les résultats expérimentaux de la figure 7.33, mais sous la forme  $e = f(t)$ . Au bout d'un certain temps, chaque série fait apparaître une dépendance affine de l'épaisseur avec le temps. Par ailleurs, les droites interpolant ces résultats aux temps suffisamment longs semblent grossièrement parallèles entre elles, démontrant que la vitesse d'évaporation est, conformément à l'analyse précédente, indépendante de  $v$ . Cette vitesse d'évaporation est de l'ordre de  $2 \cdot 10^{-2} \mu\text{m.s}^{-1}$ , ou de façon équivalente  $2 \text{ mm.jour}^{-1}$  : l'ordre de grandeur obtenu correspond en effet à ce que l'on pourrait attendre en laissant un verre d'eau s'évaporer au cours du temps à l'air libre. Bien entendu, nous oublions ici tout effet de température, d'humidité ou de présence de surfactants sur la valeur de  $J$ , mais son estimation, ainsi que la dépendance affine de  $e$  avec  $t$  semblent en bon accord avec les arguments simples décrits auparavant.

### 4.2.5 Prise en compte des deux mécanismes d'amincissement

En conservant à présent les deux contributions responsables de l'amincissement du film, établissons une version adimensionnée de l'équation 7.85 :

$$\frac{de}{dt} = - \frac{\gamma}{3\eta r_i R^2} (e^3 + \beta^3), \quad (7.87)$$

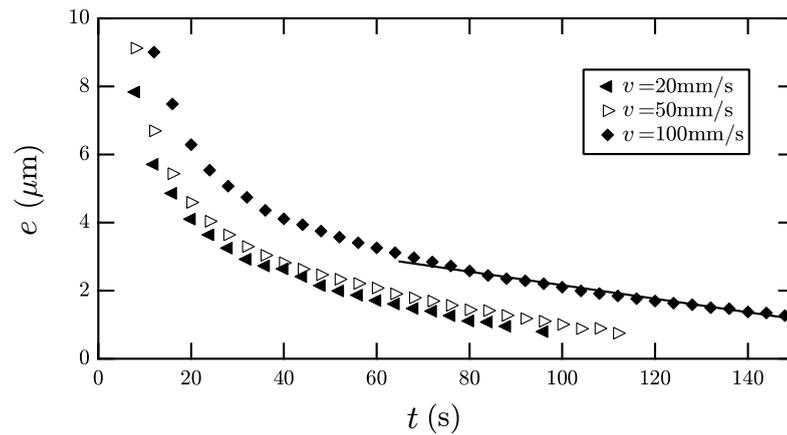


FIGURE 7.35: Évolution de l'épaisseur en fonction du temps. Chaque jeu de symboles correspond à une vitesse fixée. Toutes les séries ont été mesurées avec un cadre de rayon  $R = 7$  mm. Aux temps longs, chaque série semble se comporter selon une loi affine du temps, dont la pente ne dépend pas de  $v$  de façon notable.

avec  $\beta = (6\eta r_i R^2 J / \gamma)^{\frac{1}{3}}$ . En posant ensuite  $\tau = 3\eta r_i R^2 / (\gamma \beta^2)$ , il vient :

$$\frac{\beta^2 de}{e^3 + \beta^3} = -\frac{dt}{\tau}, \quad (7.88)$$

soit, avec l'adimensionnement par les quantités  $E = e/\beta$ ,  $T = t/\tau$  :

$$\frac{dE}{E^3 + 1} = -dT. \quad (7.89)$$

En vue d'intégrer par séparation des variables  $E$  et  $T$ , il est nécessaire de décomposer le terme de gauche en pôles. On peut montrer que :

$$\frac{1}{E^3 + 1} = \frac{1}{(E + 1)(E^2 - E + 1)} = \frac{1}{3(E + 1)} + \frac{2 - E}{3(E^2 - E + 1)}. \quad (7.90)$$

Le premier terme va faire émerger un logarithme, alors que le second terme va faire émerger une composée d'une arctangente et d'un logarithme :

$$\int_{E_0}^E \left( \frac{1}{3(E + 1)} + \frac{1/2 - 2(E - 1/2)/6}{(E - 1/2)^2 + 3/4} \right) dE = - \int_0^T dT, \quad (7.91)$$

$$\left[ \frac{\ln(E + 1)}{3} + \frac{\arctan((2E - 1)/\sqrt{3})}{\sqrt{3}} - \frac{\ln((E - 1/2)^2 + 3/4)}{6} \right]_{E_0}^E = [T]_0^T. \quad (7.92)$$

Ce résultat peut donc s'exprimer sous la forme  $T = f(E)$  suivante :

$$T = \frac{1}{6} \ln \left( \frac{(E - 1/2)^2 + 3/4}{(E_0 - 1/2)^2 + 3/4} \frac{(E_0 + 1)^2}{(E + 1)^2} \right) + \frac{\arctan \frac{2E_0 - 1}{\sqrt{3}} - \arctan \frac{2E - 1}{\sqrt{3}}}{\sqrt{3}}. \quad (7.93)$$

En dépit du caractère plutôt opaque de cette solution, retenons que  $\beta$ , défini plus haut, joue le rôle d'une épaisseur critique séparant les deux régimes d'amincissement

du film identifiés ci-dessus. Nous l'estimons en reprenant les valeurs extraites des données expérimentales présentées sur les figures 7.33 et 7.35. L'estimation obtenue,  $\beta \simeq 2-3 \mu\text{m}$ , est en accord raisonnable avec les résultats expérimentaux. Il est à noter que cette taille est relativement insensible à la vitesse  $v$ , puisqu'elle n'intervient qu'à la puissance  $1/9$  par le biais du terme  $r_i^{\frac{1}{3}}$ .

## 5 Conclusion

Nous avons décrit dans ce chapitre les différents processus dynamiques mis en jeu dans l'effondrement d'une demi-caténoïde symétrique. En contraste avec l'approche analytique quasi-statique menée dans le chapitre précédent, nous avons ici tenté d'identifier les échelles de taille, de vitesse, de viscosité et d'épaisseur pertinentes dans ce problème à partir d'arguments simples tirés de lois d'échelle. En omettant intentionnellement les éventuels préfacteurs numériques de l'ordre de l'unité, les comportements observés sont en accord satisfaisant avec l'analyse développée.

Pour aller plus loin dans ces aspects dynamiques de création d'interface, nous avons également tenté de « renverser » l'expérience : en repartant de l'anneau sur lequel s'appuie un film plan suite au pincement de la caténoïde, il est possible de lui imposer une vitesse de descente jusqu'à son immersion totale dans le bain liquide. Ce procédé conduit éventuellement à la formation d'une nouvelle bulle interfaciale à partir du film plan tendu sur le cadre. Nous en présentons les résultats et proposons une modélisation dans le chapitre suivant.

## Chapitre 8

# Formation d'une bulle interfaciale par immersion d'un film plan dans un bain liquide

Afin de prolonger l'étude effectuée dans le chapitre précédent, nous nous intéressons ici à la formation d'une bulle interfaciale au cours de l'immersion d'un film plan, tendu sur un cadre circulaire, dans un bain liquide (Fig. 8.1). Ce travail comporte certaines similarités avec d'autres modes de piégeage d'air, lors de l'impact d'une goutte de pluie sur l'océan [171] ou d'une gouttelette sur une surface solide [172, 173] accompagné de l'éventuelle apparition d'un phénomène de *splash* [174, 175, 176, 177, 178], ou encore au cours de la plongée d'un jet visqueux [179, 180] ou d'une lame solide [181] dans un liquide visqueux. Le caractère déformable du film liquide, à l'origine de la formation d'une bulle interfaciale dans notre étude, a également fait l'objet de travaux à de plus petites échelles par l'utilisation de la microscopie à force atomique [182, 183, 184]. Souvent recherchée, la formation d'une bulle peut également parfois devenir gênante, dans l'industrie comme dans la vie quotidienne lors de la pose d'une lentille de contact sur l'œil par exemple. Nous étudions le problème expérimentalement et proposons deux mécanismes tentant de rationaliser nos observations. Nous montrons que ces deux mécanismes sont complémentaires et établissons un critère permettant de prédire la prédominance de l'un ou l'autre de ces régimes en fonction des paramètres pertinents du problème.

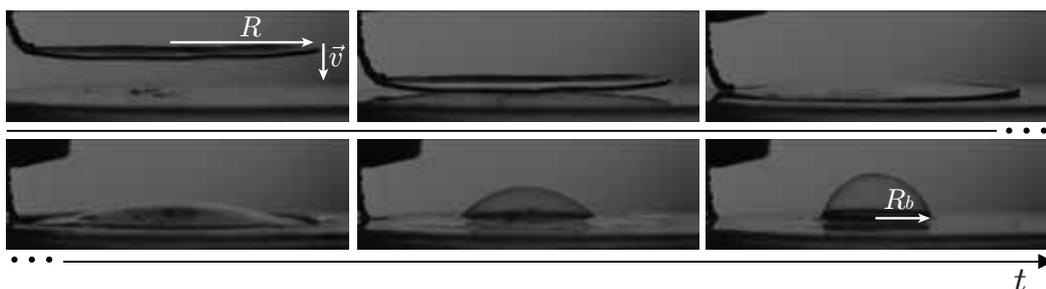


FIGURE 8.1: Photos expérimentales illustrant la formation d'une bulle interfaciale de rayon  $R_b$  au cours de l'immersion d'un film plan dans un bain liquide, parallèlement à sa surface. Cette expérience a été effectuée avec un cadre de rayon  $R=2.7$  cm soumis à une vitesse de descente  $v=1.5$  cm.s<sup>-1</sup>, et une solution de PDMS de viscosité dynamique 6.4 Pa.s.

## 1 Analyse dimensionnelle préliminaire

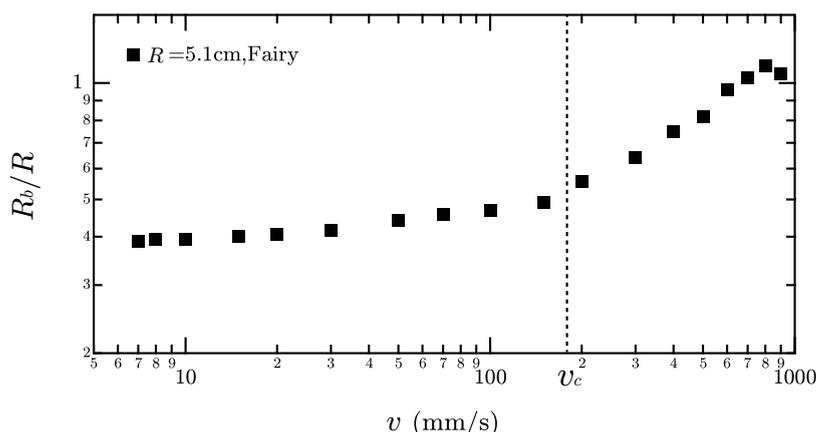


FIGURE 8.2: Évolution de la taille  $R_b$  de la bulle créée, normalisée par le rayon  $R$  du cadre, en fonction de la vitesse  $v$ , avec  $R=5.1$  cm et la solution d'eau savonneuse décrite dans le chapitre précédent. Deux régimes différents se distinguent selon la valeur de  $v$ , avec une vitesse critique de transition  $v_c$  de l'ordre de 200 mm.s<sup>-1</sup>.

Nous allons supposer que ce phénomène ne dépend pas de la viscosité du liquide, mais plutôt des caractéristiques liées à l'air emprisonné : sa masse volumique  $\rho_a$ , sa viscosité dynamique  $\eta_a$ , ainsi que la tension de surface air/liquide  $\gamma$ . Comme dans le chapitre précédent, notons respectivement  $R$  et  $R_b$  les rayons du cadre et de la bulle interfaciale formée ;  $v$  désigne à présent la vitesse de descente du cadre. À partir des six quantités pertinentes du problème ( $R_b, R, v, \gamma, \rho_a, \eta_a$ ), nous pouvons donc écrire, d'après le théorème de Vaschy-Buckingham, trois nombres adimensionnés : choisissons par exemple le rapport  $R_b/R$ , le nombre de Weber  $We = \rho_a v^2 R / \gamma$  et le nombre capillaire  $C = \eta_a v / \gamma$ . De fait, la relation recherchée  $R_b = f(R, v, \gamma, \rho_a, \eta_a)$  peut se réécrire comme  $R_b/R = F(We, C)$ , où la présence de deux groupements adimensionnels en arguments de la fonction inconnue  $F$  laisse présager l'existence de deux régimes différents : inertio-capillaire ( $We$ ) pour l'un, visco-capillaire ( $C$ )

pour l'autre. Cette analyse semble en accord avec le jeu de données expérimentales présenté sur la figure 8.2, pour lequel la quantité  $R_b/R$  varie très lentement aux faibles vitesses, puis plus rapidement aux hautes vitesses. Tentons d'interpréter dans la suite les mécanismes physiques à l'origine de ces deux régimes.

## 2 Mécanisme inertio-capillaire

Nous nous orientons dans un premier temps vers un mécanisme mettant en compétition les effets capillaires et l'inertie de l'air, et permettant de rendre compte des résultats obtenus à haute vitesse. Dans le référentiel de l'anneau, le film de savon voit, jusqu'à son immersion totale dans le bain liquide, un écoulement frontal d'air de vitesse homogène  $v$  venant le déformer. Dans cette partie, nous proposons de négliger en première approche d'éventuels effets de couche limite et de dissipation visqueuse dans cet écoulement. L'évaluation du nombre de Reynolds dans l'écoulement d'air, avec pour taille caractéristique le rayon du cadre  $R$ , donne avec des valeurs typiques  $R=5$  cm et  $v=0.3$  m.s<sup>-1</sup>,  $Re = \rho_a v R / \eta_a \simeq 1000$ . En assimilant l'écoulement de l'air à celui d'un fluide parfait, écrivons alors la relation de Bernoulli sur la ligne de courant verticale passant par le centre du cadre :

$$\frac{\rho_a v^2}{2} + p_0 = p_0 + \frac{4\gamma}{r}, \quad (8.1)$$

$$r = \frac{8\gamma}{\rho_a v^2}, \quad (8.2)$$

où  $p_0$  et  $r$  désignent respectivement la pression atmosphérique et le rayon de courbure du film. En faisant intervenir le nombre de Weber  $We$  construit sur la taille du cadre, il vient :

$$\frac{R}{r} = \frac{\rho_a v^2 R}{8\gamma} = \frac{We}{8}. \quad (8.3)$$

Cette relation, traduisant la déformation du film liquide par l'inertie de l'air, sera à nouveau utilisée dans le chapitre suivant. Une vitesse  $v$  homogène correspond ainsi à un rayon de courbure  $r$  homogène sur la surface du film. L'air enfermé dans la bulle interfaciale finale<sup>1</sup> est donc, par conservation du volume<sup>2</sup>, celui piégé dans une calotte sphérique caractérisée par les paramètres  $R$  et  $r$ . Comme discuté dans le préambule de la seconde partie, le changement de conformation du film, de la calotte à la demi-bulle, s'accompagne d'une diminution de sa surface. Pour faire le lien avec le chapitre précédent, nous avons vérifié que les échelles de temps impliquées dans ce changement de conformation suivent des comportements analogues, variant comme  $\sqrt{\rho_a R^3 / \gamma}$  dans le cas inviscide, et comme  $\eta_l R / \gamma$  dans le cas visqueux. Calculons le volume  $\mathcal{V}$  de la calotte en coordonnées sphériques  $(\rho, \theta, \varphi)$  (Fig. 8.3) :

$$\mathcal{V} = \int_{\frac{\sqrt{r^2 - R^2}}{\cos \theta}}^r \int_0^{\arcsin \frac{R}{r}} \int_0^{2\pi} \rho^2 d\rho \sin \theta d\theta d\varphi. \quad (8.4)$$

Par axisymétrie, l'intégrale portant sur  $\varphi$  est immédiate. Puisque les bornes de

---

1. Dans la suite, nous supposons cette bulle parfaitement hémisphérique et négligeons le volume d'air contenu dans sa partie immergée. Cette hypothèse semble raisonnable, compte tenu des valeurs typiques du rayon  $R$ , de l'ordre ou supérieur au centimètre.

2. Les vitesses mises en jeu étant petites devant la vitesse du son dans l'air  $c_s \simeq 340$  m.s<sup>-1</sup>, l'hypothèse d'incompressibilité de l'air est largement validée.

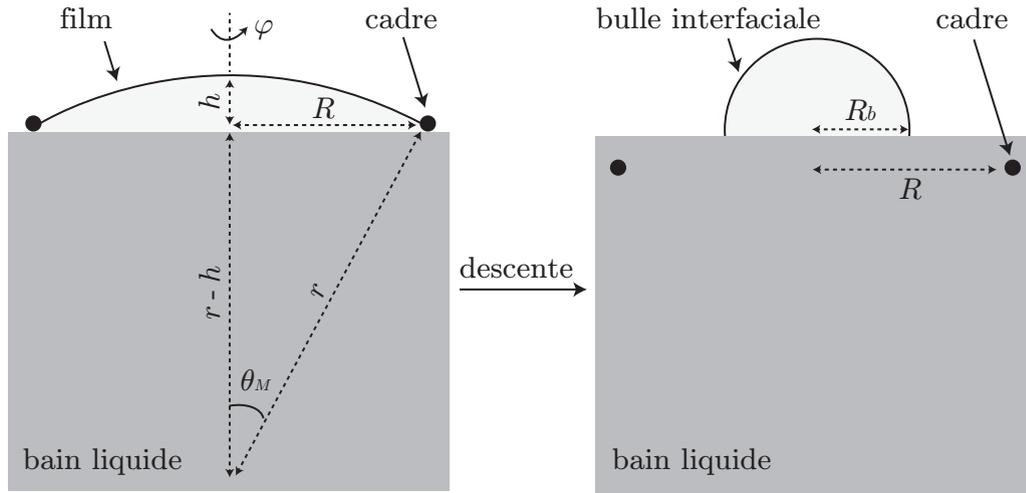


FIGURE 8.3: Par conservation de son volume, l'air emprisonné dans la calotte sphérique se retrouve dans la bulle interfaciale.

l'intégrale radiale dépendent de  $\theta$ , nous la calculons avant l'intégrale portant sur  $\theta$  :

$$\mathcal{V} = \frac{2\pi r^3}{3} \int_0^{\arcsin \frac{R}{r}} \left( 1 - \frac{\left(1 - \left(\frac{R}{r}\right)^2\right)^{\frac{3}{2}}}{\cos^3 \theta} \right) \sin \theta d\theta, \quad (8.5)$$

$$\mathcal{V} = \mathcal{V}_1 - \mathcal{V}_2, \quad (8.6)$$

où nous décomposons le calcul de l'intégrale en deux termes. Le premier terme s'intègre et se réécrit simplement à l'aide des identités trigonométriques :

$$\mathcal{V}_1 = \frac{2\pi r^3}{3} \int_0^{\arcsin \frac{R}{r}} \sin \theta d\theta, \quad (8.7)$$

$$\mathcal{V}_1 = \frac{2\pi r^3}{3} \left( 1 - \sqrt{1 - \left(\frac{R}{r}\right)^2} \right). \quad (8.8)$$

En remarquant que  $\sin \theta d\theta = -d(\cos \theta)$ , le second terme s'intègre en effectuant le changement de variable  $u = \cos \theta$  :

$$\mathcal{V}_2 = \frac{2\pi r^3 \left(1 - \left(\frac{R}{r}\right)^2\right)^{\frac{3}{2}}}{3} \int_{\cos(\arcsin \frac{R}{r})}^1 \frac{du}{u^3}, \quad (8.9)$$

$$\mathcal{V}_2 = \frac{\pi r^3 \sqrt{1 - \left(\frac{R}{r}\right)^2}}{3} \left(\frac{R}{r}\right)^2. \quad (8.10)$$

Finalement :

$$\mathcal{V} = \mathcal{V}_1 - \mathcal{V}_2 = \frac{2\pi r^3}{3} \left[ 1 - \sqrt{1 - \left(\frac{R}{r}\right)^2} \left( 1 + \frac{1}{2} \left(\frac{R}{r}\right)^2 \right) \right]. \quad (8.11)$$

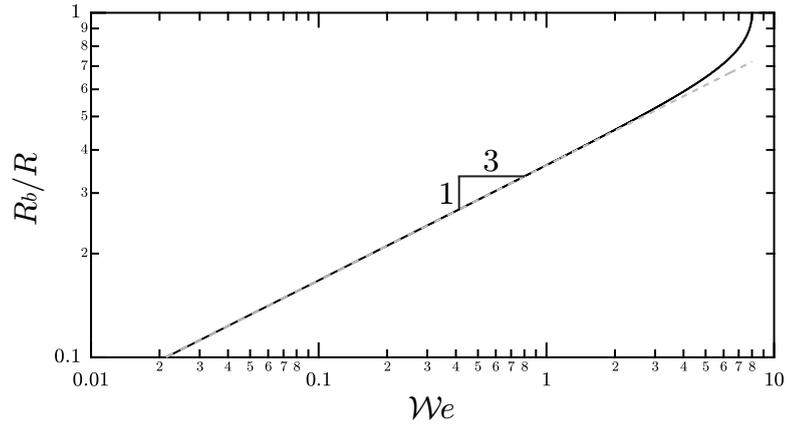


FIGURE 8.4: Variation de  $R_b/R$  avec le nombre de Weber  $We$ . La courbe noire correspond à la prédiction tirée de la relation 8.13. la droite en pointillés gris, associée à la forme simplifiée de l'équation 8.16, ajuste bien cette évolution pour des nombres de Weber pas trop grands.

Il est rassurant de vérifier que  $\mathcal{V}=0$  si  $R=0$  ou  $r=0$ , et  $\mathcal{V}=2\pi R^3/3$  si  $r=R$  (volume d'une demi-sphère de rayon  $R$ ). Ce volume est donc celui de la bulle interfaciale, supposée hémisphérique et de rayon  $R_b$ ,  $\mathcal{V} = 2\pi R_b^3/3$ , soit finalement :

$$R_b = r \left[ 1 - \sqrt{1 - \left(\frac{R}{r}\right)^2 \left(1 + \frac{1}{2} \left(\frac{R}{r}\right)^2\right)} \right]^{\frac{1}{3}}, \quad (8.12)$$

$$\frac{R_b}{R} = \frac{8}{We} \left[ 1 - \sqrt{1 - \frac{We^2}{64} \left(1 + \frac{We^2}{128}\right)} \right]^{\frac{1}{3}}. \quad (8.13)$$

Ce modèle très simple décrit la croissance de la taille de la bulle interfaciale avec le nombre de Weber  $We$ . En représentant cette évolution en échelle logarithmique (Fig. 8.4), nous observons un comportement en loi de puissance  $1/3$  tant que  $We$  n'est pas trop grand, typiquement devant quelques unités et correspondant à la gamme expérimentale sondée. Tentons donc d'obtenir une relation plus simple valable pour les petits nombres de Weber, soit pour des bulles suffisamment petites. Par un développement limité de l'équation 8.13, il vient :

$$\frac{R_b}{R} \simeq \frac{8}{We} \left[ 1 - \left(1 - \frac{We^2}{128} - \frac{We^4}{32768}\right) \left(1 + \frac{We^2}{128}\right) \right]^{\frac{1}{3}}, \quad (8.14)$$

$$\frac{R_b}{R} \simeq \frac{8}{We} \left[ We^4 \left( \frac{1}{16384} + \frac{1}{32768} \right) \right]^{\frac{1}{3}}, \quad (8.15)$$

$$\frac{R_b}{R} \simeq \frac{3^{\frac{1}{3}}}{4} We^{\frac{1}{3}}. \quad (8.16)$$

Cette loi de puissance asymptotique peut être retrouvée à partir d'arguments en lois d'échelle. La hauteur  $h$  de la calotte sphérique « aplatie » est liée aux longueurs  $R$  et

$r$  par l'approximation parabolique classique obtenue après application du théorème de Pythagore (Fig. 8.3) :

$$(r - h)^2 + R^2 = r^2, \quad (8.17)$$

$$h \sim \frac{R^2}{r}. \quad (8.18)$$

La conservation du volume d'air se réécrit donc :

$$R^2 h \sim \frac{R^4}{r} \sim R_b^3, \quad (8.19)$$

soit, en réutilisant l'équation 8.3 :

$$\frac{R_b}{R} \sim \left(\frac{R}{r}\right)^{\frac{1}{3}} \sim \mathcal{W}e^{\frac{1}{3}}. \quad (8.20)$$

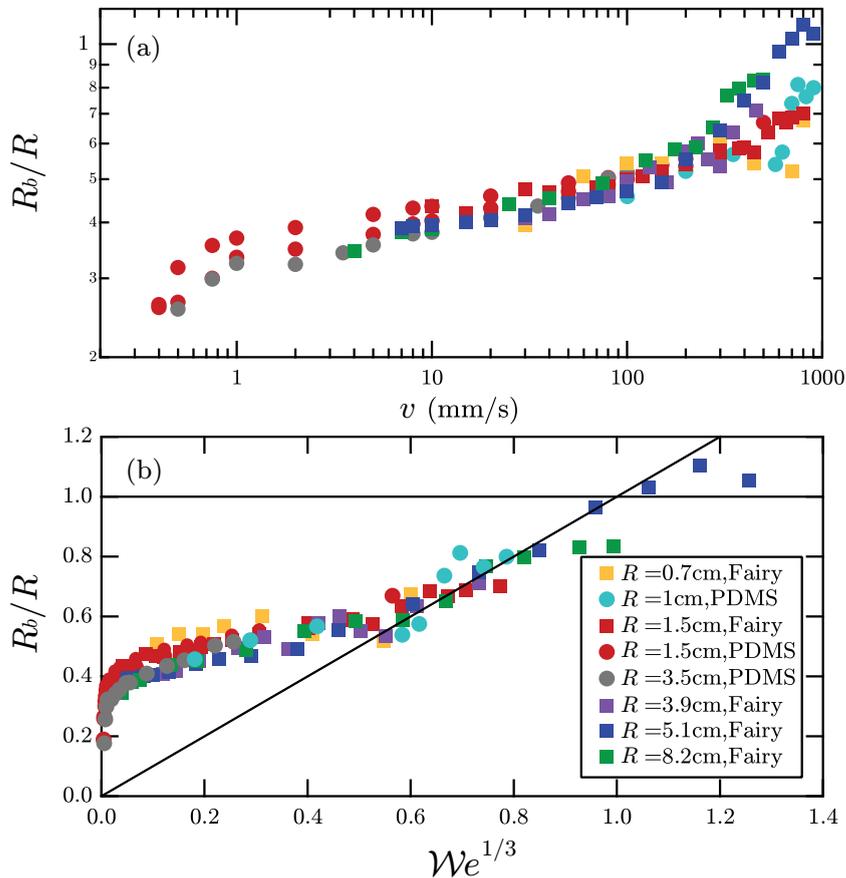


FIGURE 8.5: Évolution de  $R_b/R$  avec  $v$  (a) et  $\mathcal{W}e^{\frac{1}{3}}$  (b) (voir Éq. 8.20). Chaque jeu de symboles correspond à un rayon  $R$  et une solution fixés.

Testons expérimentalement cette prédiction en reportant l'évolution de la quantité  $R_b/R$  en fonction de  $v$  (Fig. 8.5 (a)) et  $\mathcal{W}e^{\frac{1}{3}}$  (Fig. 8.5 (b)). Dans cette seconde représentation, les différents jeux de mesures se rassemblent assez bien autour de

la tendance linéaire de pente unité aux nombres de Weber assez grands (de l'ordre de 1) : l'accord est donc plutôt satisfaisant compte tenu de la simplicité de la démarche adoptée. La stationnarité de l'écoulement reste effectivement une hypothèse assez forte, les vidéos expérimentales faisant souvent apparaître des oscillations du film liquide aux vitesses mises en jeu dans ce régime inertiel. Par ailleurs, quelques séries expérimentales semblent subir une légère déviation inférieure par rapport à la prédiction aux grands nombres de Weber. Nous le justifions en remarquant que  $R$  joue le rôle de taille de coupure pour le système, fixant la taille maximale de la bulle interfaciale que l'on peut former par ce procédé.

Ce premier mécanisme inertio-capillaire ne parvient pas à décrire les résultats expérimentaux lorsque le nombre de Weber, soit encore la vitesse de descente, est trop faible (Fig. 8.5). Partant de ce constat, tentons de proposer un second mécanisme visco-capillaire.

### 3 Mécanisme visco-capillaire

La faille du raisonnement précédent aux basses vitesses se situe probablement lors de l'évaluation du nombre de Reynolds dans l'écoulement d'air. La taille pertinente de cet écoulement n'est pas  $R$ , mais plutôt la hauteur  $h$  de la calotte sphérique sous laquelle le profil de vitesse de l'air se développe. Cette hauteur étant généralement très inférieure à  $R$ , le nombre de Reynolds est de fait bien plus petit que celui estimé initialement. Cette remarque suggère désormais de tenir compte des termes visqueux au détriment des termes inertiels dans l'équation de Navier-Stokes, et d'appliquer l'équation de la lubrification à la fine couche d'air d'épaisseur  $H$  située entre le film et le bain [23]. Cette équation, pouvant s'interpréter comme une extension de la loi de Hagen-Poiseuille dans le cas d'un canal de section lentement variable dans le temps et l'espace, s'écrit :

$$\frac{\partial H}{\partial t} - \frac{1}{12\eta_a x} \frac{\partial}{\partial x} \left( x H^3 \frac{\partial p}{\partial x} \right) = 0, \quad (8.21)$$

où nous appelons  $x$  la coordonnée radiale, afin de ne pas la confondre avec le rayon de courbure  $r$  de la calotte sphérique déjà introduit auparavant et réapparaissant dans la suite. En contraste avec le régime inertiel, les expériences montrent que lorsque  $v < v_c$ , le film liquide reste rigoureusement plan juste avant son affleurement à la surface libre du bain. Ainsi, nous supposerons dans un premier temps la rigidité de ce film, avec pour conséquence le fait que la hauteur  $H$  ne dépende pas, ou peu, de  $x$  et vérifie la condition  $\partial H / \partial t = -v$ . Cette hypothèse de rigidité est expérimentalement confortée par le fait que la taille de la bulle interfaciale formée ne dépende pas drastiquement de la hauteur initiale  $H_0$  séparant le cadre du bain (voir Fig. 8.6). Il vient alors :

$$\frac{\partial}{\partial x} \left( x \frac{\partial p}{\partial x} \right) = -\frac{12\eta_a v x}{H^3}, \quad (8.22)$$

$$\frac{\partial p}{\partial x} = -\frac{6\eta_a v x}{H^3}, \quad (8.23)$$

en ayant imposé  $\partial p / \partial x (x = 0) = 0$  par symétrie, et pour éviter une divergence de la pression et de sa dérivée première en  $x = 0$ . Une nouvelle intégration fournit le

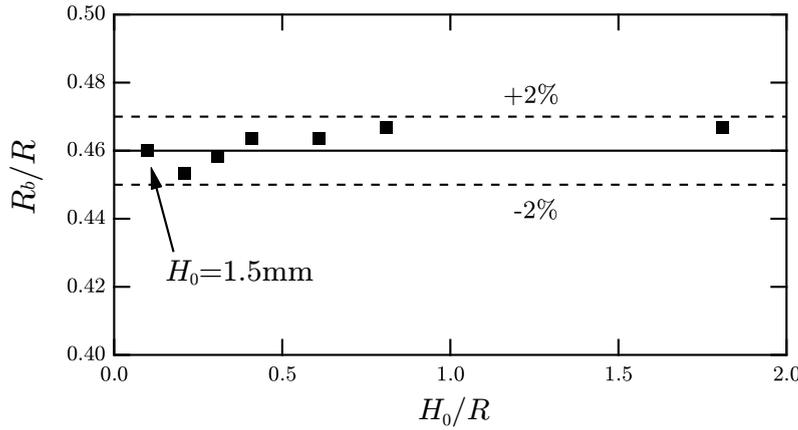


FIGURE 8.6: Taille de la bulle interfaciale normalisée par  $R$  en fonction du ratio  $H_0/R$ , avec  $H_0$  la hauteur initiale séparant l'anneau du bain. Les mesures ont été effectuées avec la solution savonneuse et un cadre de rayon  $R = 1.5$  cm descendant à une vitesse  $v = 5$  cm.s<sup>-1</sup>.

profil radial de pression :

$$p(x) = p_0 + \frac{3\eta_a v (R^2 - x^2)}{H^3}, \quad (8.24)$$

en ayant imposé  $p(x=R) = p_0$  aux extrémités du cadre. Lorsque le cadre se rapproche du bain, la hauteur  $H$  diminue et la pression  $p$  augmente. À la limite  $H \rightarrow 0$ , la pression est censée diverger à l'infini : cette divergence n'est pas acceptable physiquement, l'argument habituellement invoqué étant de prendre en compte les forces supplémentaires de van der Waals lorsque  $H$  devient de l'ordre de grandeur de la portée de ces forces. Dans le cas présent, et bien avant d'atteindre de si petites échelles, la surpression engendrée entre le film et le bain va autoriser le film à se déformer légèrement. En repassant en loi d'échelle, et en notant à nouveau  $r$  le rayon de courbure de ce film, ce processus se traduit à l'aide de la loi de Young-Laplace par l'équivalence :

$$\frac{\eta_a v R^2}{H^3} \sim \frac{\gamma}{r}. \quad (8.25)$$

En exploitant le fait que  $H$  dépend faiblement de  $x$ , nous pouvons à nouveau considérer que le film venant emprisonner de l'air adopte par symétrie la forme d'une calotte sphérique « aplatie », de hauteur notée  $h$ . En utilisant encore l'approximation parabolique  $h \sim R^2/r$ , il s'ensuit alors :

$$\frac{\eta_a v R^2}{H^3} \sim \frac{\gamma h}{R^2}. \quad (8.26)$$

Lorsque les extrémités du cadre atteignent le bain liquide, nous admettrons que les dimensions verticales deviennent du même ordre :  $H \sim h$ . Il vient donc :

$$\frac{r}{R} \sim \mathcal{C}^{-\frac{1}{4}}, \quad (8.27)$$

où nous identifions le nombre capillaire  $\mathcal{C} = \eta_a v / \gamma$  comme le nouveau nombre adimensionné pertinent de ce mécanisme. Il est intéressant de remarquer que, contrairement à la première partie relative à la microfluidique, ce nombre capillaire est à

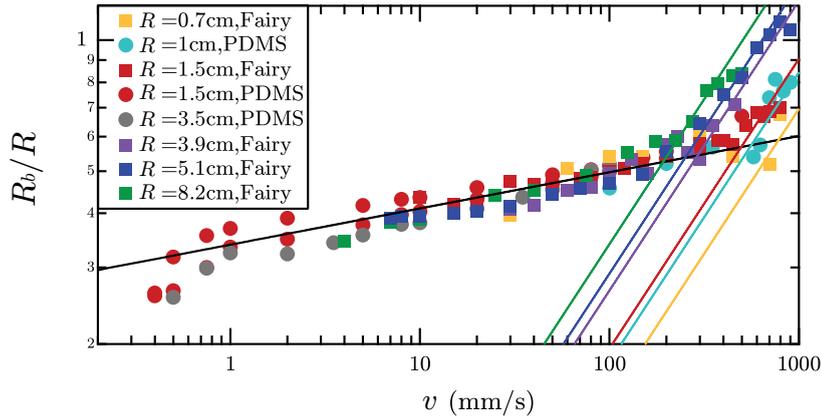


FIGURE 8.7: Évolution de  $R_b/R$  en fonction de  $v$ , dans différentes conditions expérimentales (taille du cadre, solution utilisée). Aux hautes vitesses (mécanisme inertio-capillaire), les droites tracées sont tirées de l'équation 8.20 assortie d'un préfacteur égal à 1. Aux faibles vitesses (mécanisme visco-capillaire), la droite tracée est tirée de l'équation 8.28, multipliée par un préfacteur égal à 1.08.

présent construit avec la viscosité dynamique de l'air, environ 50 fois inférieure à celle de l'eau à température ambiante. Ainsi, contrairement à notre expérience quotidienne des écoulements d'air principalement inertiels (le vent gonflant une voile de bateau, le jet d'air provenant d'un sèche-cheveux), notons de façon surprenante que l'air peut parfois se comporter comme un fluide visqueux dès lors que le nombre de Reynolds associé à l'écoulement devient suffisamment petit<sup>3</sup>. Il reste à relier  $r$  à  $R_b$  en écrivant comme précédemment la conservation du volume d'air,  $R^2 h \sim R^4/r \sim R_b^3$ , soit donc :

$$\frac{R_b}{R} \sim \left( \frac{R}{r} \right)^{\frac{1}{3}} \sim \mathcal{C}^{\frac{1}{12}}. \quad (8.28)$$

La puissance engagée dans la dépendance en vitesse ( $R_b \propto v^{\frac{1}{12}}$ ) *via* le nombre capillaire est à présent beaucoup plus faible que celle obtenue dans le mécanisme inertio-capillaire ( $R_b \propto v^{\frac{2}{3}}$ ). La comparaison avec les résultats expérimentaux est très satisfaisante, aussi bien au niveau de la loi de puissance que de son préfacteur<sup>4</sup> (Fig. 8.7). Ces résultats démontrent en particulier que la taille de la bulle interfaciale formée est indépendante de la viscosité du liquide considéré. Nous aurons l'occasion de discuter et d'interpréter la déviation observée vers des tailles  $R_b$  plus petites que celles attendues aux vitesses très faibles dans un paragraphe ultérieur.

Afin de montrer que l'épaisseur du film joue un rôle négligeable dans ce mécanisme, nous avons reproduit cette expérience en observant un temps d'attente  $\tau = 0 - 40$  s

3. Outre une gamme de vitesse plus faible dans ce régime visco-capillaire, la taille pertinente de l'écoulement n'est plus  $R$ , mais plutôt la hauteur  $h$  de la calotte sphérique sous laquelle le profil de vitesse de l'air se développe. Avec  $R=5$  cm et  $v=2$  cm.s<sup>-1</sup>, l'évaluation de  $h$  à l'aide de l'approximation parabolique et de la relation 8.27 nous permet d'obtenir un nombre de Reynolds  $Re = \rho_a v h / \eta_a \simeq 4$ , effectivement très inférieur à celui estimé en régime inertio-capillaire.

4. En toute rigueur, le préfacteur devrait être différent pour les deux solutions ( $\gamma = 25$  mN.m<sup>-1</sup> pour la solution savonneuse,  $\gamma = 20$  mN.m<sup>-1</sup> pour le PDMS), mais la très faible puissance 1/12 rend cet effet ridiculement petit devant la dispersion des points expérimentaux.

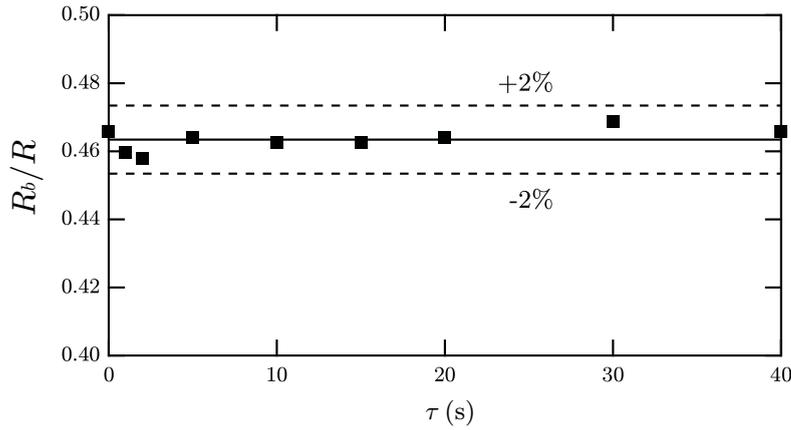


FIGURE 8.8: Taille de la bulle interfaciale normalisée par  $R$  en fonction du temps d'attente  $\tau$ . Les mesures ont été effectuées avec la solution savonneuse et un cadre de rayon  $R = 1.5$  cm descendant à une vitesse  $v = 5$  cm.s<sup>-1</sup>.

permettant au film de drainer. En travaillant sur les échelles de temps caractéristiques de drainage de la solution savonneuse obtenues dans le chapitre précédent, la figure 8.8 montre que pour tous autres paramètres maintenus constants par ailleurs,  $R_b/R$  est effectivement indépendant de  $\tau$ . Ce mécanisme visco-capillaire au sein de la mince couche d'air semble donc très bien décrire la création de bulle interfaciale aux faibles vitesses.

Vérifions *a posteriori* la validité de l'approximation parabolique  $h \sim R^2/r$ , obtenue en supposant la calotte sphérique « aplatie ». Cette hypothèse est valable tant que la hauteur  $h$  reste très petite devant  $R$ . Or, l'utilisation combinée de l'approximation parabolique et de l'équation 8.27 permet d'obtenir  $h \sim R\mathcal{C}^{\frac{1}{4}}$ . Au vu des nombres capillaires mis en jeu dans les expériences,  $\mathcal{C} \simeq 10^{-6} - 10^{-3}$ , nous obtenons  $h \simeq [0.03 - 0.18]R$  : l'hypothèse de calotte sphérique « aplatie » n'est donc pas mise en danger, ceci venant conforter l'approche développée plus haut.

## 4 Transition entre les deux mécanismes

À partir des deux mécanismes proposés, nous pouvons maintenant définir une vitesse critique  $v_c$  permettant de séparer leur domaine de prédominance. Le critère recherché s'exprime directement à l'aide des équations 8.20 et 8.28 :

$$\left(\frac{\eta_a v_c}{\gamma}\right)^{\frac{1}{12}} \sim \left(\frac{\rho_a v_c^2 R}{\gamma}\right)^{\frac{1}{3}}, \quad (8.29)$$

$$v_c \sim \left(\frac{\eta_a \gamma^3}{\rho_a^4 R^4}\right)^{\frac{1}{7}}. \quad (8.30)$$

Remarquons que cette vitesse critique  $v_c$  est d'autant plus petite que le rayon  $R$  du cadre choisi est grand. Selon cette analyse, nous pouvons ainsi distinguer le régime visco-capillaire, prédominant lorsque  $v < v_c$  et le régime inertio-capillaire, prédominant lorsque  $v > v_c$ . Les expériences sont en bon accord avec cette prédiction

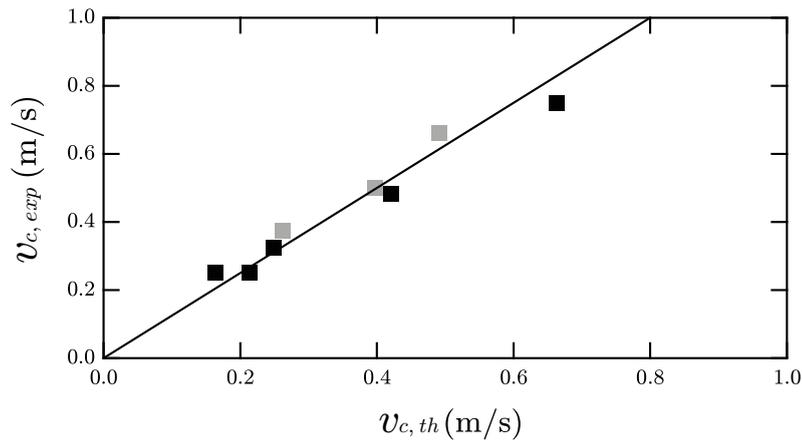


FIGURE 8.9: Vitesse de transition  $v_c$  entre les mécanismes visco-capillaire et inertio-capillaire : comparaison entre l'expérience et la prédiction (Éq. 8.30). Les symboles noirs correspondent à la solution savonneuse, les symboles gris correspondent au PDMS, de viscosité 6.4 Pa.s. La droite correspond à la relation 8.30 multipliée par un préfacteur égal à 1.25.

(Fig. 8.9). Mise à part la nature de la masse volumique intervenant au dénominateur, cette échelle de vitesse ressemble également à la vitesse de transition entre deux mécanismes de formation de bulles d'air lors de l'impact d'une goutte liquide sur une surface solide [173], et correspondant à un maximum de taille pour la bulle d'air créée.

Ce second mécanisme ne permet pas de justifier pourquoi la taille de la bulle interfaciale dévie de la tendance attendue en-dessous d'une certaine vitesse caractéristique, typiquement de l'ordre de  $1 \text{ mm.s}^{-1}$  (voir Fig. 8.7), conduisant même à l'absence de bulle pour des vitesses suffisamment faibles. Le paragraphe suivant propose un critère simple dans le but de rendre compte de cette observation.

## 5 Existence d'une vitesse de coupure

Nous remarquons sur la figure 8.7 que les données expérimentales dévient de la tendance visco-capillaire prédite dans la partie précédente aux faibles vitesses : la quantité  $R_b/R$  décroît plus vite qu'attendu à mesure que la vitesse de descente décroît. Dans cette gamme de vitesses, nous observons également que le centre de la bulle formée se décale par rapport au centre du cadre, ceci semblant indiquer l'apparition d'une brisure de symétrie au cours du piégeage de l'air. Ce fait peut s'interpréter par des considérations expérimentales. Supposons que le cadre soit légèrement incliné d'un angle  $\alpha$  par rapport à l'horizontale. Une partie de l'air contenue dans la couche d'épaisseur  $h$  est susceptible de s'échapper du côté encore émergé de l'anneau, du fait de la brisure de symétrie induite par cette faible inclinaison. Ce processus s'établit pendant la durée d'immersion de l'anneau, définie par l'intervalle temporel séparant l'immersion de la partie « basse » et l'immersion de la partie

« haute » de l'anneau. Ce temps typique  $\tau_1$  peut donc s'écrire, aux petits angles :

$$\tau_1 \sim \frac{R\alpha}{v}. \quad (8.31)$$

Puisque nous travaillons ici dans la gamme des faibles vitesses  $v < v_c$ , estimons à présent le temps  $\tau_2$  impliqué dans l'écoulement de la couche de lubrification<sup>5</sup>. L'équation 8.21 peut se réécrire en loi d'échelle comme :

$$\frac{h}{\tau_2} \sim \frac{h^3\gamma}{\eta_a R^2 r}. \quad (8.32)$$

Avec l'approximation parabolique (Éq. 8.18) et l'équation 8.27, il vient alors :

$$\tau_2 \sim \frac{\eta_a R C^{-\frac{3}{4}}}{\gamma} \sim \left(\frac{\eta_a}{\gamma}\right)^{\frac{1}{4}} R v^{-\frac{3}{4}}. \quad (8.33)$$

Notons que  $\tau_1$  et  $\tau_2$  décroissent avec la vitesse  $v$ , en accord avec l'intuition, mais les décroissances sont différentes dans les deux cas. De fait, l'air n'aura pas le temps d'être chassé par le côté émergé de l'anneau si son temps de mise en mouvement  $\tau_2$  est supérieur au temps  $\tau_1$  qui lui est offert pour s'extraire de la couche de lubrification. Il est possible de définir une vitesse de coupure  $v^*$  atteinte lorsque  $\tau_1 \sim \tau_2$ , soit :

$$\frac{R\alpha}{v^*} \sim \left(\frac{\eta_a}{\gamma}\right)^{\frac{1}{4}} R v^{*-\frac{3}{4}}, \quad (8.34)$$

$$v^* \sim \frac{\gamma\alpha^4}{\eta_a}. \quad (8.35)$$

Remarquons la forte dépendance de l'angle  $\alpha$  dans l'expression de cette vitesse de coupure. Pour  $\alpha \simeq 1-2^\circ$ , nous obtenons  $v^* \sim 0.1-1.6 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ , l'ordre de grandeur semble ainsi en corrélation avec la déviation observée sur la figure 8.7. Ainsi, bien que les expériences de ce chapitre présentent certains points communs avec celles menées dans le chapitre précédent, la planéité et l'horizontalité des cadres deviennent ici plus cruciales. Enfin, mentionnons qu'il est possible de retrouver l'expression de  $v^*$  en écrivant que l'épaisseur de la couche d'air  $h$  devient de l'ordre de grandeur de l'ouverture  $R\alpha$  induite par l'inclinaison du cadre. Nous aboutissons au même résultat par l'utilisation des équations 8.18 et 8.27.

## 6 Effets d'épaisseur finie du cadre

Enfin, en travaillant avec des cadres suffisamment épais et des vitesses très faibles, nous pouvons soupçonner l'existence d'un troisième régime, indépendant des paramètres hydrodynamique ( $v$ ) et physico-chimiques ( $\rho_a$ ,  $\gamma$ ,  $\eta_a$ ) du problème, et pour lequel des effets d'épaisseur finie sont susceptibles d'entrer en jeu ; notons donc  $e$  l'épaisseur du cadre. En supposant que la vitesse  $v$  soit suffisamment faible pour pouvoir négliger toute l'hydrodynamique du problème, la conservation du volume

---

5. Ce genre d'argument est également utilisé, sous une autre forme, dans la description du processus de non-coalescence de gouttes sur un bain liquide vibré [185].

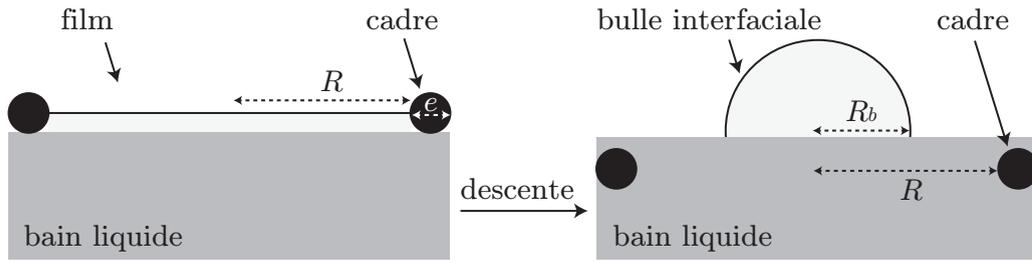


FIGURE 8.10: Dans le cas d'un cadre épais descendant à vitesse faible, la taille de la bulle interfaciale n'est fixée que par la géométrie du système :  $R$  et  $e$ .

implique que l'air situé dans un cylindre situé sous le film, de volume  $\pi R^2 e/2$ , se retrouve dans la bulle interfaciale de volume  $2\pi R_b^3/3$  (Fig. 8.10), soit trivialement :

$$\frac{R_b}{R} = \left( \frac{3e}{4R} \right)^{\frac{1}{3}}. \quad (8.36)$$

Cette prédiction simple et purement géométrique ne dépend effectivement plus de la vitesse de descente et de la physico-chimie du système.

## 7 Conclusion

Ce chapitre vient clore l'étude des aspects dynamiques impliqués dans la formation d'une bulle interfaciale au cours de la sortie d'un cadre hors d'un bain liquide, et de la descente d'un film plan dans un bain. Nous pouvons imaginer qu'en travaillant à des vitesses plus grandes que celles sondées dans ce chapitre (soit supérieures à  $1 \text{ m.s}^{-1}$ ), et correspondant de fait à des nombres de Weber plus grands, la déformation du film soit telle qu'elle lui permette de former une bulle sphérique dans l'air avant même d'atteindre le bain liquide. Inspirés de la littérature portant sur la turbulence 2D dans les films de savon, nous développons un dispositif expérimental dans le but d'aborder les mécanismes responsables de la création des bulles de savon dans le chapitre qui suit.



# Chapitre 9

## L'instabilité du souffleur de bulles

Comme évoqué en préambule de cette seconde partie, les bulles de savon représentent une intarissable source d'émerveillement, aussi bien pour les enfants que pour les artistes et les scientifiques. En contraste avec des problèmes de dynamique de gouttes dans un gaz ou de bulles dans un liquide, les processus physiques à l'origine de la création de bulles de savon demeurent assez peu documentés, ou très brièvement évoqués dans la littérature [116, 22]. Nous nous intéressons dans ce chapitre aux mécanismes responsables de la formation des bulles de savon en soufflant sur un film plan porté par des cadres à géométrie variable. Afin de reproduire au plus près les conditions dans lesquelles la bouche humaine souffle des bulles de savon, nous utilisons des aiguilles et des souffleries de différents rayons. Nous étudions également l'influence des masses volumiques des gaz injectés et extérieur sur ce processus. En fonction des différentes longueurs du problème (tailles de la « bouche » et du cadre, ainsi que la distance qui les sépare), nous montrons l'existence de quatre régimes distincts ; nous les étudions de façon systématique et rationalisons nos résultats à l'aide d'arguments physiques simples.

## 1 Introduction



FIGURE 9.1: Souffler des bulles de savon : un jeu d'enfant ?

Qui n'a jamais ressenti la magie de créer des bulles de savon, vestiges de l'insouciance et l'innocence de nos âmes d'enfants, en soufflant sur un film de savon porté par un cadre (Fig. 9.1) ? L'une des plus anciennes traces que nous en gardons se retrouve dans les écrits de Froissart<sup>1</sup>, citant une façon de faire des bulles à l'aide d'un tuyau [186] :

*Et s'ai souvent par un busiel (petit tuyau)  
Fait voler d'aige (eau) un boulonciel (bulle).*

Aujourd'hui, ce genre de procédé se retrouve aussi dans l'art du soufflage du verre, mais également dans des techniques gastronomiques récentes : la réalisation de pommes soufflées croustillantes en est un exemple gourmand et surprenant (Fig. 9.2).

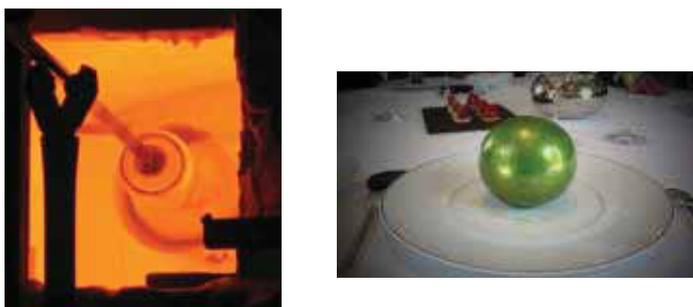


FIGURE 9.2: À gauche : l'art du soufflage de verre. À droite, une pomme soufflée au sucre, la chef pâtissier Christelle Brua est à l'origine de cette recette.

Pourtant, comme nous le disions en préambule, peu de travaux scientifiques mentionnent cette expérience universelle, et il semble qu'aucun ne l'ait traitée. Dans un extrait de son recueil [116] repris sur la figure 9.3, Henri Bouasse reste très évasif sur la question. Notamment, qu'entend-il par l'expression : *Si le mouvement est assez rapide* (voir texte associé sur la figure 9.3) ? Il est facile de tester ce critère en

1. Jean Froissart (1337-1404), chroniqueur français de l'époque médiévale.

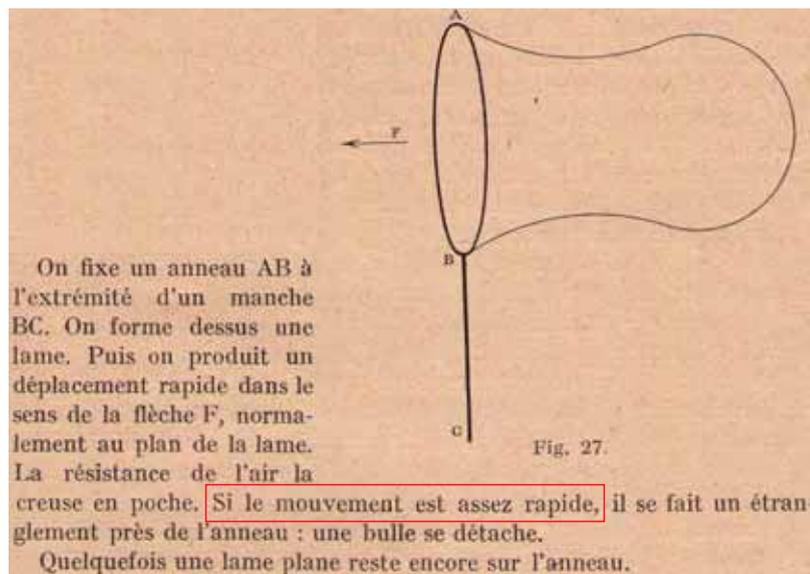


FIGURE 9.3: Mode particulier de formation des bulles. Figure adaptée de [116].

embarquant l'expérience dans une voiture : il suffit d'ouvrir la fenêtre, de tendre le bras portant le film de savon hors de l'habitacle et relever à quelle vitesse du véhicule une bulle commence à se détacher du cadre. L'expérience montre que la vitesse à atteindre est de l'ordre de quelques mètres par seconde, et décroît avec la taille du cadre utilisé. Cet ordre de grandeur correspond d'emblée à un grand nombre de Reynolds, de l'ordre de  $10^4$  pour un cadre centimétrique et de l'eau savonneuse. Comme de nombreux problèmes hydrodynamiques, nous allons découvrir, à l'aide d'un dispositif expérimental original présenté au début de ce chapitre, que le processus de création de bulles est le siège d'une compétition entre les effets interfaciaux et inertiels. Dans le but de sonder d'éventuels effets de géométrie sur cette expérience, la figure 9.4 présente les différents montages expérimentaux utilisés dans cette étude.

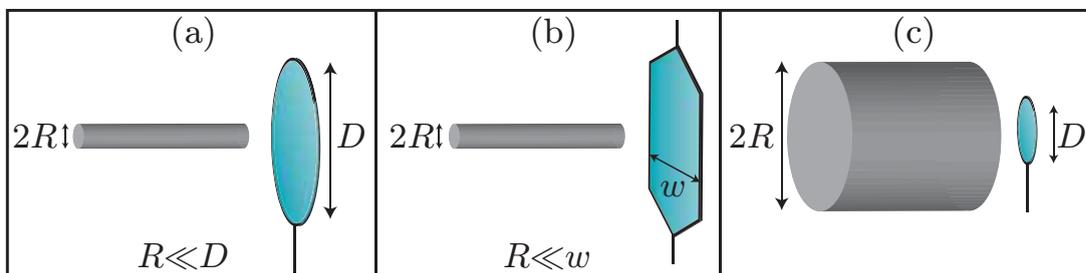


FIGURE 9.4: Configurations géométriques étudiées et notations : (a) aiguille et film porté par un cadre circulaire, (b) aiguille et film géant auto-entretenu, (c) soufflerie et film porté par un cadre circulaire.

## 2 Dispositif expérimental

### 2.1 Montage préliminaire : films sur cadres circulaires

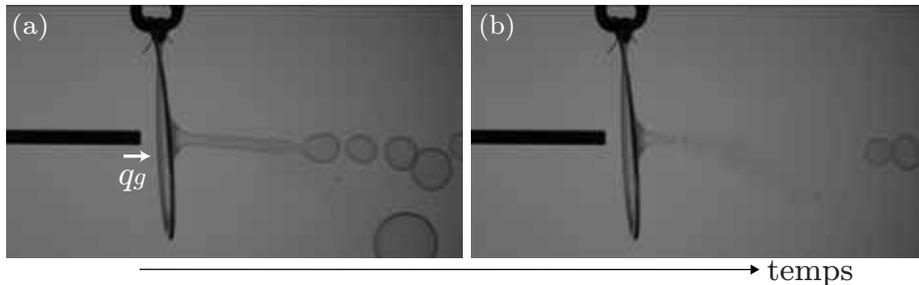


FIGURE 9.5: (a) Formation d'un train de bulles à partir d'un cadre circulaire de diamètre  $D = 4$  cm et d'un jet d'air issu d'une aiguille millimétrique... (b) ... jusqu'à l'éclatement du film de savon.

Pour aborder ce problème, nous avons commencé par effectuer des expériences préliminaires avec un cadre circulaire de diamètre  $w$  trempé dans une solution savonneuse, identiquement aux chapitres précédents. Comme à l'accoutumée, nous notons  $\rho_l$  la masse volumique du liquide et  $\gamma$  la tension de surface liquide/air. Pour « mimer » le souffle produit par une bouche humaine, nous relierons une aiguille cylindrique de rayon  $R \ll D$  à un système régulateur de pression également utilisé dans la partie microfluidique (MCFS-FLEX, Fluigent). Cet appareil nous permet de contrôler la taille du jet et son débit  $q_g$  en sortie d'aiguille de façon indépendante et contrôlée, et même changer la masse volumique  $\rho_g$  du gaz injecté en travaillant avec de l'hélium He ou de l'hexafluorure de soufre SF<sub>6</sub>, gaz non nocifs et respectivement moins dense et plus dense que l'air. En travaillant tout d'abord avec de l'air, si le débit d'air  $q_g$  (ou de façon équivalente sa vitesse  $v_g = q_g/\pi R^2$ ) est suffisamment élevé, on observe la formation d'un cylindre dynamique de savon qui se fragmente un peu plus loin en un train de bulles (Fig. 9.5). Mais comme on pouvait hélas s'y attendre, le film liquide perd de la masse en délivrant des bulles dans l'air, il s'amincit donc au cours du temps et finit inévitablement par éclater au bout de quelques secondes. Dans le but d'étudier un régime permanent permettant d'effectuer des mesures statistiques sur des plus grandes séries de bulles, nous avons alors cherché à générer un film de savon auto-entretenu.

### 2.2 Montage amélioré : film géant auto-entretenu

En s'inspirant d'articles portant sur la turbulence bidimensionnelle dans les films de savon [187, 122, 188, 189], nous avons fabriqué un montage permettant de générer des films de savon géants auto-entretenus (Fig. 9.6). Ces derniers sont formés par l'écoulement gravitaire issu d'une cuve disposée en amont du film, et dont nous contrôlons le débit à l'aide d'une valve ; nous mesurons ce débit liquide avec un débitmètre. En guise d'embouchure, nous utilisons un cône de pipette façonné en forme elliptique, afin d'introduire le liquide entre deux fils de pêche en nylon d'épaisseur millimétrique (Décathlon), tendus et accolés entre eux. Ce système d'injection [122]

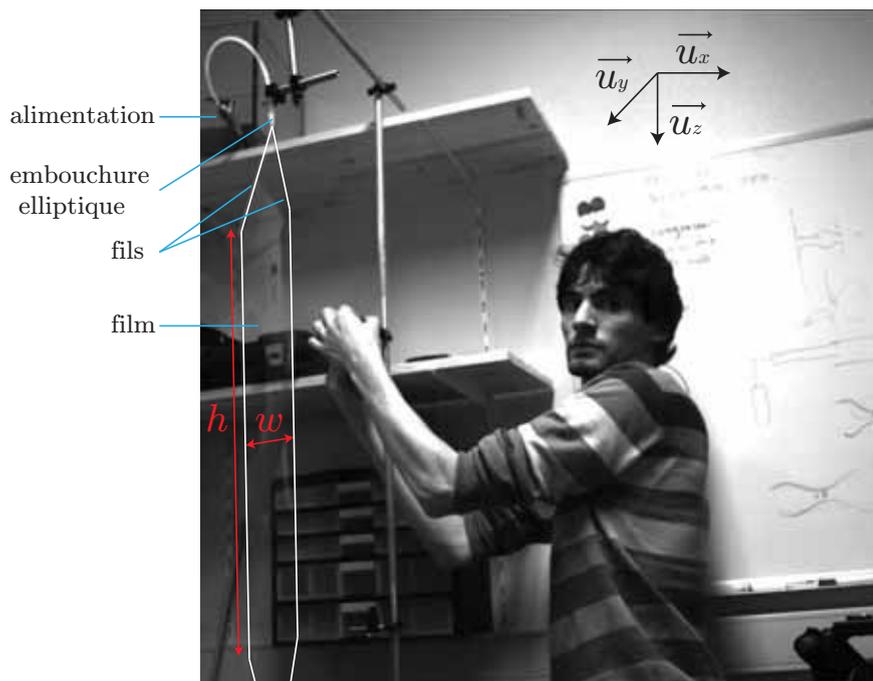


FIGURE 9.6: Montage du film de savon géant auto-entretenu. L'expérimentateur sérieux et concentré fait office d'échelle.

permet de produire des films géants d'épaisseur uniforme et tenant suffisamment longtemps (quelques minutes à quelques dizaines de minutes) devant la durée de l'expérience (typiquement quelques secondes). La largeur du film est réglable en écartant les fils de pêche l'un de l'autre. L'expansion triangulaire de la largeur en amont du film est choisie la plus graduelle possible de façon à assurer une épaisseur homogène dans la zone rectangulaire située en aval [122]. Les expériences sont réalisées dans cette zone rectangulaire du film, dont la hauteur est de l'ordre du mètre, et la largeur uniforme, notée  $w$ , est comprise dans l'intervalle 1–15 cm. Enfin, l'écoulement du liquide se termine dans une cuve en aval, de laquelle une pompe hydraulique à turbine (Cole-Parmer) fait recirculer la solution en amont de la chaîne.

Une fois le montage construit, on a cherché une solution liquide permettant à la fois de créer cet audacieux film géant et de former des bulles de façon stable dans le temps. La bonne formulation est laborieuse à trouver.

- En choisissant une solution de type (98% eau, 2% Fairy) également utilisée pour des études de turbulence bidimensionnelle [122], il est facile de produire un film géant très stable. En revanche, en soufflant dessus avec une aiguille pour former des bulles, le film casse régulièrement. Tout se passe comme si ce dernier n'arrivait pas à s'« auto-cicatriser » convenablement lors de la fragmentation du cylindre de savon en bulles.
- En prenant une solution trop visqueuse (en rajoutant typiquement du glycérol), le film géant apparaît inhomogène en épaisseur ; celui-ci atteint difficilement un état stationnaire et rompt assez fréquemment.

En cherchant le meilleur des deux mondes, nous avons finalement opté pour une solution savonneuse commerciale (Potentier). Nous l'avons caractérisée en rhéométrie

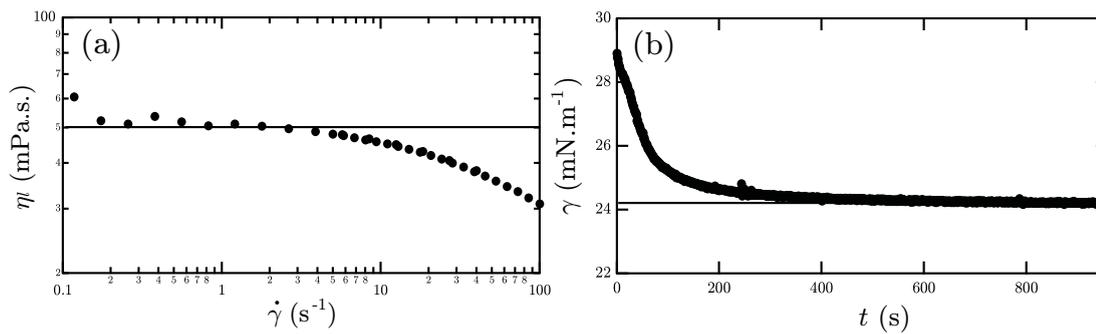


FIGURE 9.7: (a) Rhéométrie : viscosité dynamique  $\eta_l$  de la solution savonneuse commerciale en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  appliqué. (b) Tensiométrie : évolution temporelle de la tension de surface liquide/air  $\gamma$ . Une goutte pendante est formée en injectant la solution liquide à l'aide d'une aiguille millimétrique ; l'instant initial correspond à l'arrêt de l'injection. Les principes de fonctionnement des rhéomètre (Anton Paar MCR 301) et tensiomètre (Tracker, Teclis) utilisés sont reportés en annexe de ce manuscrit.

et tensiométrie (Fig. 9.7). Cette solution a un comportement newtonien sur la plage de taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 0.1\text{--}10\text{ s}^{-1}$ , et présente une élasticité de surface négligeable. La tension de surface mesurée à l'équilibre vaut  $\gamma \simeq 24\text{ mN.m}^{-1}$ , sa viscosité dynamique vaut  $\eta_l \simeq 50\text{ mPa.s}$ .

### 2.3 Caractérisation du film de savon

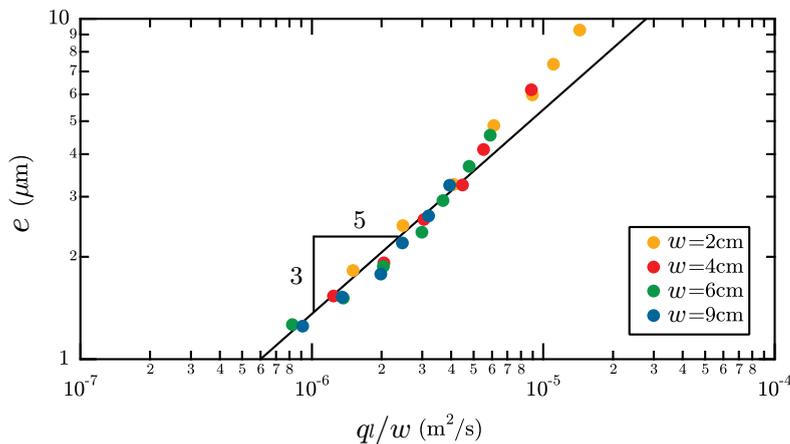


FIGURE 9.8: Caractérisation du film de savon : épaisseur stationnaire  $e$  en fonction du rapport  $q_l/w$ , chaque couleur correspondant à une largeur de film  $w$  fixée.

Nous tentons ici de décrire l'écoulement du film liquide formé. Une difficulté provient du fait qu'il existe un couplage entre le débit du film  $q_l$ , sa largeur  $w$  et son épaisseur stationnaire  $e$ . La mesure d'épaisseur s'effectue par interférométrie, comme dans un chapitre précédent. Pour un débit liquide pas trop grand, par exemple  $q_l \leq 4 \cdot 10^{-7}\text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  pour  $w = 4\text{ cm}$ , et à une distance  $z_1 \simeq 50\text{ cm}$  de l'embouchure, le

film apparaît, au vu des franges d'interférence, homogène en longueur et en largeur. Le comportement observé  $e \propto (q_l/w)^{\frac{3}{5}}$  (Fig. 9.8), ainsi que le préfacteur associé, peuvent être retrouvés par un simple équilibre entre les forces de gravité et de friction exercée par l'air environnant [187]. En effet, en considérant le film de savon comme une lame rigide, l'équation de Navier-Stokes stationnaire régissant sa chute s'écrit :

$$\rho_l e v_l \frac{\partial v_l}{\partial z} = \rho_l e g - \frac{2}{3} \left( \frac{\rho_a \eta_a v_l^3}{z} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (9.1)$$

où la friction de l'air a été calculée par la théorie de la couche limite de Prandtl [168]. Dans cette dernière relation,  $v_l$ ,  $g$ ,  $\rho_l$ ,  $\rho_a$  et  $\eta_a$  désignent respectivement la vitesse du liquide, l'accélération de la pesanteur, les masses volumiques du liquide, de l'air et la viscosité dynamique de l'air. L'homogénéité du film nous autorisant à négliger de façon légitime le terme convectif, il vient :

$$\rho_l e g = \frac{2}{3} \left( \frac{\rho_a \eta_a v_l^3}{z_1} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (9.2)$$

$$v_l = \left( \frac{z_1}{\rho_a \eta_a} \right)^{\frac{1}{3}} \left( \frac{3 \rho_l e g}{2} \right)^{\frac{2}{3}}. \quad (9.3)$$

Encore pour des raisons d'homogénéité, la relation  $q_l \sim v_l e w$  aboutit finalement au résultat suivant :

$$e \sim \left( \frac{\rho_a \eta_a}{z_1} \right)^{\frac{1}{5}} \left( \frac{2}{3 \rho_l g} \right)^{\frac{2}{5}} \left( \frac{q_l}{w} \right)^{\frac{3}{5}}. \quad (9.4)$$

L'expérience montre une légère déviation supérieure à cette loi pour un débit liquide assez grand (Fig. 9.8). Nous quittons alors le domaine de validité des hypothèses du modèle présenté (stationnarité, homogénéité du film).

### 3 Comportements observés

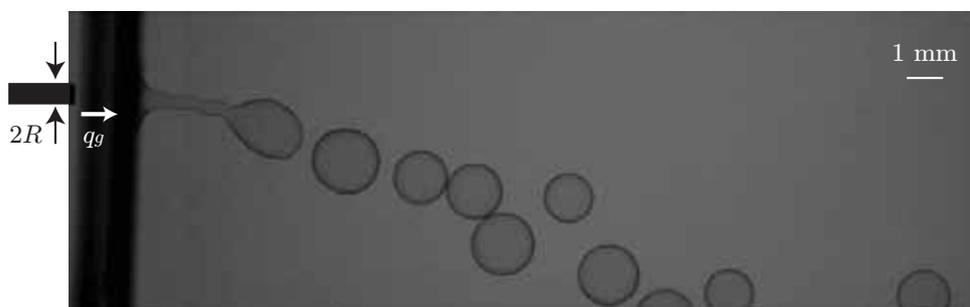


FIGURE 9.9: Illustration expérimentale d'un train de bulles obtenu en régime stationnaire avec le film géant auto-entretenu.

Nous accolons dans un premier temps l'aiguille cylindrique au film géant. Pour un film liquide et une aiguille donnés, les deux variables expérimentales indépendantes sont le débit volumique de gaz,  $q_g$ , et le débit volumique du film,  $q_l$ . La



FIGURE 9.10: À fort débit liquide, le jet gazeux provoque l'apparition de motifs stationnaires en forme de « croisillons » sur le film géant. Ces derniers s'atténuent progressivement d'amont en aval de l'écoulement du film.

variation de ces quantités nous permet d'observer plusieurs régimes. Dans les ordres de grandeur sondés expérimentalement, nous obtenons, de façon très schématique, l'ordre d'apparition des régimes à débit de gaz croissant :

- pour un débit de liquide faible : pas de bulle, formation d'une « tétine » de plus en plus creusée dans le film, formation d'un train de bulles de plus en plus petites,
- pour un débit de liquide fort : pas de bulle, formation de motifs de plus en plus marqués en aval du film de savon (Fig. 9.10), formation d'un train de bulles de plus en plus petites.

Notons qu'une fois qu'un train de bulles est formé (Fig. 9.9), il est stationnaire, du fait de l'écoulement permanent du film de savon. Malgré sa remarquable stabilité, ce train de bulles n'est pas rigoureusement monodisperse : à la différence d'un train de gouttes en microfluidique, où ces dernières sont advectées par la phase porteuse en aval de l'écoulement, il n'existe ici aucune advection permettant aux bulles de s'éloigner rapidement du train au suivi de leur formation. Par ailleurs, les mouvements d'air convectifs autour du film ont tendance à accentuer cette polydispersité. Une perspective d'amélioration du dispositif expérimental, consistant à confiner le système aiguille+film, fera l'objet de travaux futurs.

## 4 Seuil de formation d'un train de bulles : un modèle simple

### 4.1 Débit gazeux critique

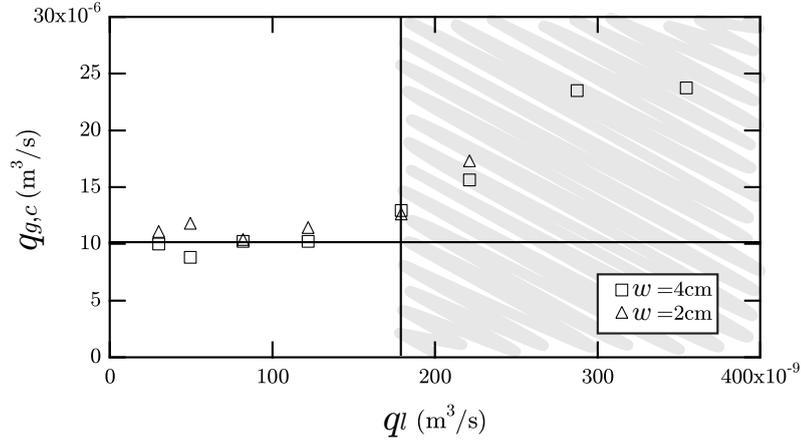


FIGURE 9.11: Débit critique gazeux en fonction du débit du film liquide, pour un jet d'air provenant d'une aiguille de rayon  $R = 0.42$  mm et un film liquide de largeur  $w = 2$  cm (triangles), 4 cm (carrés).

Intéressons-nous dans un premier temps au débit gazeux critique  $q_{g,c}$  de formation de bulles. La figure 9.11 montre l'influence du débit du film liquide  $q_l$  (et de son épaisseur) sur  $q_{g,c}$ , pour une aiguille de rayon  $R$  donné et deux valeurs de  $w$ . Nous remarquons que le débit seuil  $q_{g,c}$  croît avec  $q_l$  : ceci démontre que l'écoulement du film a tendance à s'opposer à la création d'un train de bulles. Le fait que les jeux de données correspondant à deux largeurs de film  $w$  différentes se superposent prète à penser que cette augmentation du débit critique est plutôt un effet de débit, et non d'épaisseur. Nous remarquons également que  $q_{g,c}$  semble atteindre une valeur constante et indépendante de  $w$  lorsque le débit liquide est suffisamment faible. Dans la suite, nous nous attachons à prédire ce seuil, indépendant de  $q_l$  pour un débit liquide faible. Lorsque  $q_g < q_{g,c}$ , la formation d'une tétine de rayon de courbure  $r$  venant déformer localement le film (Fig. 9.12) peut se comprendre à l'aide de la relation de Bernoulli, valable aux grands nombres de Reynolds  $Re = \rho_g v_g R / \eta_g$ , avec  $\rho_g$  et  $\eta_g$  les masse volumique et viscosité dynamique du gaz injecté. Cette relation, décrivant la conservation de l'énergie du gaz, s'écrit sur une ligne de courant horizontale en notant  $p_0$  la pression atmosphérique :

$$\frac{\rho_g v_g^2}{2} + p_0 = p_0 + \frac{4\gamma}{r}, \quad (9.5)$$

$$\frac{\rho_g v_g^2}{2} = \frac{4\gamma}{r}. \quad (9.6)$$

Ainsi, ce modèle suppose que l'énergie cinétique initiale du gaz à la sortie de l'aiguille est entièrement convertie en énergie de courbure du film au point de stagnation au contact du film, cette dernière s'écrivant *via* la loi de Young-Laplace de part et

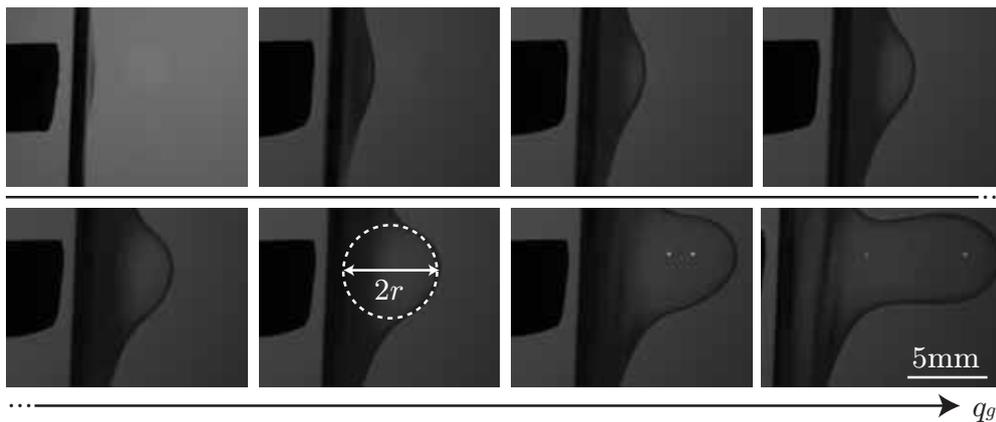


FIGURE 9.12: Évolution de la tétine en fonction du débit de gaz injecté.

d'autre du film en tenant compte des deux interfaces liquide/gaz traversées. De fait, plus la vitesse  $v_g$  est élevée, plus la tétine creusée dans le film a un rayon  $r$  petit. Pour détacher cette tétine en bulle, il semble alors raisonnable de se convaincre que le rayon de courbure de la tétine doit être de l'ordre de  $R$ , l'unique taille caractéristique ici<sup>2</sup>. Le critère de formation  $r \sim R$  se réexprime à l'aide de l'équation 9.6 comme :

$$v_{g,c} \sim \sqrt{\frac{8\gamma}{\rho_g R}}, \quad (9.7)$$

$$q_{g,c} = \pi R^2 v_{g,c} \sim 2\pi\sqrt{2} \sqrt{\frac{\gamma R^3}{\rho_g}}. \quad (9.8)$$

Le préfacteur  $2\pi\sqrt{2} \simeq 9$  étant assez grand devant l'unité, nous le conservons au moment de comparer cette prédiction aux résultats expérimentaux. Notons que ce seuil de formation de bulles à bas débit de liquide peut se réécrire en utilisant le nombre adimensionné pertinent du problème, à savoir le nombre de Weber  $We$ , comparant les deux énergies en présence :

$$We_c = \frac{\rho_g v_{g,c}^2 R}{\gamma} \sim 8. \quad (9.9)$$

Ce mécanisme inertio-capillaire a déjà été observé pour la formation de gouttes confinées dans un canal et dispersées dans un second liquide en mouvement [190]. Remarquons que le débit seuil  $q_{g,c}$  dépend fortement du rayon de l'aiguille  $R$ , cette quantité pouvant être variée expérimentalement sur une assez large gamme, l'utilisation des gaz He et SF<sub>6</sub> permettant également de vérifier la dépendance de  $\rho_g$  dans l'expression de  $q_{g,c}$ . En dépit de la simplicité des arguments présentés, les expériences sont en excellent accord avec la théorie (Fig. 9.13 (a)). De plus, la confrontation directe des résultats expérimentaux avec la prédiction tirée de l'équation 9.8 permet de superposer tous les points expérimentaux sur une unique tendance linéaire (Fig. 9.13 (b)).

2. Au-delà de l'hypothèse d'indépendance des autres longueurs du problème ( $w, e$ ), le caractère stationnaire de la tétine, ainsi que l'homogénéité spatiale de sa courbure, restent des suppositions assez fortes, en particulier proche du seuil. Cela dit, la suite montre que ce critère simple est très bien vérifié expérimentalement.

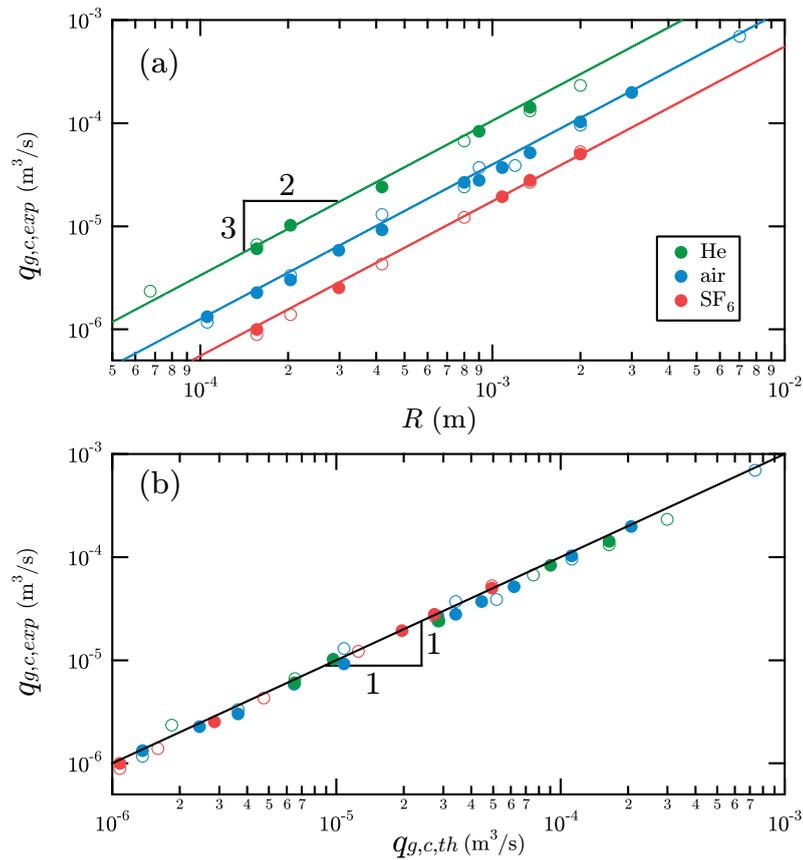


FIGURE 9.13: (a) Débit critique de formation de bulles en fonction du rayon de l'aiguille. Les trois gaz sondés ont des masses volumiques respectives  $\rho_a=1.2 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ,  $\rho_{\text{He}}=0.17 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ,  $\rho_{\text{SF}_6}=6.2 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ . Le graphe montre que ce critère de formation s'applique aussi bien en soufflant sur le film géant, de largeur  $w = 4 \text{ cm} \gg R$ , en écoulement à faible débit de liquide  $q_l = 8.2 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$  (symboles fermés), ou sur un film porté par un cadre en fer circulaire, de diamètre grand devant celui des aiguilles utilisées (symboles ouverts). (b) Comparaison entre l'expérience et la prédiction obtenue par l'équation 9.8. La ligne continue noire indique la tendance linéaire de pente unité.

## 4.2 Rayon du cylindre de savon

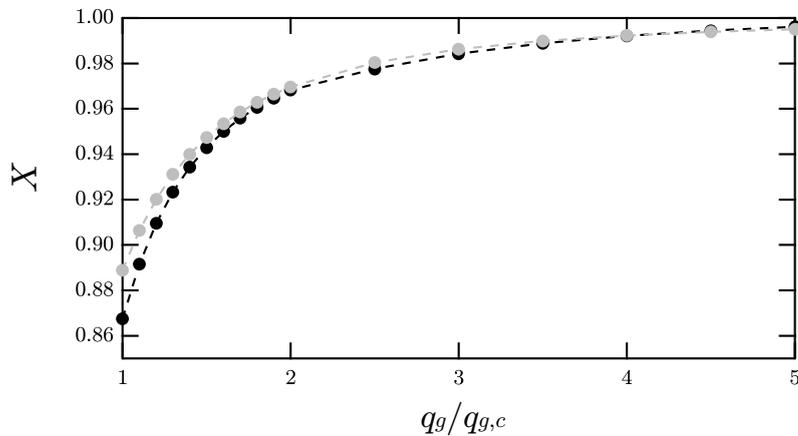


FIGURE 9.14: Évolution de  $X=R/\ell$  en fonction du débit adimensionné  $q_g/q_{g,c}$ . Les symboles noirs correspondent à la résolution numérique de l'équation 9.14. Les symboles gris correspondent à la résolution de sa forme linéarisée (Éq. 9.15).

Une fois le débit seuil atteint, un cylindre de savon se forme sur une certaine distance avant de se déstabiliser en donnant naissance à une assemblée de bulles. Le rayon de ce cylindre est voisin du rayon  $R$  de l'aiguille choisie (voir Fig. 9.5 (a) et 9.9) : ceci peut à nouveau se justifier par des arguments énergétiques. Notons  $\ell$  le rayon du cylindre, et définissons  $X = R/\ell$ . L'équation de Bernoulli, appliquée maintenant au-delà du seuil de formation d'un train de bulles, de l'embouchure de l'aiguille à l'intérieur du cylindre, s'écrit :

$$\frac{\rho_g v_g^2}{2} + p_0 = \frac{\rho_g v_{cy,g}^2}{2} + p_0 + \frac{2\gamma}{\ell}, \quad (9.10)$$

avec  $v_{cy,g}$  la vitesse du gaz dans le cylindre, supposée constante et uniforme. La conservation du débit impose par ailleurs :

$$\pi R^2 v_g = \pi \ell^2 v_{cy,g} = q_g. \quad (9.11)$$

La manipulation de ces relations fournit pour  $X$  l'équation suivante :

$$\frac{q_g^2}{\pi^2 R^4} (1 - X^4) = \frac{4\gamma X}{\rho_g R}, \quad (9.12)$$

$$(1 - X^4) = \frac{4\pi^2 \gamma R^3 X}{\rho_g q_g^2}, \quad (9.13)$$

$$(1 - X^4) = \left( \frac{q_{g,c}}{q_g} \right)^2 \frac{X}{2}. \quad (9.14)$$

Cette dernière équation impose  $X \leq 1$ , soit  $\ell \geq R$ . Effectivement, créer de la surface coûte un prix énergétique conduisant à une diminution de l'énergie cinétique, soit de la vitesse dans le cylindre, et donc un agrandissement de ce cylindre (Éq. 9.11). Les fortes non-linéarités de cette équation rendent cependant cet effet ridiculement

petit, vérifions-le ici : en supposant pour le rayon du cylindre une perturbation du premier ordre par rapport au rayon de l'aiguille,  $X = 1 - \epsilon$ , un développement limité de l'équation 9.14 conduit à l'expression suivante :

$$\epsilon = \frac{1}{1 + 8(q_g/q_{g,c})^2}. \quad (9.15)$$

Ainsi, cette perturbation, maximale au seuil  $q_g = q_{g,c}$ , est seulement de l'ordre de 10%, puis décroît rapidement avec  $q_g$ . La résolution numérique de l'équation 9.14, paramétrée par le rapport  $q_g/q_{g,c}$ , est en accord avec cette analyse (Fig. 9.14). Nous venons donc de démontrer par des arguments énergétiques simples que l'approximation  $\ell = R$  est raisonnable, ce fait étant convenablement corrélé aux observations expérimentales.

### 4.3 Dynamique de gonflement du film

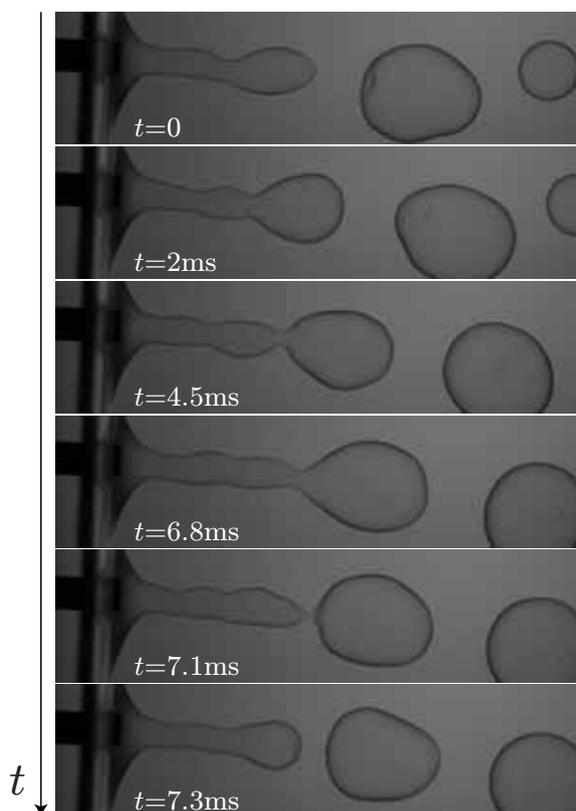


FIGURE 9.15: Série de photos expérimentales illustrant l'évolution typique du film de savon entre le détachement de deux bulles successives. Cette séquence a été obtenue avec un jet d'air et une aiguille de rayon  $R = 0.8$  mm.

Pour  $q_g > q_{g,c}$ , l'injection de gaz à débit constant permet de gonfler le film de savon (Fig. 9.15) ; tentons ici de décrire la dynamique de ce gonflement. Pour simplifier, nous supposons que le volume à gonfler peut se décomposer en deux volumes découplés l'un de l'autre : celui d'un cylindre de rayon  $R$  et de longueur  $x(t)$  et celui d'une cavité courbée située à l'extrémité, correspondant à la bulle

en cours de formation. Dans le référentiel du film de savon, la force de traînée exercée par l'air extérieur sur cette cavité lui confère une forme approximativement ellipsoïdale, de demi-grand axe  $a(t)$  selon la direction principale du cylindre, et de demi-petit axe  $b(t)$  selon les deux directions perpendiculaires. Dans le but de simplifier les calculs qui suivent, nous supposerons cette cavité sphérique, de rayon équivalent  $r_b(t) \sim (a(t)b^2(t))^{1/3}$ . Prenons l'origine des temps  $t = 0$  au détachement de la bulle précédente. Du fait des petits nombres de Mach  $\mathcal{M} = v_g/c_s$  impliqués dans l'expérience, le jet gazeux peut être considéré comme incompressible. La conservation de son volume peut alors s'écrire, pendant un court instant  $dt$  :

$$q_g dt = \pi R^2 dx(t) + 4\pi r_b^2(t) dr_b(t), \quad (9.16)$$

$$q_g = \pi R^2 \dot{x}(t) + 4\pi r_b^2(t) \dot{r}_b(t). \quad (9.17)$$

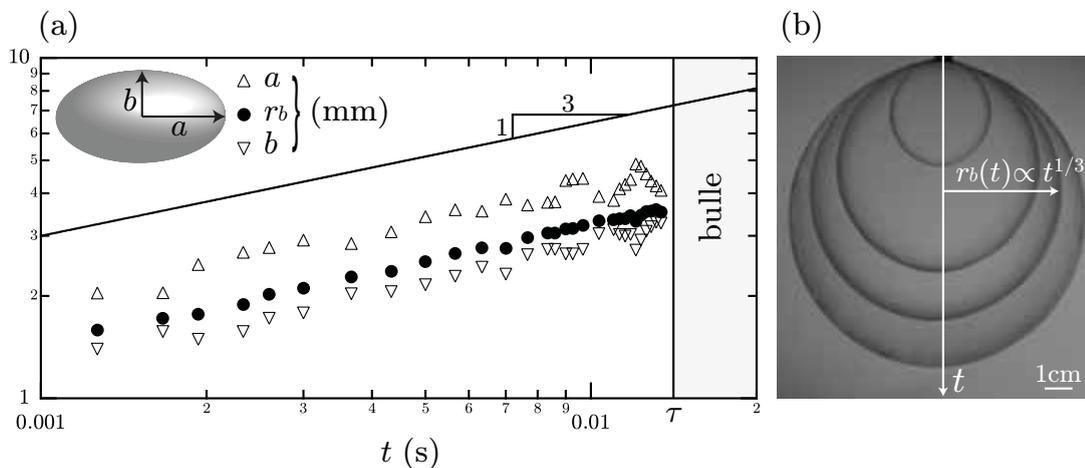


FIGURE 9.16: (a) Suivi temporel du gonflement d'une bulle, paramétrée par ses demi-grand axe  $a(t)$  ( $\Delta$ ) et demi-petit axe  $b(t)$  ( $\nabla$ ), desquels nous pouvons estimer un rayon équivalent  $r_b(t) \sim (a(t)b^2(t))^{1/3}$  ( $\bullet$ ). L'instant  $t = \tau$  définit le détachement de la bulle. La droite indique une tendance en loi de puissance  $t^{1/3}$ , analogue au gonflement quasi-statique d'une bulle unique (b).

L'expérience montre que l'accroissement du volume du cylindre reste petit devant celui de la cavité sphérique. De fait, en négligeant le premier terme devant le second dans le membre de droite de l'équation 9.17, il vient immédiatement :

$$r_b(t) = \left( \frac{3q_g t}{4\pi} \right)^{1/3}, \quad (9.18)$$

analogue à la dynamique de gonflement capillaire quasi-statique d'une bulle de savon. Cette loi de puissance temporelle est plutôt bien vérifiée expérimentalement (Fig. 9.16), jusqu'à l'instant  $\tau$  du pincement de la petite portion du film séparant le cylindre de la cavité sphérique. La bulle se détache alors du cylindre, son rayon  $R_b$  étant directement fixé par  $r_b(\tau)$ ; une nouvelle cavité commence alors à croître. Ce processus est itératif, donnant ainsi naissance à un train de bulles. Du fait de

la nature turbulente des écoulements mis en jeu dans cette expérience, le temps de pincement  $\tau$  fluctue d'une bulle à l'autre, comme montré de façon quantitative dans le paragraphe suivant : de fait, le train de bulles obtenu est intrinsèquement polydisperse, contrairement à d'autres procédés de formation d'assemblées d'objets monodisperses en milieu confiné [190, 191, 192].

#### 4.4 Taille des bulles, fréquence de production

Intéressons-nous maintenant à la taille des bulles formées et à leur fréquence de production. En raison de la polydispersité du train de bulles, nous effectuons un traitement statistique de ce processus.

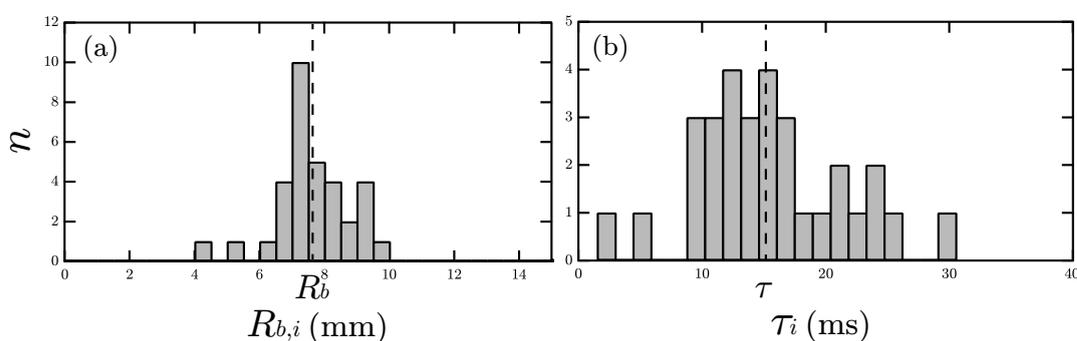


FIGURE 9.17: Histogrammes typiques des tailles (a) et temps de production (b) des bulles créées. Ces histogrammes expérimentaux ont été obtenus pour un jet gazeux d'hélium, une aiguille de rayon  $R=0.8$  mm et un film liquide de largeur  $w=4$  cm.

Pour une trentaine de bulles, nous déterminons la taille des bulles créées en mesurant leur surface  $S_{b,i}$  par traitement d'image. Puisque les bulles oscillent pendant les premiers instants suivant leur formation, la mesure est faite lorsque celles-ci ont retrouvé leur forme sphérique de repos afin de ne pas induire d'erreur sur le volume de gaz qu'elles renferment. De cette série statistique de mesures, nous en déduisons pour chaque bulle un rayon  $R_{b,i} = \sqrt{S_{b,i}/\pi}$  et pouvons alors calculer le rayon moyen  $R_b$  des bulles formées ainsi que l'écart-type  $\sigma_{R_b}$  relatif à la polydispersité du train (Fig. 9.17 (a)).

Nous réalisons également une analyse statistique des temps de production en relevant les instants de détachement des bulles puis en calculant les durées  $\tau_i$  séparant deux détachements consécutifs (Fig. 9.17 (b)). Nous obtenons un temps moyen de production  $\tau$  et un écart-type  $\sigma_\tau$ . Nous définissons alors la fréquence moyenne de production par la relation  $f = 1/\tau$ , et un écart-type estimé par la relation  $\sigma_f = \sigma_\tau/\tau^2$ .

La figure 9.18 illustre les résultats expérimentaux obtenus en faisant varier le rayon  $R$  de l'aiguille et le gaz. Les grandes barres d'erreur, résultant de rapports  $\sigma_{R_b}/R_b$  et  $\sigma_f/f$  importants, témoignent du caractère « turbulent » du processus de pincement. Tentons tout de même de décrire cette évolution à l'aide d'arguments dimensionnels en proposant deux analyses plausibles de ce phénomène.

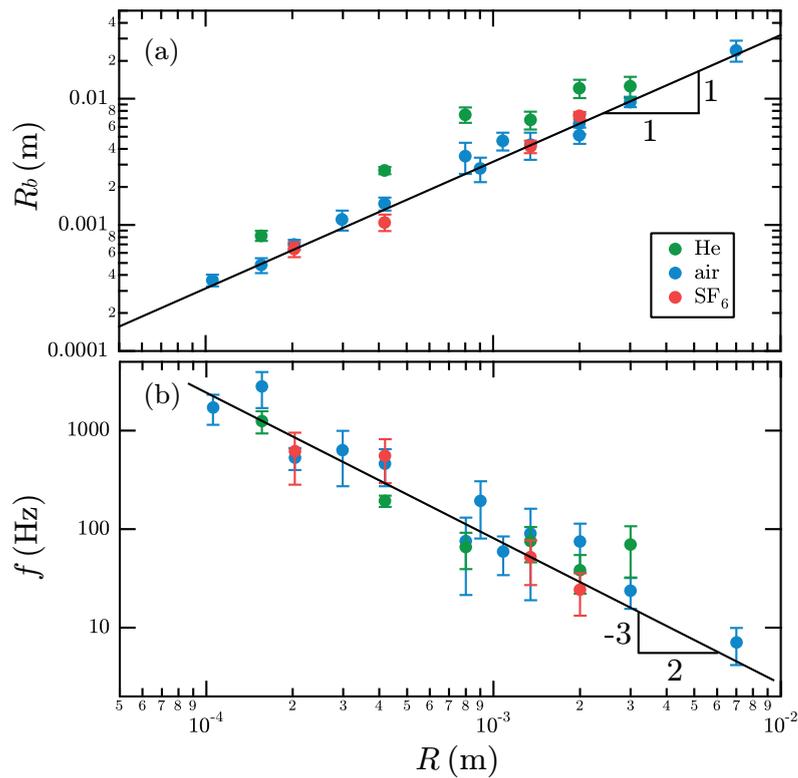


FIGURE 9.18: Taille des bulles créées (a) et fréquence de production (b) au seuil de formation : influence du rayon  $R$  de l'aiguille et du gaz injecté. Sur chaque graphe, les symboles et les barres d'erreur représentent respectivement la valeur moyenne et l'écart-type des séries statistiques relevées expérimentalement, chacune d'entre elles comportant une trentaine de mesures. Chaque couleur correspond à un gaz donné. Toutes les mesures ont été effectuées avec un film de largeur  $w = 4 \text{ cm} \gg R$ .

#### 4.4.1 Première analyse

Comme nous l'avons montré précédemment, le seuil de création d'un train de bulles est obtenu lorsque le rayon de courbure de la tétine devient de l'ordre du rayon de l'aiguille.  $R$  apparaissant comme la taille caractéristique de ce processus, nous pourrions donc nous attendre à ce que la taille moyenne des bulles formées soit également de l'ordre du rayon de l'aiguille utilisée :  $R_b \sim R$ , indépendamment du système gazeux considéré. Cette dépendance linéaire est en assez bon accord avec la figure 9.18 (a), sur laquelle la tendance linéaire tracée, de pente 3.1, ajuste assez bien les données expérimentales. Nous tenterons de justifier la légère déviation supérieure du jeu de mesures correspondant à He dans un second temps.

Dans le cas de l'hélium, l'expérience montre, comme pressenti, que les « grosses » bulles remontent du fait de la poussée d'Archimède supérieure au poids de la bulle. Ce n'est pas le cas des « petites » bulles, pour lesquelles le poids de la coquille liquide, additionné au poids de l'air, arrive à surpasser la poussée d'Archimède : le rapport surface/volume étant effectivement inversement proportionnel au rayon de la bulle, le poids du liquide prend de l'importance en comparaison au poids apparent de l'hélium enfermé dans une petite bulle. Il est alors immédiat de prédire le rayon critique  $R_{b,c}$  d'une bulle d'hélium en apesanteur dans l'air, par l'équilibre de forces suivant :

$$\frac{4}{3}\pi R_{b,c}^3(\rho_a - \rho_{\text{He}})g = 4\pi R_{b,c}^2 e \rho_l g, \quad (9.19)$$

$$R_{b,c} = \frac{3e\rho_l}{\rho_a - \rho_{\text{He}}}. \quad (9.20)$$

Pour  $e \simeq 2 \mu\text{m}$ ,  $R_{b,c} \simeq 6 \text{ mm}$ , en bon accord avec l'expérience.

Selon cette première approche, il est possible de remonter à la fréquence de production en écrivant au seuil de formation la conservation du volume pour le jet gazeux :

$$\frac{q_{g,c}}{f} = \frac{4\pi R_b^3}{3}, \quad (9.21)$$

où nous avons moyenné dans le temps les termes de part et d'autre de l'égalité. Avec la relation  $R_b \sim R$  et l'expression de  $q_{g,c}$  obtenue par la relation 9.8, il s'ensuit :

$$f \sim \sqrt{\frac{\gamma}{\rho_g R^3}}. \quad (9.22)$$

Cette fréquence rappelle l'inverse d'un temps typique inertio-capillaire déjà rencontré dans un chapitre précédent, mais où la masse volumique est ici celle du gaz intérieur contenu dans le cylindre de savon. Cette prédiction est testée sur la figure 9.19, démontrant un accord relativement correct compte tenu de la dispersion des résultats expérimentaux. La pente assez élevée de la tendance linéaire tracée, de l'ordre de 50, résulte des préfacteurs numériques laissés de côté lors du passage de la relation 9.21 à la relation 9.22. Bien que les mécanismes physiques soient légèrement différents, cette loi d'échelle se retrouve par ailleurs dans l'étude de la formation de coques liquides [191]. Remarquons également que la fréquence de production obtenue caractérise aussi la fréquence d'oscillation des bulles au suivi de leur

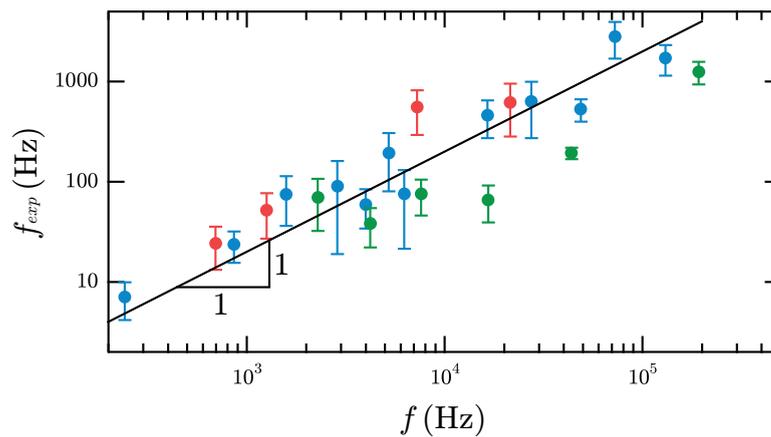


FIGURE 9.19: Fréquence moyenne de production : comparaison entre l'expérience et la prédiction tirée de l'équation 9.22. Chaque couleur correspond à un gaz donné.

formation, comme évoqué auparavant : en considérant la bulle comme un oscillateur harmonique de masse  $m \sim \rho_g R^3$  et de raideur  $k \sim \gamma$ , sa fréquence propre s'exprime classiquement comme  $f \sim \sqrt{k/m}$ , d'où le résultat. Parfois, les expériences montrent même l'apparition de différents modes de vibration, dont chaque fréquence propre est généralement indexée par un entier caractéristique du mode observé.

Nous constatons à nouveau que les points expérimentaux associés à He dévient des deux autres jeux de données mesurés pour l'air et le SF<sub>6</sub>. Dans le but d'interpréter cette observation, nous nous proposons de raffiner cette première analyse avec une seconde hypothèse de mécanisme, présentée dans le paragraphe suivant.

#### 4.4.2 Seconde analyse : une dynamique pilotée par le gaz de plus grande inertie

Reconsidérons l'expression de la fréquence moyenne de production déterminée précédemment (Éq. 9.22). Contrairement au chapitre 7 dans lequel le temps typique  $\sqrt{\rho_a R^3 / \gamma}$  construit sur l'inertie de l'air revenait régulièrement, nous pouvons pressentir que la présence de deux gaz, intérieur et extérieur, généralement différents dans cette configuration rend le problème plus compliqué. En première approximation, nous pouvons toutefois supposer que le pincement du film va être principalement limité par le gaz le plus long à déplacer, soit encore celui de plus grande inertie :

$$f \sim \sqrt{\frac{\gamma}{\max(\rho_a, \rho_g) R^3}}. \quad (9.23)$$

Le gaz le plus lourd correspond ainsi au gaz intérieur dans le cas du SF<sub>6</sub>, ou au gaz extérieur dans le cas de He, ou évidemment l'air avec un jet d'air. À la lecture comparée des figures 9.19 et 9.20 (a), il semble que les trois jeux de symboles se regroupent plutôt mieux selon cette nouvelle tendance.

Revenons alors à la taille des bulles formées. En réécrivant la conservation du volume de gaz (Éq. 9.21), les relations 9.23 et 9.8 permettent d'aboutir à l'expression

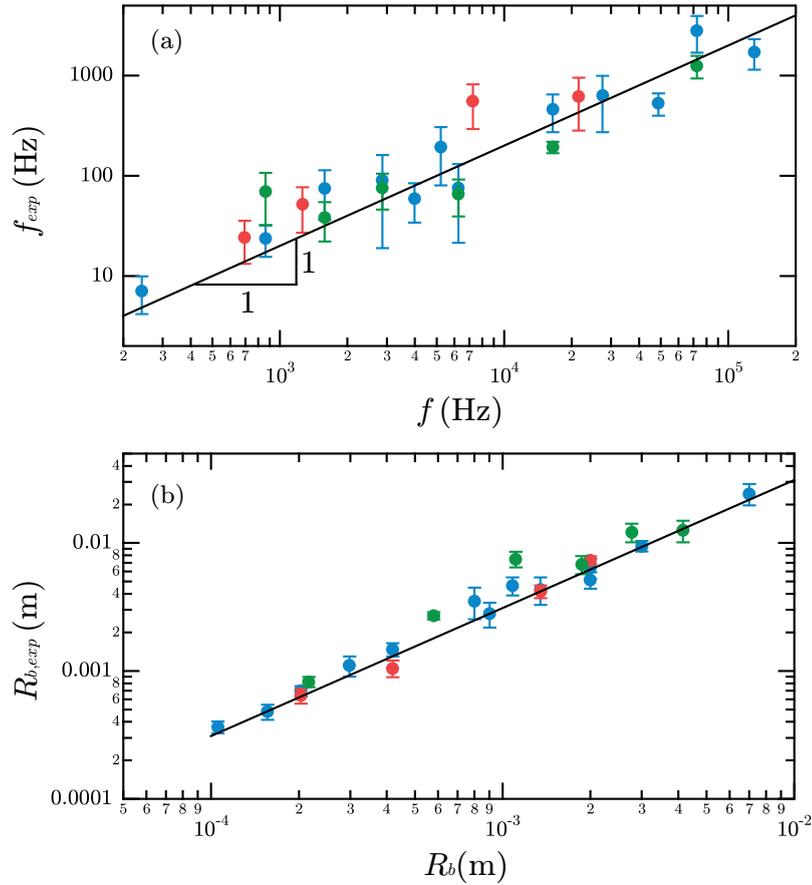


FIGURE 9.20: Fréquence moyenne de production (a) et taille des bulles formées (b) : comparaison entre l'expérience et les prédictions respectivement tirées des équations 9.23 et 9.24. Chaque couleur correspond à un gaz donné.

suivante :

$$R_b \sim \left( \frac{\max(\rho_a, \rho_g)}{\rho_g} \right)^{\frac{1}{6}} R. \quad (9.24)$$

Nous retrouvons une dépendance linéaire de  $R_b$  avec  $R$ , mais dont le préfacteur dépend des deux gaz en présence. Cette prédiction, testée sur la figure 9.20 (b), semble effectivement mieux rassembler les différentes séries expérimentales en comparaison avec la figure 9.18 (a).

#### 4.5 Une instabilité « de type Rayleigh-Plateau »

Bien que l'expérience montre que les bulles se détachent une à une proche du débit critique, tentons de comparer ce problème à l'instabilité classique de Rayleigh-Plateau [22]. Prenons le temps de rappeler brièvement le mécanisme de cette instabilité sous une mouture simplifiée, en nous restreignant à une description statique du processus [11] (Fig. 9.21). Considérons pour l'occasion un jet liquide cylindrique non confiné, de longueur  $L$  et de rayon  $R$ , soumis à une perturbation de longueur d'onde  $\lambda$ . Sa fragmentation en  $n$  gouttes impose la relation suivante :

$$L = n\lambda. \quad (9.25)$$

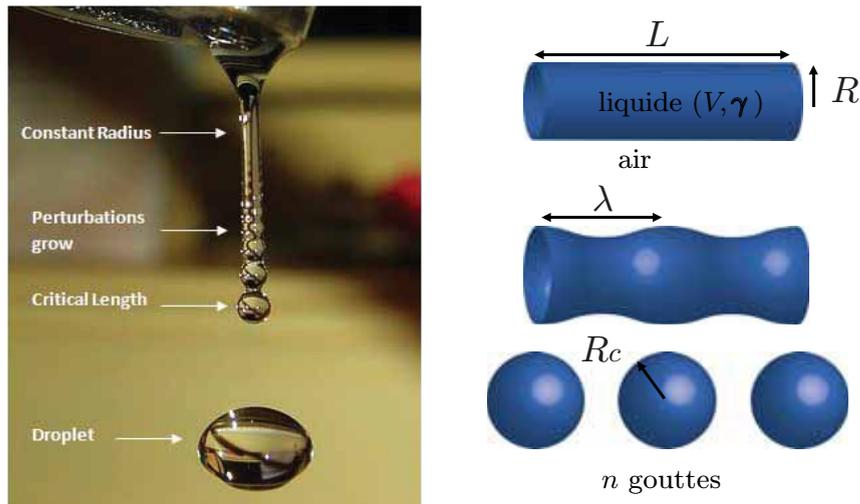


FIGURE 9.21: Fragmentation d'un jet d'eau issu d'un robinet. Définition des grandeurs et notations utilisées pour établir le modèle simplifié.

En notant  $R_c$  le rayon des gouttes formées, la conservation du volume liquide lors de la fragmentation se traduit par l'égalité suivante :

$$V = \pi R^2 L = n \frac{4\pi R_c^3}{3}, \quad (9.26)$$

soit, à l'aide de l'équation 9.26 :

$$R^2 \lambda = \frac{4}{3} R_c^3. \quad (9.27)$$

Les énergies de surface du jet et des gouttes valent respectivement :

$$E_{cyl} = 2\pi R L \gamma = \frac{2V\gamma}{R}, \quad (9.28)$$

$$E_{sph} = n 4\pi R_c^2 \gamma = \frac{3V\gamma}{R_c}. \quad (9.29)$$

La déstabilisation du jet en gouttes est donc favorable d'un point de vue énergétique si  $E_{sph} < E_{cyl}$ , soit encore :

$$R_c > \frac{3}{2} R, \quad (9.30)$$

$$\lambda > \frac{9}{2} R. \quad (9.31)$$

De fait, pour une même perturbation  $\lambda$ , un jet fin apparaît plus instable qu'un jet épais, c'est pourquoi le jet d'un robinet ne se déstabilise généralement qu'après une certaine longueur d'établissement de son amincissement gravitaire. Bien entendu, le vrai problème est dynamique et mériterait un traitement plus poussé [22] : injectons alors dans l'équation d'Euler linéarisée une petite perturbation du rayon du cylindre variant comme  $\cos(kx)e^{-i\omega t}$ . Dans le cas d'un cylindre de savon contenant un gaz de masse volumique  $\rho_g$  dans l'air, de masse volumique  $\rho_a$ , la relation de dispersion

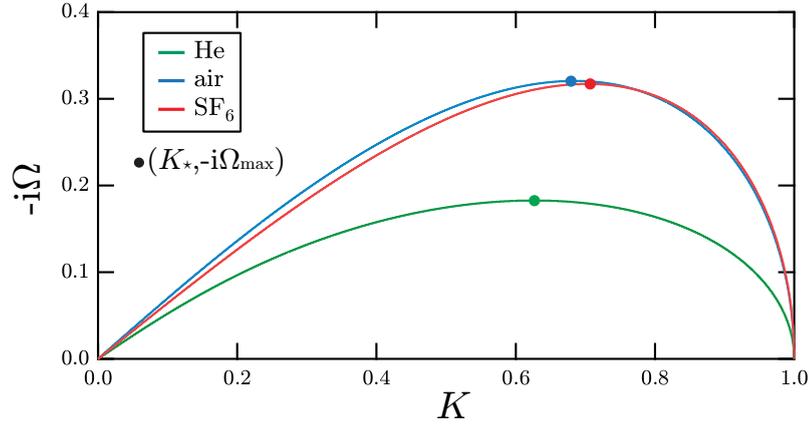


FIGURE 9.22: Relation de dispersion tirée de l'équation 9.33. Chaque couleur correspond à une valeur de  $\rho_g$  différente.

entre le taux de croissance temporelle  $\omega$  de l'instabilité et le nombre d'onde  $k$  peut s'écrire, dans une approximation de grande longueur d'onde devant le rayon du cylindre (cette approximation sera justifiée par les résultats de notre analyse) [22] :

$$\left[ 1 + \frac{\rho_a}{2\rho_g} (kR)^2 \ln \left( 1 + \frac{1}{kR} \right) \right] \omega^2 = \frac{\gamma}{2\rho_g R^3} ((kR)^4 - (kR)^2), \quad (9.32)$$

soit, avec les notations adimensionnées  $\Omega = \omega \sqrt{\rho_g R^3 / \gamma}$ ,  $K = kR$  et  $\varrho = \rho_a / \rho_g$  le contraste de masse volumique :

$$\Omega^2 = \frac{K^4 - K^2}{2 + \varrho X^2 \ln(1 + 1/X)}. \quad (9.33)$$

D'après la forme de l'*ansatz* choisi, pour que l'instabilité se développe, il faut que  $\omega$  soit imaginaire pur, et donc  $\Omega^2 < 0$ . Cette condition est vérifiée dans l'intervalle  $0 < K < 1$ ; comme  $K = kR$ , nous vérifions au passage que le cylindre est instable seulement s'il est suffisamment fin. Il est possible de déterminer graphiquement le mode le plus instable, c'est-à-dire celui qui se déstabilise le plus rapidement, en cherchant la valeur de  $K_* = k_* R$  correspondant à la valeur maximale du taux de croissance adimensionné  $\sqrt{-\Omega_{\max}^2} = -i\Omega_{\max}$  (Fig. 9.22). Le graphique montre que  $K_*$  dépend légèrement du gaz choisi. Nous mesurons respectivement pour les trois gaz :  $k_* R \simeq 0.63, 0.68, 0.7$ , où le code couleur correspond à celui employé dans la figure 9.22. En ayant adimensionné le taux de croissance  $\omega$  par la masse volumique  $\rho_g$ , nous remarquons que les courbes relatives à l'air et au SF<sub>6</sub> semblent atteindre un taux de croissance maximal quasiment identique, alors que le maximum de la courbe de l'hélium est inférieur. Ceci semble rejoindre notre seconde analyse, pour laquelle nous avons supposé que l'échelle de fréquence naturelle était fixée par le gaz de plus grande inertie. Comme il s'agit du gaz intérieur dans le cas du SF<sub>6</sub> et du gaz extérieur dans le cas de He, il semble cohérent que les taux de croissance maximaux de ces deux courbes soient assez différents, puisque ces derniers sont tous deux renormalisés par la masse volumique du gaz intérieur  $\rho_g$ . En convertissant le mode  $k_*$  en termes de longueur d'onde  $\lambda_* = 2\pi/k_*$ , il vient :

$$\lambda_* \simeq (10, 9.4, 9) R, \quad (9.34)$$

confortant ainsi l'hypothèse de grande longueur d'onde effectuée plus haut. Enfin, pour revenir à  $R_b$  :

$$\pi R^2 \lambda_* = \frac{4\pi R_b^3}{3}, \quad (9.35)$$

$$R_b \simeq (2, 1.9, 1.9) R. \quad (9.36)$$

Cette estimation de  $R_b$  devient quasiment identique pour les trois gaz : la puissance  $1/3$  appliquée sur le préfacteur lisse les différences entre les valeurs de  $\lambda_*$  déterminées pour chaque système gazeux. Ce point semble donc plutôt se rapprocher de la première analyse présentée plus haut. La comparaison des préfacteurs (3.1 selon l'expérience, 1.9 selon l'instabilité de Rayleigh-Plateau) reste malgré tout très honorable, étant donné la force des hypothèses considérées ici. En réalité, le cylindre de savon n'est pas infini, il est ouvert d'un côté, mais fermé de l'autre.

Dans la suite, nous nous intéressons à l'influence de la distance séparant l'aiguille du film sur le débit critique de création d'un train de bulles et la taille des bulles formées.

## 5 Prise en compte de la dissipation

L'expérience montre qu'en éloignant l'aiguille du film, le débit critique de formation de bulles augmente significativement, la taille des bulles formées également. Si le modèle simplifié précédent ne capture pas l'influence de la distance  $\delta$  séparant l'aiguille du film, c'est précisément parce qu'il ne tient pas compte de la dissipation d'énergie cinétique du jet le long de son parcours, et de fait de son élargissement. En calculant l'ordre de grandeur du nombre de Reynolds  $\mathcal{R}e$ , construit avec l'air et les échelles de longueur  $R$  et de vitesse  $v_{a,c}$  :

$$\mathcal{R}e = \frac{\rho_a v_{a,c} R}{\eta_a} = 2\sqrt{2} \frac{\sqrt{\rho_a \gamma R}}{\eta_a} \sim 10^2 - 10^3, \quad (9.37)$$

nous supposons donc que la dissipation se fait par un mécanisme purement convectif. Dans cette approche, il fait état dans la littérature d'une modélisation simplifiée d'un jet turbulent [193, 194]. Nous étudions ici le cas d'un jet fluide dans le même fluide afin de ne pas avoir de brisure de symétrie due à une poussée d'Archimède non nulle : le cas des gaz He et SF<sub>6</sub> est donc laissé de côté dans la suite<sup>3</sup>. Le jet s'élargit selon l'axe ( $Ox$ ) sous forme conique, dont l'angle au sommet  $\theta$ , de l'ordre de 23.6°, ne dépend pas du fluide (liquide, gaz) choisi (Fig. 9.23 (a)). Le rayon du jet  $R(x)$  à la distance  $x$  de l'aiguille vaut donc :

$$R(x) = R + x \tan \frac{\theta}{2} \simeq R + \frac{x}{5}. \quad (9.38)$$

Les fluctuations turbulentes et tourbillons étant complètement négligés dans cette

---

3. Dans le cas des bulles d'air soufflées par la bouche humaine, la différence entre les températures de l'air intérieur et extérieur, typiquement 37°C et 20°C, induit, d'après l'équation d'état des gaz parfaits, des masses volumiques respectives de 1.14 kg.m<sup>-3</sup> et 1.20 kg.m<sup>-3</sup>. La variation relative de masse volumique entre l'air chaud et l'air froid étant seulement de 5%, nous la supposons suffisamment petite pour pouvoir appliquer les résultats qui suivent à l'expérience réelle.

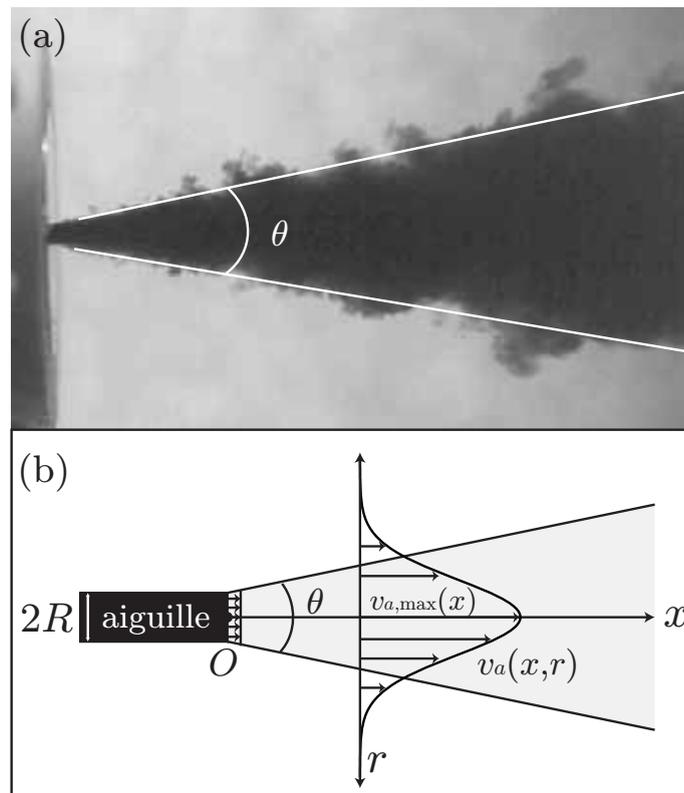


FIGURE 9.23: (a) Structure d'un jet d'eau dans de l'eau ; l'eau provenant du jet est colorée afin de la rendre visible sur ce cliché. Figure adaptée de [194]. (b) Allure schématique du profil de vitesse de l'air : notations utilisées.

approche, le champ de vitesse, supposé gaussien dans un plan perpendiculaire à  $(Ox)$  et indépendant du temps (Fig. 9.23 (b)), se met sous la forme :

$$v_a(x, r) = v_{a,\max}(x) \exp\left(-\frac{r^2}{2\sigma^2(x)}\right). \quad (9.39)$$

La largeur caractéristique  $\sigma(x)$  de ce profil augmente de façon affine avec la distance  $x$  à l'aiguille. La distribution gaussienne surmonte 95% de son aire totale dans un intervalle centré en  $x=0$  et de largeur  $4\sigma(x)$ ; en prenant cette largeur égale au diamètre du jet  $2R(x)$ , il vient donc :

$$\sigma(x) = \frac{5R + x}{10}. \quad (9.40)$$

La vitesse moyenne du jet  $v_a(x)$  à la distance  $x$  s'en déduit alors comme<sup>4</sup> :

$$v_a(x) = \frac{1}{\pi R^2(x)} \int_0^{+\infty} 2\pi r v_a(x, r) dr \simeq \frac{5R}{5R + x} v_a. \quad (9.41)$$

Ce résultat est obtenu en exploitant le caractère stationnaire de l'écoulement, et donc le fait que le transfert de quantité de mouvement est à flux conservatif, soit :

$$\int_0^{+\infty} 2\pi r \rho_a v_a^2(x, r) dr = \pi R^2 \rho_a v_a^2. \quad (9.42)$$

Ceci implique  $v_{a,\max}(x) = 10Rv_a/(5R+x) = 2v_a(x)$ , constituant une propriété caractéristique de la distribution gaussienne. Selon ce raffinement, il est donc maintenant possible de prédire le débit critique de formation d'un train de bulles en fonction de la distance  $\delta$  séparant le film de l'aiguille. Une généralisation de l'équation 9.7 s'écrit à présent en considérant la conversion énergétique infiniment près du film<sup>5</sup> :

$$\frac{\rho_a v_{a,c}^2}{2} \left(\frac{5R}{5R + \delta}\right)^2 \sim 5 \frac{4\gamma}{5R + \delta}, \quad (9.43)$$

$$v_{a,c} \sim \sqrt{\frac{8\gamma(5R + \delta)}{5\rho_a R^2}}, \quad (9.44)$$

$$q_{a,c} = \pi R^2 v_{a,c} \sim 2\pi\sqrt{2} \sqrt{\frac{\gamma(5R + \delta)R^2}{5\rho_a}}, \quad (9.45)$$

$$q_{a,c} \sim q_{a,c}(\delta = 0) \sqrt{1 + \frac{\delta}{5R}}. \quad (9.46)$$

Ce nouveau critère fait ainsi apparaître deux régimes en fonction de la distance  $\delta$ . Si  $\delta \ll 5R$ , la dissipation peut raisonnablement être négligée, le problème se ramène

4. Par souci de simplicité, l'intégration s'effectue abusivement avec une borne supérieure infinie. En n'intégrant que de  $r=0$  à  $R(x)$ , un facteur correctif constant intervient, égal à  $1 - e^{-2} \simeq 0.86$  : nous pouvons donc légitimement l'oublier dans la suite.

5. Encore ici, le calcul nécessite en toute rigueur de prendre pour la contribution cinétique la moyenne du carré de la vitesse intégrée de  $r=0$  à  $R(x)$ , et non le carré de la vitesse moyenne calculée précédemment. Cela entraîne juste un facteur  $1 - e^{-4} \simeq 0.98$  au lieu de  $(1 - e^{-2})^2 \simeq 0.75$ . Ce détail est à nouveau laissé de côté dans la suite.

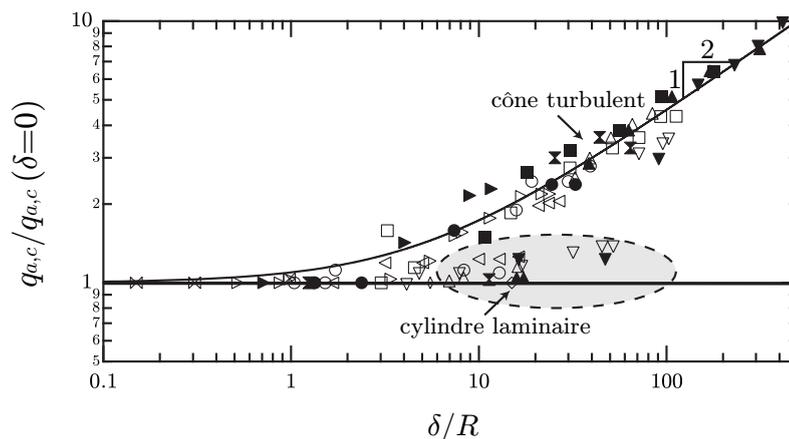


FIGURE 9.24: Débit seuil de formation d'un train de bulles en fonction de la distance séparant l'aiguille au film. Le débit est adimensionné par la valeur expérimentale mesurée lorsque l'aiguille est accolée au film. La distance séparant l'aiguille au film est adimensionnée par le rayon de l'aiguille  $R$ . Chaque série de symboles correspond à une aiguille donnée. Les symboles creux correspondent à une largeur de film  $w=4$  cm, les symboles pleins correspondent à une largeur de film  $w=10$  cm. Toutes les mesures ont été effectuées pour  $w \gg R$ .

donc à la partie précédente. Dans la limite inverse  $\delta \gg 5R$ , le débit seuil augmente en loi de puissance avec  $\delta$ , tel que :  $q_{a,c} \propto \sqrt{\delta}$ . D'après l'équation 9.38, il est également possible de prédire, au débit seuil de formation, la dépendance affine de la taille moyenne des bulles en fonction de  $\delta$ , soit :

$$\frac{R_b}{R} \sim 1 + \frac{\delta}{5R}. \quad (9.47)$$

Les expressions obtenues sont en bon accord avec les observations expérimentales (Fig. 9.24, Fig. 9.25). Il apparaît néanmoins un comportement assez différent avec les petites aiguilles ( $R \simeq 3 \cdot 10^{-4}$  m, correspondant aux points situés dans les zones grisées des figures 9.24 et 9.25), pour lesquelles la transition dissipative se fait de façon plus brutale que la tendance prédite théoriquement. La constance du seuil  $q_{a,c}$  pour des valeurs de  $\delta/R$  pas trop grandes s'interprète en considérant que la dissipation n'entre pas encore en ligne de compte : la structure du jet n'est donc pas conique, mais tout simplement cylindrique. Ce constat est par ailleurs corrélé à la taille des bulles formées, faisant apparaître le même type de comportement (Fig. 9.25). Tentons de déterminer les conditions pour lesquelles cette transition cône/cylindre se produit. Notons  $\delta^*$  la distance sur laquelle le jet gazeux conserve une forme cylindrique avant de s'élargir en cône. Cette distance est d'autant plus importante que le nombre de Reynolds  $\mathcal{R}e$  est petit, soit pour les petites aiguilles puisque  $\mathcal{R}e$  décroît avec  $R$  (Éq. 9.37). Cet argument se retrouve dans les croquis tirés des travaux<sup>6</sup> de Thomas Young [196] en 1800, reproduits sur la figure 9.26. Ce changement de régime hydrodynamique laminaire/turbulent s'interprète par le

6. D'un point de vue historique, cette expérience constitue de fait la première mise en évidence de l'émergence de turbulence au sein d'un écoulement, bien avant l'apport d'Osbourne Reynolds (1842-1912) communément admis aujourd'hui [195].

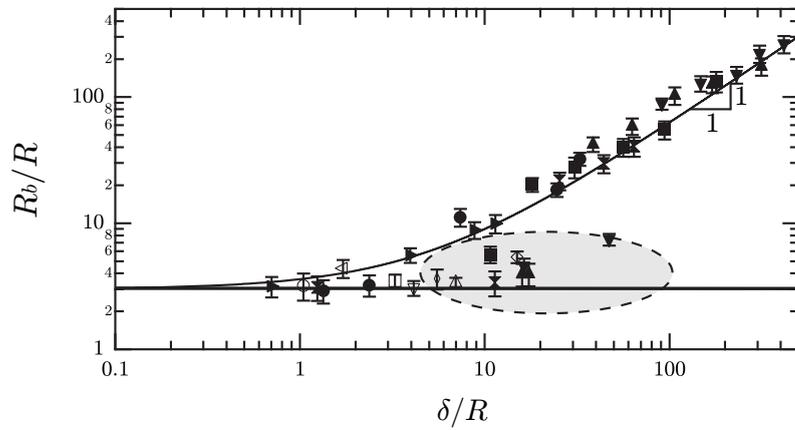


FIGURE 9.25: Taille des bulles formées en fonction de la distance séparant l'aiguille au film, en quantités adimensionnées. Afin de raccorder au régime non dissipé, l'ajustement tracé a pour équation  $R_b/R=3.1(1 + \delta/5R)$ , où le préfacteur 3.1 est tiré de l'ajustement de la figure 9.18 (b), obtenu pour  $\delta = 0$ .

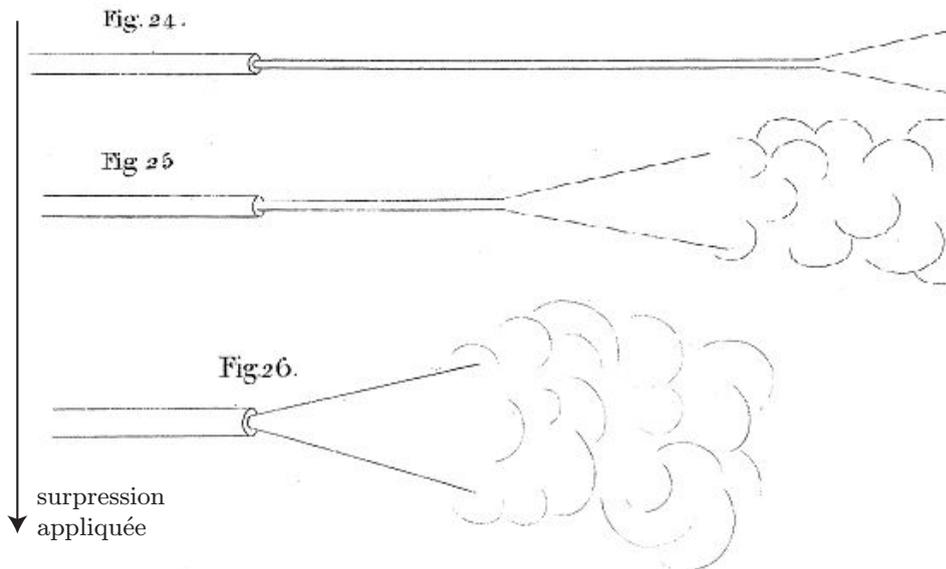


FIGURE 9.26: Dessins illustrant l'évolution de la structure d'un jet d'air en fonction de la surpression appliquée. Figure adaptée de [196].

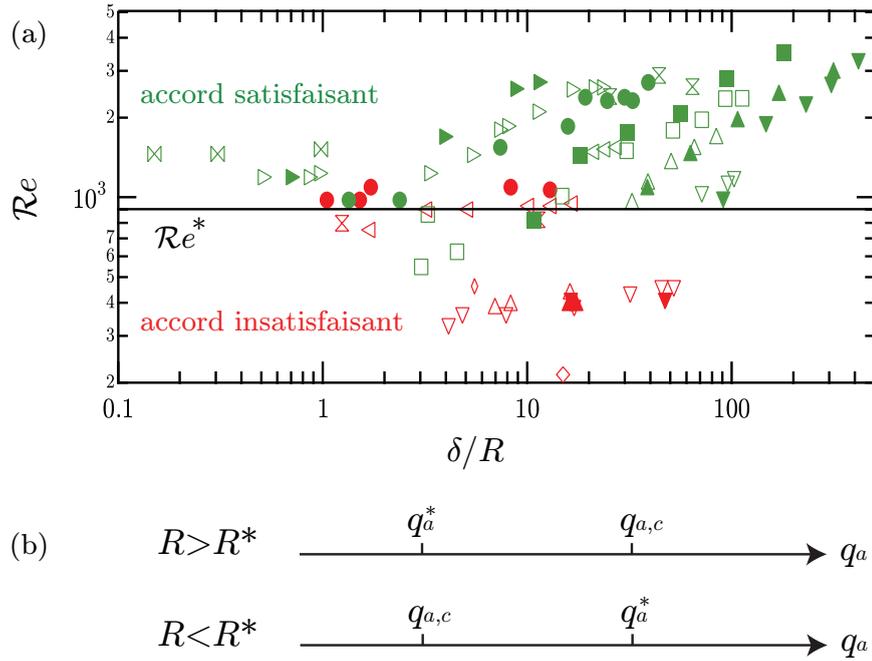


FIGURE 9.27: (a) Lorsque le nombre de Reynolds  $\mathcal{R}e$  est trop petit devant un certain nombre critique  $\mathcal{R}e^*$ , les données expérimentales issues de la figure 9.24 exhibent un moins bon accord avec le modèle, décrit par l'équation 9.46. Sur cette figure, les données sont retraduites en termes de nombre de Reynolds, les symboles verts étant en accord satisfaisant avec la théorie, les symboles rouges en moins bon accord. Le fait que le seuil (droite horizontale) ne semble pas dépendre de façon drastique de  $R$  et de  $\delta/R$  prouve que le nombre de Reynolds est bien le paramètre gouvernant cette transition de type laminaire/turbulent. (b) Existence d'une taille d'aiguille critique  $R^*$ , définie telle que le seuil de création d'un train de bulles soit de l'ordre du seuil de la transition cône/cylindre.

biais d'un nombre de Reynolds critique  $\mathcal{R}e^*$  (Fig. 9.27 (a)), atteint lorsque  $\delta^*=0$  et correspondant à un nouveau débit critique  $q_a^*$  tel que :

$$\mathcal{R}e^* = \frac{\rho_a v_a^* R}{\eta_a} = \frac{\rho_a q_a^*}{\pi \eta_a R}, \quad (9.48)$$

$$q_a^* = \frac{\pi \eta_a R \mathcal{R}e^*}{\rho_a}. \quad (9.49)$$

Nous remarquons que  $q_a^* \propto R$ , alors que  $q_{a,c} \propto R^{\frac{3}{2}}$ . Ainsi, il est toujours possible de trouver une aiguille assez grande vérifiant  $q_{a,c} > q_a^*$  : dans ce cas, la transition laminaire/turbulent n'interfère pas avec le seuil de formation d'un train de bulles, puisqu'elle se produit avant le seuil d'intérêt  $q_{a,c}$ . Ce n'est pas le cas pour une plus petite aiguille, de rayon typique  $R^*$  défini par l'équivalence  $q_{a,c} \sim q_a^*$  (Fig. 9.27 (b)) :

$$\frac{\pi \eta_a R^* \mathcal{R}e^*}{\rho_a} \sim 2\pi\sqrt{2} \sqrt{\frac{\gamma R^{*3}}{\rho_a}}, \quad (9.50)$$

$$R^* \sim \frac{\eta_a^2 \mathcal{R}e^{*2}}{8\rho_a \gamma}. \quad (9.51)$$

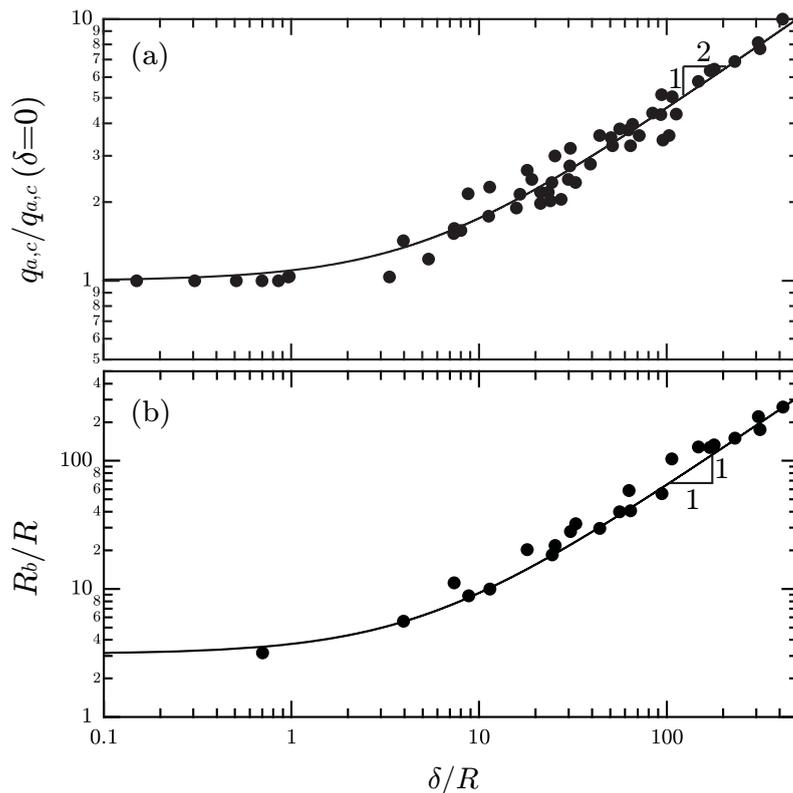


FIGURE 9.28: Débit critique (a) et taille des bulles créées (b) en fonction de  $\delta/R$  : représentation tronquée des résultats tirés des figures 9.24 et 9.25. Seules les mesures correspondant à un nombre de Reynolds  $\mathcal{R}e > 1200$  ont été conservées.

En prenant  $R^* \simeq 3 \cdot 10^{-4}$  m, le nombre de Reynolds de transition vaut  $\mathcal{R}e^* \simeq 460$  : cette valeur est cohérente avec une transition typique de régime d'écoulement laminaire/turbulent. Il est alors raisonnable de corriger les données expérimentales en ne retenant que les mesures correspondant à un nombre de Reynolds suffisamment grand :  $\mathcal{R}e \gg \mathcal{R}e^* \simeq 460$ . En prenant par exemple  $\mathcal{R}e > 1200$  (Fig. 9.28), l'accord entre théorie et expérience est alors bien meilleur, en comparaison avec les figures 9.24 et 9.25. Cette démarche a du sens puisque l'hypothèse inertielle de l'écoulement d'air, liée à l'écriture de l'équation de Bernoulli, apparaît d'autant plus fondée que le nombre de Reynolds est grand.

## 6 Prise en compte du confinement

D'un point de vue pratique, il est intéressant de sonder la limite inverse  $R \gg w$  (cas d'une soufflerie, voir Fig. 9.29), où l'intuition prête à penser que la taille pertinente du problème soit désormais  $w$ . Cette taille fixe alors celle des bulles formées indépendamment de  $R$ , ce type de résultat étant pressenti dans la littérature [22]. Dans cette partie, nous utilisons à nouveau des films portés par des cadres à géométrie circulaire, de diamètre noté  $D$ . En l'absence de dissipation ( $\delta \rightarrow 0$ ), et en supposant maintenant que la tétine se détache en bulle lorsque son diamètre égale le diamètre du film  $D$ , un raisonnement analogue à celui mené précédemment

conduit à présent aux nouveaux seuils :

$$v_{g,c} \sim 4\sqrt{\frac{\gamma}{\rho_g D}}, \quad (9.52)$$

$$q_{g,c} = \pi R^2 v_{g,c} \sim 4\pi\sqrt{\frac{\gamma R^4}{\rho_g D}}. \quad (9.53)$$

Le comportement est donc bien différent dans ce cas confiné. Il est cependant aisé de vérifier que les deux limites se raccordent en  $D/2 = R$ . Les expériences valident ce nouveau seuil (Fig. 9.30), avec un préfacteur respectable comparé au modèle (0.7 au lieu de 1).



FIGURE 9.29: Photographie de la soufflerie utilisée (37304, Leybold) ; son rayon est noté  $R$ .

## 7 Régime confiné et dissipatif

En tenant à présent compte de la dissipation, il émerge d'après la partie précédente une distance critique  $\delta_c$  au-delà de laquelle la largeur du film  $D$  commence à intervenir et fixe la taille des bulles. D'après l'équation 9.38,  $\delta_c$  vérifie :

$$R + \frac{\delta_c}{5} = \frac{D}{2}, \quad (9.54)$$

$$\delta_c = 5 \left( \frac{D}{2} - R \right). \quad (9.55)$$

Le critère  $\delta < \delta_c$  peut autrement s'interpréter comme  $D > D_c = 2(R + \delta/5)$ , où  $D_c$  correspond à un diamètre critique de film en-dessous duquel le confinement commence à se faire ressentir. Étudions donc l'effet de la dissipation en régime confiné sur le seuil de création d'un train de bulles. Nous nous sommes tout d'abord assurés à l'aide d'un anémomètre à fil chaud que les profils de vitesse étaient bien gaussiens, aux fluctuations temporelles près (Fig. 9.31). Remarquons que l'ajustement est moins bon aux petites valeurs de  $\delta$  (typiquement quelques  $R$ ), confirmant ainsi l'existence d'une zone d'établissement du profil gaussien à partir d'un profil

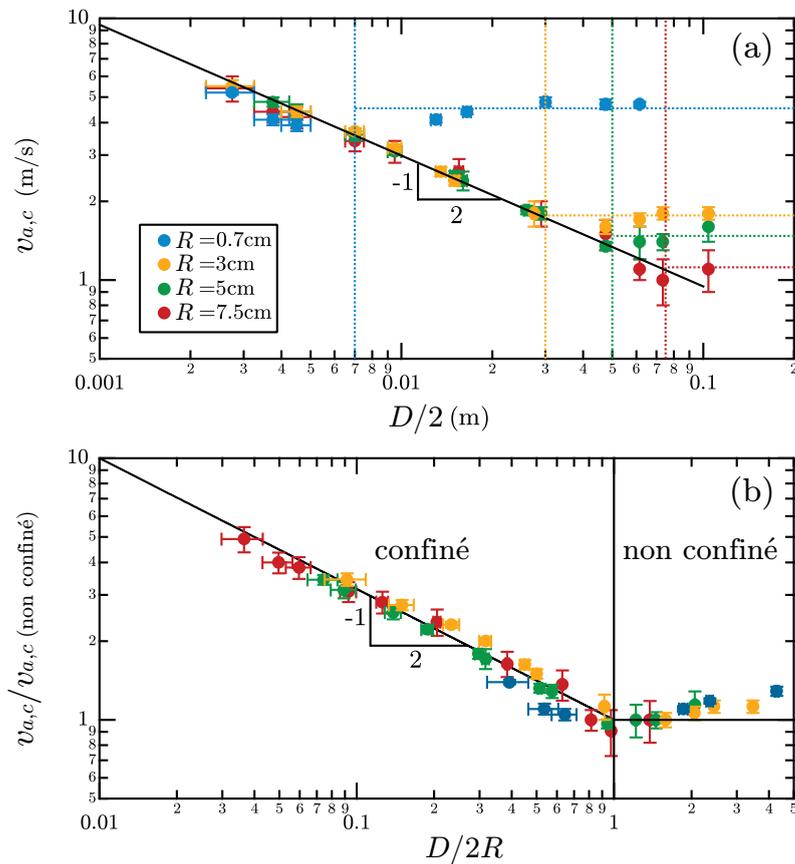


FIGURE 9.30: (a) Vitesse critique de formation d'un train de bulles en fonction du rayon du cadre  $D/2$ . Chaque couleur correspond à un rayon de soufflerie donné. Au-delà du bon accord avec la prédiction théorique, les expériences montrent que la vitesse seuil ne dépend en fait que de la taille minimale pertinente du système : cette taille est  $D/2$  lorsque  $D/2 < R$  (régime confiné),  $R$  lorsque  $D/2 > R$  (régime non confiné), ceci confortant les résultats obtenus précédemment. (b) En adimensionnant ces résultats par l'échelle de taille  $R$  et l'échelle de vitesse seuil dans le régime non confiné obtenue à la limite  $D=2R$ , les différentes séries expérimentales se superposent comme attendu.

quasiment laminaire en sortie de soufflerie. Nous avons par ailleurs vérifié que l'élargissement du profil avec la distance  $\delta$  s'effectuait en accord avec l'équation 9.41, ceci corroborant par la même occasion la valeur de l'angle d'ouverture du cône turbulent prise en compte dans les calculs précédents. Tentons alors de modéliser cette nouvelle

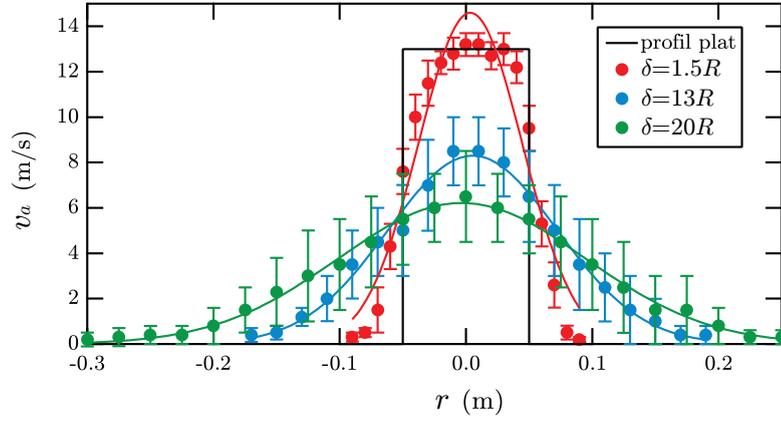


FIGURE 9.31: Élargissement du profil de vitesse avec la distance  $\delta$ . Les trois séries expérimentales ont été effectuées avec une soufflerie de rayon  $R = 5$  cm et ajustées par des lois gaussiennes.

configuration combinant confinement et dissipation. Par souci de simplicité, supposons tout d'abord que la vitesse pertinente à considérer est la vitesse maximale<sup>7</sup> du profil gaussien. La conversion énergétique au niveau du film s'écrit donc :

$$\frac{\rho_a v_{a,c}^2}{2} \left( \frac{10R}{5R + \delta} \right)^2 \sim \frac{8\gamma}{D}, \quad (9.59)$$

$$v_{a,c} \sim 2\sqrt{\frac{\gamma}{\rho_a D}} \left( 1 + \frac{\delta}{5R} \right), \quad (9.60)$$

7. Un autre candidat éventuel est bien entendu la vitesse moyenne au niveau du film, en  $x = \delta$  :

$$v_{a,conf}(\delta) = \frac{1}{\pi \left(\frac{D}{2}\right)^2} \int_0^{D/2} 2\pi r v_a(\delta, r) dr, \quad (9.56)$$

$$v_{a,conf}(\delta) = \frac{4Rv_a}{\left(R + \frac{\delta}{5}\right) \left(\frac{D}{2}\right)^2} \int_0^{D/2} r \exp\left(-\frac{r^2}{2\sigma^2(\delta)}\right) dr, \quad (9.57)$$

$$v_{a,conf}(\delta) = \frac{5Rv_a}{5R + \delta} \frac{1 - \exp(-2D^2)}{D^2} = v_{a,nconf}(\delta) \frac{1 - \exp(-2D^2)}{D^2}. \quad (9.58)$$

Le calcul fait émerger un nouveau facteur correctif, fonction du diamètre adimensionné  $\mathcal{D} = D/D_c$  du film,  $v_{a,conf}(\delta)$  étant bornée entre deux valeurs extrêmes. Au plus large confinement ( $\mathcal{D} = 1$ ), on retrouve pour le facteur correctif la valeur  $1 - e^{-2}$ , dû au choix d'une borne supérieure d'intégration finie. L'autre limite correspond au plus petit confinement ( $\mathcal{D} \rightarrow 0$ ), pour lequel on retrouve la vitesse centrale maximale de la distribution, égale au double de la valeur moyenne déterminée par intégration avec borne supérieure infinie : le facteur correctif vaut donc 2 dans ce cas (ce facteur se retrouve immédiatement par développement limité). Le préfacteur varie finalement continûment de 2 à 0.86 avec  $\mathcal{D}$ . Puisque les résultats expérimentaux ne présentent aucune dépendance en  $D$ , à  $R, \delta$  fixés, cette hypothèse est rejetée dans la suite.

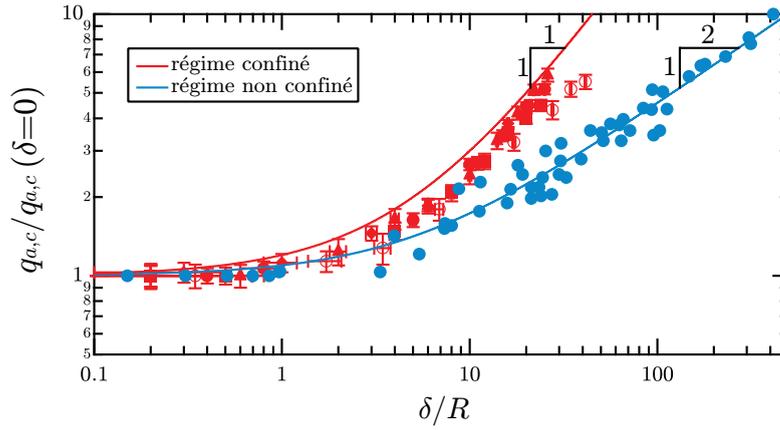


FIGURE 9.32: Analyse comparative de l'augmentation du seuil de création d'un train de bulles en présence de dissipation, dans les régimes confiné (rouge) et non confiné (bleu). En régime confiné, les symboles vides et pleins correspondent respectivement aux mesures effectuées avec une soufflerie de rayon  $R = 3$  cm et 5 cm ; chaque série de symboles correspond à un cadre de rayon donné :  $D/2 = 0.65, 0.9, 1.5, 2.6$  cm.

$$q_{a,c} = \pi R^2 v_{a,c} \sim 2\pi \sqrt{\frac{\gamma R^4}{\rho_a D}} \left(1 + \frac{\delta}{5R}\right), \quad (9.61)$$

$$q_{a,c} \sim q_{a,c}(\delta = 0) \left(1 + \frac{\delta}{5R}\right). \quad (9.62)$$

Ainsi, l'augmentation du débit seuil se fait de façon plus rapide en régime confiné (Fig. 9.32), du fait que la pression de Laplace est fixée par la taille du cadre, indépendamment de  $\delta$ . L'utilisation du film géant (régime non confiné) présente donc le double avantage d'ajuster la taille des bulles souhaitées en fonction de la distance film-aiguille, et ce à moindre coût, puisque le débit seuil croît seulement avec  $\sqrt{\delta}$ . Les différents résultats peuvent être résumés dans les tableaux ci-dessous :

$q_{a,c}$	sans dissipation ( $\delta = 0$ )	avec dissipation ( $\delta > 0$ )
sans confinement ( $R + \frac{\delta}{5} < \frac{D}{2}$ )	$q_{a,c,0} = 2\pi\sqrt{2}\sqrt{\frac{\gamma R^3}{\rho_a}}$	$q_{a,c,0}\sqrt{1 + \frac{\delta}{5R}}$
avec confinement ( $R + \frac{\delta}{5} > \frac{D}{2}$ )	$q_{a,c,0}\sqrt{\frac{R}{D/2}}$	$q_{a,c,0}\sqrt{\frac{R}{D/2}} \left(1 + \frac{\delta}{5R}\right)$

$R_b$	sans dissipation ( $\delta = 0$ )	avec dissipation ( $\delta > 0$ )
sans confinement ( $R + \frac{\delta}{5} < \frac{D}{2}$ )	$R$	$R + \frac{\delta}{5}$
avec confinement ( $R + \frac{\delta}{5} > \frac{D}{2}$ )	$\frac{D}{2}$	$\frac{D}{2}$

Contrairement au cas non confiné, montrons qu'il n'est ici pas nécessaire de tronquer les résultats à l'aide d'un nombre de Reynolds de coupure  $\mathcal{R}e^*$ . Ceci peut s'interpréter en exprimant à nouveau  $\mathcal{R}e$  dans cette configuration. La taille typique de l'écoulement devient le rayon  $R$  de la soufflerie, alors que la vitesse typique, donnée par l'équation 9.52, dépend de la taille du cadre  $D$  :

$$\mathcal{R}e = \frac{\rho_a v_{a,c} R}{\eta_a} \simeq \frac{R}{\eta_a} \sqrt{\frac{\rho_a \gamma}{D}} \sim 10^3 - 10^4. \quad (9.63)$$

Les nombres de Reynolds sont bien plus élevés dans la configuration de la soufflerie et surpassent donc plus facilement le nombre de Reynolds  $\mathcal{R}e^*$  marquant la transition laminaire/turbulent évoquée précédemment.

Pour terminer, notons que la soufflerie, couramment utilisée en travaux pratiques, comporte une grille en sortie de tuyère (voir Fig. 9.29) dans le but de linéariser les lignes de champ et diminuer l'influence des effets turbulents sur une certaine distance de travail. Afin de s'affranchir de cet effet et ainsi rester dans les limites du modèle de dissipation présenté (émergence immédiate du cône turbulent en sortie de la soufflerie), les résultats présentés sur la figure 9.32 ont été mesurés en l'absence de cette grille. En laissant la grille, une seconde série de mesures montre que les résultats obtenus suivent une tendance équivalente, mais translatée horizontalement de façon assez significative (Fig. 9.33), avec un décollage du débit seuil situé vers  $\delta/R \simeq 10$ . Le rôle de la grille est ainsi clairement mis en évidence.

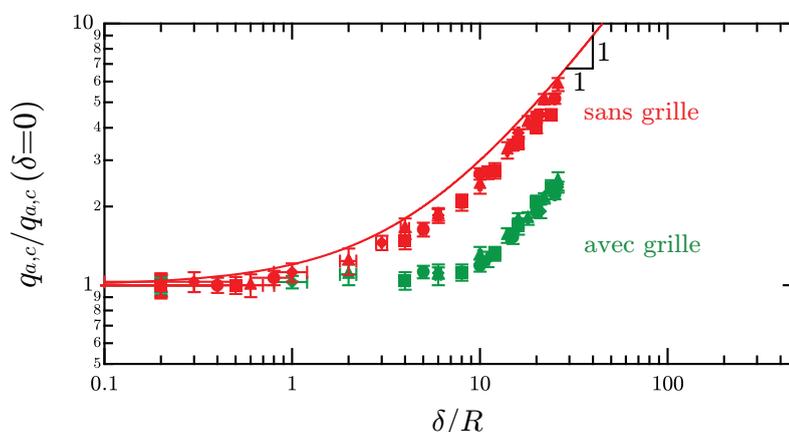


FIGURE 9.33: Analyse comparative de l'augmentation du seuil de création d'un train de bulles en régime confiné dissipé, sans grille (rouge) et avec grille (vert). Les mesures correspondent à une soufflerie identique de rayon  $R = 5$  cm.

## 8 Perspectives

Dans le but de prolonger les travaux présentés dans ce chapitre, nous proposons ici plusieurs pistes d'approfondissement.

Tout d'abord, il serait tentant de rendre le problème plus complexe en brisant son axisymétrie. En plaçant le film de savon dans le plan  $(Oy, Oz)$  et la direction perpendiculaire au film selon l'axe  $(Ox)$ , la direction  $(Ou)$  de l'aiguille est définie par les angles suivants :  $\widehat{Ox, Ou} = \alpha$  dans le plan  $(Ox, Oz)$ ,  $\widehat{Ox, Ou} = \beta$  dans le plan  $(Ox, Oy)$ . Les composantes de la vitesse s'écrivent à présent :

$$\begin{cases} v_{g,x} &= v \cos \beta \cos \alpha \\ v_{g,y} &= v \sin \beta \\ v_{g,z} &= v \cos \beta \sin \alpha \end{cases}$$

Nous proposons ici deux scénarios permettant de rendre compte de l'effet d'inclinaison sur le débit seuil de création d'un train de bulles.

- Selon un premier scénario, nous pouvons supposer que seule la composante utile de la vitesse, soit  $v_{g,x}$ , intervient dans le bilan d'énergie décrit par l'équation de Bernoulli (Éq. 9.7). Il découle de cette hypothèse que le débit d'air critique augmente à mesure que l'incidence du flux gazeux sur le film est de plus en plus rasante :  $q_{g,c} \propto (\cos \beta \cos \alpha)^{-1}$ .
- Un second scénario traduit la prise en compte de la dissipation induite par l'inclinaison du jet. En prenant par exemple  $\beta = 0$  et  $\alpha \neq 0$ , quelques considérations géométriques montrent que la distance moyenne entre l'aiguille et le film peut s'écrire  $\delta = R \tan \alpha$ . À la lumière des résultats précédents obtenus en régime non confiné, cet effet provoque donc de nouveau une augmentation du débit seuil, de la forme  $q_{g,c} \propto \sqrt{1 + \tan \alpha/5}$ .

Remarquons que ces deux petits modèles d'inclinaison candidats présentent des comportements assez différents : l'expérience devrait finalement discriminer et sélectionner le scénario le plus plausible à prendre en compte.

Nous avons également observé expérimentalement qu'en inclinant le jet, pour un débit gazeux confortablement supérieur au débit seuil, la taille moyenne des bulles variait peu, alors que la couleur des bulles changeait nettement. Ceci démontre l'influence de l'inclinaison sur l'épaisseur des bulles formées et permettrait d'envisager un système de production de bulles de savon, dont la taille et l'épaisseur pourraient être contrôlées de façon indépendante.

Par ailleurs, les expériences réalisées avec de l'hélium montrent que les « grosses » bulles finissent par redescendre après leur première phase d'ascension, justifiant de la diffusion de l'hélium dans l'atmosphère à travers la membrane poreuse de la bulle de savon. À l'aide des outils thermodynamiques, il serait intéressant de pouvoir prédire le temps de diffusion de l'hélium en fonction des paramètres pertinents du problème, notamment le rayon et l'épaisseur de la bulle.

Nous nous sommes également intéressés à l'influence du débit gazeux, au-delà du seuil de création d'un train de bulles, sur la distribution de taille des bulles. Nous avons expérimentalement distingué deux régimes différents (Fig. 9.34).

- Pour un débit assez proche du débit seuil :  $q_g \simeq [1-2]q_{g,c}$ , les bulles se forment l'une après l'autre. En référence à d'autres travaux issus de la littérature [192], ce mode est dénommé *dripping*.
- Pour un débit plus élevé :  $q_g > 2q_{g,c}$ , il arrive parfois que le cylindre se fragmente de façon simultanée à différents endroits, conduisant à la formation de plusieurs bulles en même temps. Par opposition au premier mode, ce mode est dénommé *jetting*. La transition *dripping/jetting* s'opère donc pour un débit de l'ordre de quelques  $q_{g,c}$ , ou encore un nombre de Weber de l'ordre de 20.

Ce changement de régime n'est pas sans conséquence sur la taille des bulles créées. La figure 9.35 représente pour un jet d'air la taille moyenne des bulles en fonction du débit  $q_a$ , ces deux quantités étant respectivement adimensionnées par  $R$  et  $q_{a,c}$ . Nous remarquons que la taille moyenne décroît puis semble atteindre un plateau autour de la valeur 2. Nous interprétons cette variation en invoquant le changement

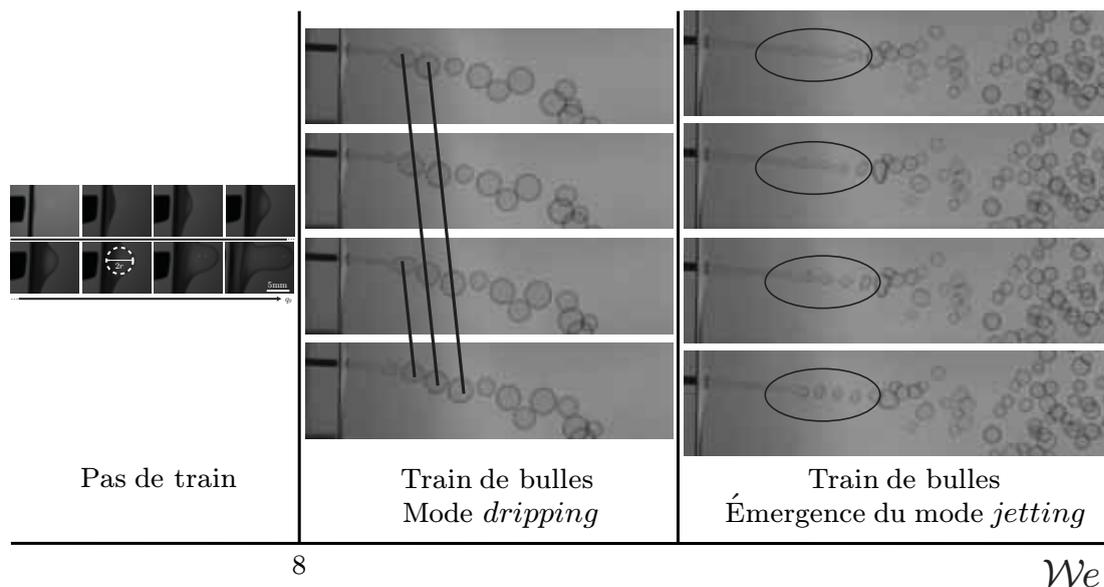


FIGURE 9.34: Influence qualitative du nombre de Weber sur le mécanisme de formation des bulles de savon.

de régime *dripping/jetting* évoqué précédemment : le mode *jetting* se rapprochant du processus de déstabilisation classique d'un cylindre infini selon l'instabilité de Rayleigh-Plateau, nous retrouvons un préfacteur très proche de la valeur obtenue attendue selon cette instabilité : 1.9 (voir Éq. 9.36).

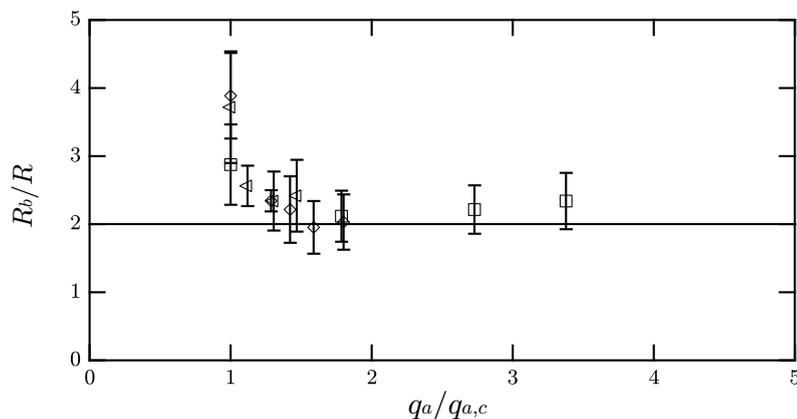


FIGURE 9.35: Influence du débit d'air, normalisé par  $q_{a,c}$ , sur la taille moyenne des bulles formées, normalisée par  $R$ . Chaque série de symboles correspond à un rayon d'aiguille donné.

Enfin, nous pourrions étudier comment se comporterait le film liquide si le sens de l'écoulement gazeux était inversé, en aspirant de l'air à une vitesse et un débit donnés. Il serait intéressant d'analyser le profil adopté par le film dans cette configuration et éventuellement son autosimilarité en fonction des variables du

problème, par analogie avec d'autres travaux portant sur des singularités hydrodynamiques [197, 198].

## Chapitre 10

# Dynamique d'étalement d'une bulle sur une surface

Les processus d'étalement d'une goutte ont été largement documentés dans la littérature depuis les années 1960 [11, 199, 200, 201, 202, 203, 204] et font encore l'objet de diverses études, rendues possibles par les progrès des caméras rapides et leur facilité d'utilisation. Certains travaux mettent en évidence un régime d'étalement inertiel d'une goutte en mouillage total aux temps courts [205]. D'autres auteurs examinent l'influence du substrat sur l'étalement, en configuration de mouillage partiel [206, 207], ou encore décoré d'une « forêt » de plots à l'échelle de quelques dizaines de microns (voir par exemple [208, 209]), conçue par des techniques de lithographie douce présentées dans la première partie du manuscrit. Enfin, d'autres études se focalisent sur l'étalement de gouttes visqueuses [210] ou d'agrégats cellulaires [211]. Inspirés de ces travaux, nous proposons dans ce chapitre une étude expérimentale et théorique de l'étalement d'une bulle sur un substrat lisse et chimiquement homogène (Fig. 10.1). Nous observons l'émergence de plusieurs dynamiques successives ; nous les caractérisons et les modélisons par des lois de puissances temporelles, en assez bon accord avec l'expérience.

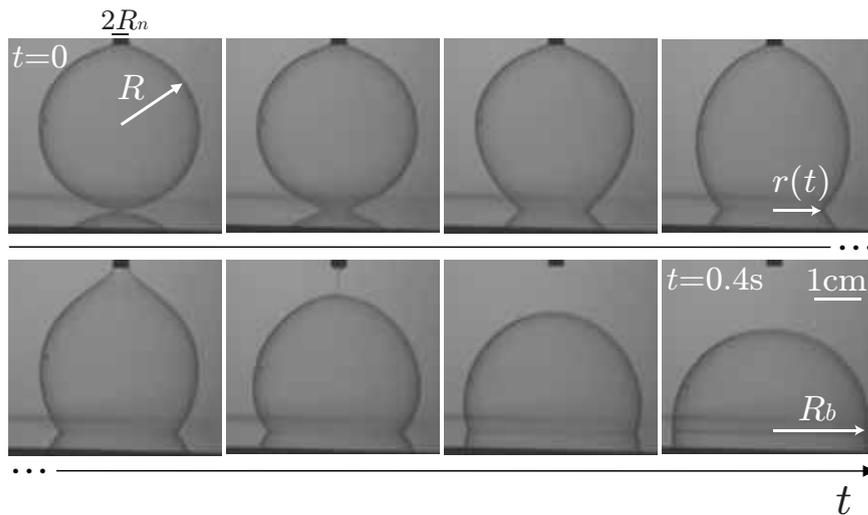


FIGURE 10.1: Série de photos expérimentales illustrant l'étalement d'une bulle de savon au cours du temps.

## 1 Analyse préliminaire

Considérons une bulle sphérique de rayon  $R$  et d'épaisseur supposée uniforme dans un premier temps et notée  $e$ , suspendue à une aiguille de rayon  $R_n \ll R$ . La tension de surface liquide/air est notée  $\gamma$ , les masses volumiques du liquide et de l'air sont respectivement notées  $\rho_l$  et  $\rho_a$ , les viscosités dynamiques du liquide et de l'air sont respectivement notées  $\eta_l$  et  $\eta_a$ . Tentons tout d'abord de comprendre pourquoi, au contact d'une surface lisse et chimiquement homogène, la bulle s'étale et forme à l'instant final une bulle interfaciale hémisphérique, de rayon noté  $R_b$ . Ceci peut s'interpréter de façon simple par des considérations énergétiques. En écrivant la conservation du volume d'air entre l'instant initial et l'instant final :

$$\frac{4}{3}\pi R^3 = \frac{2}{3}\pi R_b^3, \quad (10.1)$$

$$R_b = 2^{\frac{1}{3}}R > R. \quad (10.2)$$

Calculons alors le rapport entre les énergies de surface prises à l'instant initial et l'instant final :

$$\frac{E_{\Sigma,f}}{E_{\Sigma,i}} = \frac{2\gamma 2\pi R_b^2}{2\gamma 4\pi R^2} = \frac{1}{2} \left( \frac{R_b}{R} \right)^2 = 2^{-\frac{1}{3}} < 1. \quad (10.3)$$

Ainsi, l'énergie de surface libérée est convertie en énergie cinétique, ceci permettant de mettre en mouvement le système et de provoquer l'étalement. Notons que ce raisonnement simple est valable en toute rigueur sur un substrat mouillé préalablement avec le même liquide. Sur substrat sec, il importe de tenir compte de toutes les énergies de surface impliquées dans ce processus : liquide/vapeur, mais également solide/vapeur ( $\gamma_{S/V}$ ) et solide/liquide ( $\gamma_{S/L}$ ). La différence d'énergie de surface s'écrit alors :

$$E_{\Sigma,f} - E_{\Sigma,i} = [2\gamma 2\pi R_b^2 + (\gamma_{S/L} + \gamma)\pi R_b^2] - [2\gamma 4\pi R^2 + \gamma_{S/V} \pi R_b^2]. \quad (10.4)$$

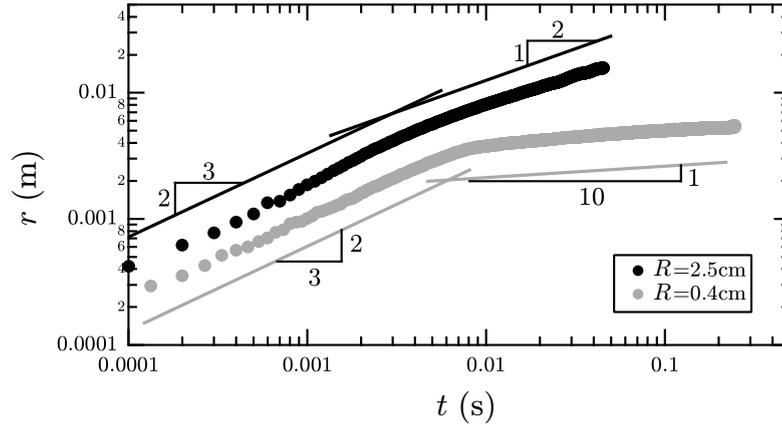


FIGURE 10.2: Dynamiques d'étalement pour deux bulles de tailles différentes.

En utilisant l'équation 10.2 ainsi que la relation de Young-Dupré, en notant  $\theta$  l'angle de mouillage :

$$\gamma \cos \theta = \gamma_{S/V} - \gamma_{S/L}, \quad (10.5)$$

il vient :

$$E_{\Sigma,f} - E_{\Sigma,i} = \gamma \pi R^2 (2^{\frac{2}{3}} (5 - \cos \theta) - 8). \quad (10.6)$$

Comme le substrat est généralement mouillant vis-à-vis de la solution savonneuse utilisée, nous pouvons vérifier que  $E_{\Sigma,f} < E_{\Sigma,i}$ , conformément à la première analyse. Mais ceci ne serait plus le cas si l'angle de mouillage dépassait une valeur critique  $\theta_c$ , de l'ordre de  $92^\circ$  en cherchant l'annulation de la différence des énergies dans l'équation 10.6.

Nous nous attachons dans la suite à décrire la dynamique d'étalement  $r(t)$  plus précisément, où  $r(t)$  correspond au rayon de la surface de contact entre la bulle et le substrat (voir Fig. 10.1). Une bulle de savon est expérimentalement formée en immergeant un capillaire de rayon millimétrique dans une solution savonneuse commerciale (Potentier). Ce capillaire est ensuite connecté à une seringue, la bulle est alors formée en appuyant sur la seringue à débit constant. Ce débit est suffisamment faible de façon à maintenir la bulle sphérique à tout instant pendant la phase de gonflement. Nous faisons affleurer la bulle à une surface en verre préalablement nettoyée à l'eau distillée puis à l'acétone, et enfin séchée à flux d'air comprimé. Ces précautions importantes servent à s'assurer d'avoir un état de surface le plus propre possible, en diminuant au maximum l'effet d'éventuelles impuretés et rugosités sur l'étalement. La distance séparant l'extrémité du capillaire et la plaque de verre fixe le diamètre  $2R$  de la bulle initiale, cette quantité étant variée dans l'intervalle 0.8–13 cm. La figure 10.2 représente, pour deux tailles de bulle  $R$  différentes, le suivi temporel  $r(t)$  au cours de l'étalement en coordonnées logarithmiques. Comme de nombreux phénomènes hydrodynamiques (imbibition, pincement, coalescence, explosion<sup>1</sup>), l'expérience montre que les dynamiques d'étalement peuvent s'exprimer à l'aide de lois de puissance temporelles, de puissances  $2/3$  puis  $1/2$  pour

1. Citons ici le célèbre exemple de la première explosion nucléaire *Trinity Test* (bombe atomique au plutonium) réalisée le 16 juillet 1945 dans le Nouveau Mexique, et du secret mal gardé qui s'ensuivit. Uniquement à partir de clichés rendus publics par le gouvernement américain en 1949,

une bulle initiale centimétrique, et de puissance  $2/3$  puis  $1/10$  pour une bulle initiale millimétrique (Fig. 10.2). Puisque l'exposant et le préfacteur des lois de puissance temporelles sont généralement de bons indicateurs des mécanismes clés mis en compétition, nous proposons ci-dessous une analyse dimensionnelle simple permettant de justifier ces résultats.

## 2 Interprétation

Commençons par évaluer un nombre de Reynolds  $\mathcal{R}e$  typique dans cette expérience. Avec une taille  $R \simeq 10^{-2}$  m et une durée  $T \simeq 10^{-2}$  s, estimons une vitesse de ce processus  $v \sim R/T \simeq 1$  m.s<sup>-1</sup>. Que l'on définisse le nombre de Reynolds pour l'air,  $\mathcal{R}e = \rho_a v R / \eta_a \simeq 10^3$ , ou pour le film,  $\mathcal{R}e = \rho_l v R / \eta_l \simeq 10^2$ , les valeurs obtenues sont grandes devant l'unité. Nous négligeons donc dans la suite les processus de dissipation visqueuse au cours de l'étalement, du moins aux temps courts. Ainsi, la bulle, soit le système constitué du volume d'air enfermé et de la coque liquide délimitant ce volume, ne voit pas son énergie mécanique varier. Pendant un petit intervalle de temps  $dt$ , nous avons :

$$dE_\Sigma + dE_c = 0, \quad (10.7)$$

la perte d'énergie de surface  $dE_\Sigma < 0$  compensant exactement le gain d'énergie cinétique  $dE_c > 0$ . Calculons séparément chacune de ces contributions. Les coefficients numériques sans dimension, de l'ordre de l'unité et n'affectant pas la compréhension du phénomène, sont laissés de côté dans la suite.

### 2.1 Calcul de la contribution interfaciale $dE_\Sigma$

L'expérience, vue de dessous, permet de visualiser le disque de contact dont le rayon  $r(t)$  croît avec le temps; nous vérifions ainsi que cet étalement s'effectue de façon isotrope. Vue de côté, l'expérience montre qu'une fois le contact établi entre la bulle et le substrat, celle-ci prend aux temps courts, et de façon approximée, la forme d'une calotte sphérique paramétrée par les rayons  $r(t)$  et  $R(t)$ , ce dernier étant, par conservation du volume d'air, plus grand que le rayon initial  $R$  de la bulle (Fig. 10.3). En adaptant les calculs effectués dans le chapitre 8, le volume  $\mathcal{V}$  de cette calotte s'exprime comme :

$$\mathcal{V} = \frac{2\pi R^3(t)}{3} \left[ 1 + \sqrt{1 - \left(\frac{r(t)}{R(t)}\right)^2} \left(1 + \frac{1}{2} \left(\frac{r(t)}{R(t)}\right)^2\right) \right], \quad (10.8)$$

soit, à l'ordre 4 en  $r(t)/R(t)$  :

$$\mathcal{V} \simeq \frac{4\pi R^3(t)}{3} - \frac{\pi r^4(t)}{4R(t)}. \quad (10.9)$$

Puisque le volume de la bulle est conservé,  $d\mathcal{V} = 0$  implique alors :

$$4R^2(t)dR - \frac{r^3(t)dr}{R(t)} + \frac{r^4(t)dR}{4R^2(t)} = 0, \quad (10.10)$$

---

G. I. Taylor réussit à estimer l'énergie libérée par l'explosion [212]. Cette information était pourtant classée « top secret » à l'époque.

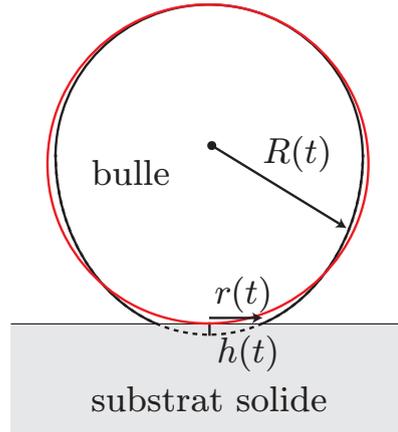


FIGURE 10.3: Configuration schématique de la bulle en cours d'étalement : notations utilisées. La bulle, initialement sphérique et représentée en rouge, adopte au cours de l'étalement une forme semblable à celle d'une calotte sphérique de rayons  $r(t)$  et  $R(t)$ , représentée en noir.

soit, avec  $r(t)/R(t) \ll 1$  :

$$dR \simeq \frac{r^3(t)dr}{4R^3(t)}. \quad (10.11)$$

Nous remarquons ainsi que  $R(t)$  croît beaucoup moins vite que  $r(t)$  au vu du préfacteur  $r^3(t)/R^3(t)$  intervenant dans cette relation différentielle : nous prendrons donc  $R(t) \simeq R$  dans la suite. La surface  $\Sigma$  de la calotte sphérique s'exprime quant à elle :

$$\Sigma = 4\pi R^2 - 2\pi R h(t), \quad (10.12)$$

où la hauteur  $h(t)$  est déterminée par le théorème de Pythagore (voir Fig. 10.3) :

$$(R - h(t))^2 + r^2(t) = R^2. \quad (10.13)$$

soit, à l'ordre le plus bas non nul :

$$h(t) \simeq \frac{r^2(t)}{2R}, \quad (10.14)$$

$$\Sigma \simeq 4\pi R^2 - \pi r^2(t). \quad (10.15)$$

La perte de surface de la bulle  $d\Sigma$  s'exprime donc :

$$d\Sigma = -2\pi r dr, \quad (10.16)$$

de laquelle nous pouvons tirer la perte d'énergie de surface associée  $dE_\Sigma$  :

$$dE_\Sigma = 2\gamma d\Sigma \sim -\gamma r dr. \quad (10.17)$$

## 2.2 Calcul de la contribution cinétique $dE_c$

L'énergie de surface libérée au cours de l'étalement de la bulle est convertie en énergie cinétique dans le volume d'air et le film liquide<sup>2</sup>. L'expérience montre qu'au fur et à mesure de l'étalement, la déformation de la bulle en calotte sphérique se propage progressivement selon la direction verticale, du substrat sur laquelle elle s'étale vers l'aiguille. Aux temps courts, tout se passe comme si, en un instant donné, la partie supérieure de la bulle n'était pas du tout affectée par la dynamique d'étalement, contrairement à la partie inférieure (voir les trois premières images de la figure 10.1). La hauteur de cette partie inférieure mise en mouvement est typiquement donnée par  $h(t)$ , que nous avons explicitée à l'équation 10.14. Les volumes de liquide  $V_l$  et d'air  $V_a$  concernés par le mouvement s'expriment donc respectivement comme :

$$V_l \sim r(t)eh(t) \sim \frac{er^3(t)}{R}, \quad (10.18)$$

$$V_a \sim r^2(t)h(t) \sim \frac{r^4(t)}{R}, \quad (10.19)$$

$e$  désignant l'épaisseur de la bulle supposée homogène. Le mouvement étant susceptible de s'effectuer selon les directions radiale et verticale, comparons en ordre de grandeur les composantes respectives de la vitesse  $\dot{r}$  et  $\dot{h}$ . En dérivant la relation 10.14 par rapport au temps, nous obtenons :

$$\frac{\dot{h}}{\dot{r}} \simeq \frac{r(t)}{R}, \quad (10.20)$$

en ayant de nouveau utilisé la condition  $\dot{R} \ll \dot{r}$  déduite de la relation 10.11. Comme nous restons dans l'approximation  $r(t) \ll R$  aux premiers instants de l'étalement, nous obtenons  $\dot{h} \ll \dot{r}$ . En supposant ainsi le mouvement uniquement radial,  $v = \dot{r}$ ,  $dE_c$  peut finalement s'exprimer comme la somme de deux composantes :

$$dE_c = dE_{c,l} + dE_{c,a}, \quad (10.21)$$

avec, respectivement pour le liquide et l'air :

$$E_{c,l} \sim \frac{\rho_l e r^3 \dot{r}^2}{R}, \quad (10.22)$$

$$E_{c,a} \sim \frac{\rho_a r^4 \dot{r}^2}{R}. \quad (10.23)$$

En anticipant sur la suite, mentionnons que la présence de ces deux termes, différents de par les paramètres et puissances qui y interviennent, induit la possibilité de deux régimes d'étalement distincts. Nous obtenons en ordre de grandeur :

$$\frac{E_{c,a}}{E_{c,l}} \sim \frac{\rho_a r}{\rho_l e} = \frac{r}{R_c}, \quad (10.24)$$

---

2. Une partie de l'énergie libérée est aussi convertie en énergie de surface du film liquide de rayon  $r(t)$  se déposant sur le substrat pendant l'étalement. Son accroissement, s'exprimant directement  $\gamma 2\pi r dr$ , varie en  $r$  de la même façon que la perte d'énergie de surface de la bulle  $dE_\Sigma$  (Éq. 10.17) : le fait de ne pas en tenir compte n'affecte donc pas la suite de cette analyse dimensionnelle.

avec  $R_c = \rho_l e / \rho_a$ . Pour une gamme d'épaisseur  $e = 1 - 10 \mu\text{m}$ ,  $R_c = 0.8 - 8 \text{ mm}$ . On peut donc pressentir qu'aux premiers instants, c'est-à-dire pour  $r \ll R_c$ , l'énergie cinétique correspond principalement à celle fournie au film liquide. À l'inverse, après un certain temps caractéristique  $\tau_{1 \rightarrow 2}$  restant à déterminer, on peut s'attendre à ce que le régime  $r \gg R_c$  prenne le relais, pour lequel l'énergie cinétique correspondrait principalement à celle fournie à l'air. Détaillons dans la suite chacune de ces deux dynamiques.

### 2.3 1<sup>ère</sup> dynamique : compétition capillarité-inertie du liquide

Aux temps très courts, l'énergie cinétique est principalement celle octroyée au film. En reprenant la conservation de l'énergie mécanique, il vient :

$$\gamma r dr \sim \rho_l d \left( \frac{er^3 \dot{r}^2}{R} \right). \quad (10.25)$$

En cherchant une solution de la forme  $r(t) \sim At^\alpha$  et en l'injectant dans ce bilan énergétique, on peut montrer que :

$$r(t) \sim \left( \frac{\gamma R}{\rho_l e} \right)^{\frac{1}{3}} t^{\frac{2}{3}}. \quad (10.26)$$

Il est rassurant de remarquer que le préfacteur comporte au numérateur, comme attendu, le terme capillaire moteur du processus, et au dénominateur le terme limitant de mise en mouvement inertielle du film liquide. L'équation 10.26 peut se mettre sous la forme adimensionnée suivante :

$$\frac{r(t)}{R} \sim \left( \frac{t}{\tau_1} \right)^{\frac{2}{3}} \quad \text{avec} \quad \tau_1 = \sqrt{\frac{\rho_l e R^2}{\gamma}}. \quad (10.27)$$

Rappelons néanmoins que cette dynamique ne dure qu'aux temps très courts, et qu'une transition est attendue lorsque  $r(\tau_{1 \rightarrow 2}) \sim R_c$ . Cette relation permet d'exprimer  $\tau_{1 \rightarrow 2}$  sous la forme :

$$\tau_{1 \rightarrow 2} \sim \left( \frac{\rho_l e}{\gamma R} \right)^{\frac{1}{2}} R_c^{\frac{3}{2}} \sim \frac{(\rho_l e)^2}{\sqrt{\gamma R \rho_a^3}}. \quad (10.28)$$

### 2.4 2<sup>ème</sup> dynamique : compétition capillarité-inertie de l'air

Pour  $t > \tau_{1 \rightarrow 2}$ , soit  $r > R_c$ , l'énergie cinétique est principalement celle offerte à l'air, du fait que sa contribution énergétique s'exprime à la puissance  $r^4$  (Éq. 10.23), la contribution énergétique du liquide s'exprimant seulement à la puissance  $r^3$  (Éq. 10.22). Le bilan énergétique se réécrit donc comme :

$$\gamma r dr \sim \rho_a d \left( \frac{r^4 \dot{r}^2}{R} \right). \quad (10.29)$$

En cherchant de nouveau une solution de la forme  $r(t) \sim At^\alpha$ , il vient à présent :

$$r(t) \sim \left( \frac{\gamma R}{\rho_a} \right)^{\frac{1}{4}} t^{\frac{1}{2}}. \quad (10.30)$$

En remarquant le changement de loi de puissance, ce résultat est de nouveau rassurant quant à l'expression du préfacteur, où une discussion analogue à la partie précédente peut être reprise. Une forme adimensionnée de l'équation 10.30 est fournie par :

$$\frac{r(t)}{R} \sim \left( \frac{t}{\tau_2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{avec} \quad \tau_2 = \sqrt{\frac{\rho_a R^3}{\gamma}}. \quad (10.31)$$

Une particularité de cette dynamique aux temps « intermédiaires » mérite d'être soulignée ici : ce comportement est analogue à la dynamique inertielle d'étalement d'une petite goutte aux temps courts en condition de mouillage total [205], la seule différence résidant dans le fait que c'est la masse volumique de l'air et non celle du liquide qui intervient dans le préfacteur.

Avoir l'occasion d'observer les deux dynamiques successives nécessite donc de se placer à un instant  $t > \tau_{1 \rightarrow 2}$ , tout en espérant que  $r(\tau_{1 \rightarrow 2}) < R_b \sim R$  : rappelons en effet que l'étalement s'arrête lorsque la bulle interfaciale est hémisphérique dans nos expériences [213]. Cette dernière condition se réécrit comme :

$$\left( \frac{\gamma R}{\rho_a} \right)^{\frac{1}{4}} \tau_{1 \rightarrow 2}^{\frac{1}{2}} < R, \quad (10.32)$$

$$R > \frac{\rho_l e}{\rho_a} = R_c. \quad (10.33)$$

Gardons également en tête que ces raisonnements ne tiennent de toute façon que pour un rayon d'ouverture  $r$  pas trop grand. En effet, l'expression de  $dE_\Sigma$  dévie du terme principal calculé précédemment lorsque  $r$  devient de l'ordre de  $R$ . D'ailleurs, cette limitation se retrouve dans l'approximation de la bulle par une calotte sphérique : celle-ci commence à s'éloigner significativement de cette forme lorsque la déformation s'est propagée sur une distance typiquement égale à son rayon :  $h \sim R$ . Comme  $h \sim r^2/R$ , ce critère se réécrit à nouveau comme  $r \sim R$ .

### 3 Comparaison avec l'expérience

En reconsidérant les résultats expérimentaux présentés sur la figure 10.2, nous remarquons que les tendances prédites en loi de puissance semblent bien reproduites par l'expérience : aux temps courts, l'inertie liquide l'emporte sur l'inertie de l'air, et le rayon de contact  $r(t)$  croît comme  $t^{\frac{2}{3}}$  pour les deux séries expérimentales. Pour la bulle centimétrique, nous remarquons une transition douce vers une tendance de pente 1/2 aux temps plus longs : cette loi de puissance est également en accord avec la modélisation. Concernant la bulle millimétrique, nous n'observons pas cette deuxième dynamique, conformément à l'analyse, mais une transition marquée vers une tendance beaucoup plus lente ; nous aurons l'occasion d'y revenir dans la partie suivante. La taille de bulle critique séparant ces deux évolutions est prédite par la relation 10.33. En prenant une épaisseur typique de film  $e \simeq 10 \mu\text{m}$ , choisissons-la assez grande du fait du drainage du liquide pendant la durée de gonflement de la bulle, et des masses volumiques  $\rho_l \simeq 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ ,  $\rho_a = 1.2 \text{ kg.m}^{-3}$ , il vient  $R_c \simeq 0.8 \text{ cm}$ . Cette taille critique est raisonnablement située entre les deux valeurs de  $R$  associées aux séries expérimentales présentées sur la figure 10.2 : ce fait semble donc

en accord avec le critère d'observation de la 2<sup>ème</sup> dynamique prédit théoriquement.

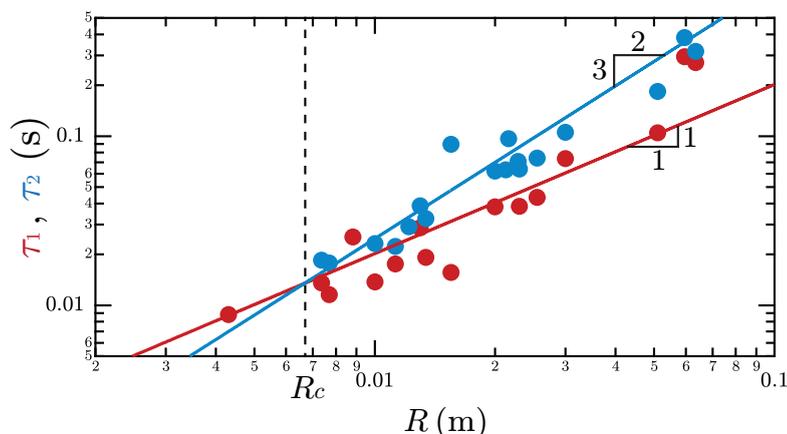


FIGURE 10.4: Évaluation des préfacteurs  $\tau_1 = \sqrt{\rho_l e R^2 / \gamma}$  et  $\tau_2 = \sqrt{\rho_a R^3 / \gamma}$  issus des deux dynamiques, comparaison théorie-expérience : capillarité-inertie liquide (en rouge), capillarité-inertie de l'air (en bleu). Les tendances rouge et bleue ont pour équations respectives  $3.5\sqrt{\rho_l e R^2 / \gamma}$  avec  $e=8 \mu\text{m}$ , et  $3.5\sqrt{\rho_a R^3 / \gamma}$ .

Analysons quantitativement l'évolution des préfacteurs obtenus pour chacune des dynamiques en fonction du rayon de la bulle initiale. La figure 10.4 présente l'évolution des temps  $\tau_1$  et  $\tau_2$  (Éq. 10.27, Éq. 10.31) tirés des ajustements des suivis expérimentaux  $r(t)$  en fonction de  $R$ . Les résultats obtenus semblent en assez bon accord avec les tendances prédites. Concernant la seconde dynamique, la tendance bleue tracée correspond à la prédiction tirée de l'équation 10.31 assortie d'un préfacteur multiplicatif 3.5, de l'ordre de l'unité. Concernant la première dynamique, la tendance rouge tracée correspond à la prédiction tirée de l'équation 10.27, affectée d'un préfacteur identique 3.5 et tracée pour une épaisseur  $e=8 \mu\text{m}$ , en conformité avec la valeur considérée dans le paragraphe précédent. Comme attendu par les équations 10.27 et 10.31, ces deux tendances se coupent en  $R = R_c$ , cette valeur marquant le seuil inférieur d'apparition de la deuxième dynamique. L'épaisseur  $e$  déduite de cet ajustement est néanmoins très compliquée à corrélérer à l'expérience du fait de sa forte inhomogénéité au pied de la bulle, due à plusieurs effets couplés et difficiles à contrôler : drainage, évaporation, fluctuations thermiques. Notons tout de même que la tendance de la première dynamique semble moins fidèle aux résultats expérimentaux pour les grandes tailles de bulle sondées. Nous interprétons cette déviation par l'importance des effets de drainage. En soufflant les bulles à débit constant  $Q$  de façon quasi-statique, le temps nécessaire pour gonfler la bulle varie comme  $R^3/Q$ , dépendant violemment de la taille de la bulle. Plus ce temps est long, plus le drainage gravitaire a le temps de s'établir, venant progressivement épaissir le film au pied de la bulle et ainsi créer un grand gradient d'épaisseur le long de sa surface. À une épaisseur plus grande correspond, d'après l'équation 10.26, un temps  $\tau_1$  plus grand. Cette explication qualitative semble donc aller dans le sens des résultats expérimentaux. En laissant de côté cette mesure, il est alors possible de réunir toutes les dynamiques  $r(t)$  mesurées pour différentes valeurs de  $R$  selon deux courbes maîtresses, correspondant respectivement à la première dynamique :

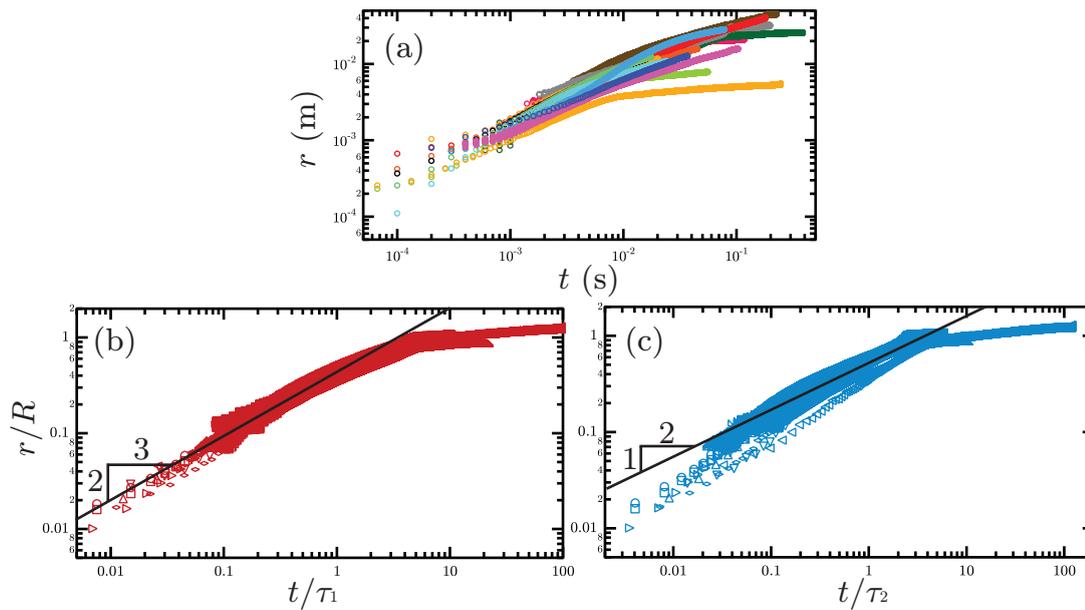


FIGURE 10.5: (a) Dynamiques d'étalement  $r(t)$  expérimentales : chaque couleur correspond à un rayon  $R$  donné. En renormalisant les données expérimentales selon les lois attendues  $r/R \sim (t/\sqrt{\rho_l e R^2/\gamma})^{2/3}$  avec  $e=8 \mu\text{m}$  (b),  $r/R \sim (t/\sqrt{\rho_a R^3/\gamma})^{1/2}$  (c), Toutes les séries se regroupent autour d'unique lois de puissance d'exposants  $2/3$  pour la première dynamique (b),  $1/2$  pour la seconde dynamique (c).

$r/R \sim (t/\tau_1)^{2/3}$ , et à la deuxième dynamique :  $r/R \sim (t/\tau_2)^{1/2}$ . Les données expérimentales se superposent effectivement assez bien selon les lois attendues (Fig. 10.5).

## 4 Éventualité d'une 3<sup>ème</sup> dynamique dissipative

D'après les lois d'échelle obtenues (Éq. 10.26, Éq. 10.30), nous remarquons que la vitesse d'étalement  $\dot{r}(t)$  diminue au cours du temps. Le nombre de Reynolds diminue donc également au cours du temps, et on pourrait s'attendre à observer une 3<sup>ème</sup> dynamique pour laquelle l'énergie capillaire est entièrement dissipée dans le coin liquide localisé sur le bord de la bulle. Ce mécanisme est donc analogue à la loi d'étalement visqueux d'une goutte en mouillage total, pour laquelle l'équation modélisant la dissipation d'énergie s'écrit à l'aide des lois de Tanner [201] et Cox-Voinov [214, 215] :

$$r^3 \left( \frac{\eta \dot{r}}{\gamma} \right)^{1/3} \sim R^3. \quad (10.34)$$

En intégrant cette relation, il vient désormais :

$$r(t) \sim \left( \frac{\gamma R^9}{\eta} \right)^{1/10} t^{1/10}, \quad (10.35)$$

soit encore, sous forme adimensionnée :

$$\frac{r(t)}{R} \sim \left( \frac{t}{\tau_3} \right)^{\frac{1}{10}} \quad \text{avec} \quad \tau_3 = \frac{\eta_l R}{\gamma}. \quad (10.36)$$

Ce comportement à très faible puissance semble donc être le dernier mécanisme accompagnant la lente stabilisation de la bulle interfaciale sur le substrat solide, et s'avère compatible avec les dynamiques d'étalement expérimentales (Fig. 10.2). Un nouveau point intéressant mérite d'être discuté ici : bien qu'une bulle et une goutte soient deux objets très différents structurellement, il semble que la présence d'un film liquide localisé sur le pourtour de la bulle suffise à conférer à cette dernière des propriétés identiques à celles d'une goutte, en l'occurrence l'émergence de cette dynamique lente d'étalement aux temps longs. Bien entendu, il convient de rester prudent quant à l'existence de cette dernière dynamique. Dans ce régime,  $r$  devient proche de  $R$  : l'apparition de cette taille de coupure dans la dynamique peut également justifier le ralentissement de l'étalement.

De façon analogue aux raisonnements précédents, la transition entre les 2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> dynamiques s'effectue pour un temps  $\tau_{2 \rightarrow 3}$  défini par :

$$\left( \frac{\gamma R}{\rho_a} \right)^{\frac{1}{4}} \tau_{2 \rightarrow 3}^{\frac{1}{2}} \sim \left( \frac{\gamma R^9}{\eta_l} \right)^{\frac{1}{10}} \tau_{2 \rightarrow 3}^{\frac{1}{10}}, \quad (10.37)$$

$$\tau_{2 \rightarrow 3} \sim \sqrt{\frac{\rho_a R^3}{\gamma}} \left( \frac{\rho_a \gamma R}{\eta_l^2} \right)^{\frac{1}{8}}. \quad (10.38)$$

De façon logique, cette forme rappelle le temps de croisement des dynamiques d'étalement inertielle et visqueuse d'une goutte [205], mise à part la nature de la masse volumique,  $\rho_a$  et non  $\rho_l$ , intervenant dans son expression. Notons que ce temps caractéristique  $\tau_{2 \rightarrow 3}$  est une fonction croissante de  $R$ , alors que le temps caractéristique  $\tau_{1 \rightarrow 2}$  décroît avec  $R$  (voir Éq. 10.28). Cela signifie que pour des bulles assez grandes, l'ordre des dynamiques correspond bien à celui décrit dans cette étude. Mais il existe nécessairement une nouvelle taille de coupure  $R^*$  telle que, pour des bulles de taille inférieure à cette taille caractéristique, la 2<sup>ème</sup> dynamique inertio-capillaire n'est pas entrevue par le système. Ainsi, en définissant cette taille par la relation en loi d'échelle  $\tau_{1 \rightarrow 2}(R^*) \sim \tau_{2 \rightarrow 3}(R^*)$ , il vient :

$$R^* \sim \frac{1}{\rho_a} \left( \frac{\rho_l^{16} e^{16} \eta_l^2}{\gamma} \right)^{\frac{1}{17}}, \quad (10.39)$$

$$R^* \sim R_c \left( \frac{\eta_l^2}{\gamma \rho_l e} \right)^{\frac{1}{17}}. \quad (10.40)$$

La très faible puissance 1/17 dans le membre de droite permet de s'affranchir du terme adimensionné entre parenthèses, et d'écrire raisonnablement  $R^* \sim R_c$  : on se ramène donc au précédent critère d'observation de la 2<sup>ème</sup> dynamique. D'après ce raisonnement, les plus petites bulles vérifiant  $R < R^*$  ne suivent pas la loi de puissance 1/2 décrite par la 2<sup>ème</sup> dynamique, et passent donc directement d'une loi de puissance rapide 2/3 à une loi de puissance lente 1/10, comme le montre l'expérience (Fig. 10.2).

## 5 Temps de détachement

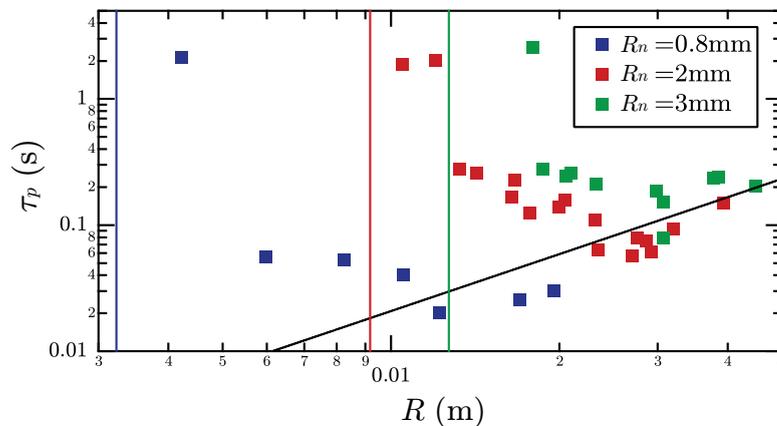


FIGURE 10.6: Temps de détachement  $\tau_p$  d'une bulle en fonction de son rayon  $R$ . Chaque jeu de symboles correspond à un rayon d'aiguille  $R_n$  donné. Pour chaque jeu de données, le détachement est observé uniquement lorsque le rapport  $R/R_n$  est plus grand qu'une certaine valeur, symbolisée par une droite verticale. La tendance noire tracée a pour équation  $3\sqrt{\rho_a R^3 / \gamma}$ .

Un phénomène non pris en compte dans l'analyse est le détachement de la bulle de l'aiguille. Notons  $\tau_p$  le temps s'écoulant entre le début de l'étalement de la bulle et son détachement de l'aiguille, et tentons de déterminer de quoi dépend ce temps (Fig. 10.6). L'expérience montre qu'en-dessous d'une certaine taille de bulle initiale, cette dernière ne se détache pas et adopte une forme d'équilibre illustrée sur la figure 10.7. Contrairement aux formes d'équilibre prises par un film de savon étudiées dans le chapitre 6, cette surface fermée n'est pas une surface minimale puisque sa courbure moyenne est non nulle, du fait de la pression de Laplace régnant dans la bulle. Ouvrons à présent l'aiguille à l'air extérieur : en équilibrant les pressions intérieure et extérieure, nous nous ramenons finalement à une demi-caténoïde symétrique formée entre la surface solide mouillée par la bulle et l'aiguille de rayon  $R_n$ . De fait, si la distance séparant l'aiguille du substrat est supérieure au seuil  $h_c \simeq 0.66R_n$  (voir Chap. 6), nous observons la bulle se détacher de l'aiguille au moment d'ouvrir l'aiguille à l'air libre.

Revenons au cas de la surface fermée. Sans rentrer dans une analyse exhaustive d'existence et de stabilité des onduloïdes et nodoïdes<sup>3</sup>, retenons que cette surface d'équilibre n'existe plus mathématiquement si le rapport d'aspect entre le rayon de contact  $r$  et le rayon de l'aiguille  $R_n$  devient trop grand, cette caractéristique semblant se rapprocher des surfaces minimales étudiées au début de cette seconde partie. Comme la gamme des valeurs prises par  $r$  croît avec le rayon  $R$  de la bulle initiale, la bulle se détache donc si le ratio  $R/R_n$  est suffisamment élevé, typiquement devant quelques unités : ces seuils sont matérialisés par des droites verticales sur la figure 10.6.

3. Pour plus de précisions, le lecteur est invité à consulter les ouvrages de Plateau [140] et de Bouasse [116].



FIGURE 10.7: Lorsque le rapport  $R_n/R$  devient suffisamment grand, la bulle ne se détache pas de l'aiguille après son étalement.

Dans le cas où la bulle se détache, décomposons le temps  $\tau_p$  en deux termes :

$$\tau_p = \tau_{p,1} + \tau_{p,2}. \quad (10.41)$$

Le terme  $\tau_{p,1}$  correspond au temps mis pour déformer la bulle jusqu'à la limite de stabilité de sa surface ; bien que la valeur critique  $r_c$  du rayon de contact soit susceptible de dépendre de  $R$  et  $R_n$ , nous prendrons typiquement  $r_c = r(\tau_{p,1}) \sim R$ . Pour des bulles suffisamment grandes, nous traversons les deux dynamiques et aurons, à la lumière des résultats précédents :

$$\tau_{p,1} \sim \tau_{1 \rightarrow 2} + \sqrt{\frac{\rho_a R^3}{\gamma}}. \quad (10.42)$$

L'air vient ensuite pincer le « cou » de la bulle au niveau de l'aiguille pendant  $\tau_{p,2}$ . En appliquant ici les résultats obtenus dans le chapitre 7 sur le temps typique de pincement d'un film inviscide, il vient directement :

$$\tau_{p,2} \sim \sqrt{\frac{\rho_a R_n^3}{\gamma}}. \quad (10.43)$$

La condition  $R_n \ll R$  permet de négliger ce dernier terme devant  $\tau_{p,1}$  et d'écrire finalement :

$$\tau_p \sim \frac{(\rho_l e)^2}{\sqrt{\gamma R \rho_a^3}} + \sqrt{\frac{\rho_a R^3}{\gamma}}. \quad (10.44)$$

Cette expression, constituée d'une somme de fonctions respectivement décroissante et croissante de  $R$ , prédit l'existence d'un minimum de  $\tau_p$  en fonction de  $R$ . Cette variation est en accord avec les résultats expérimentaux présentés sur la figure 10.6.

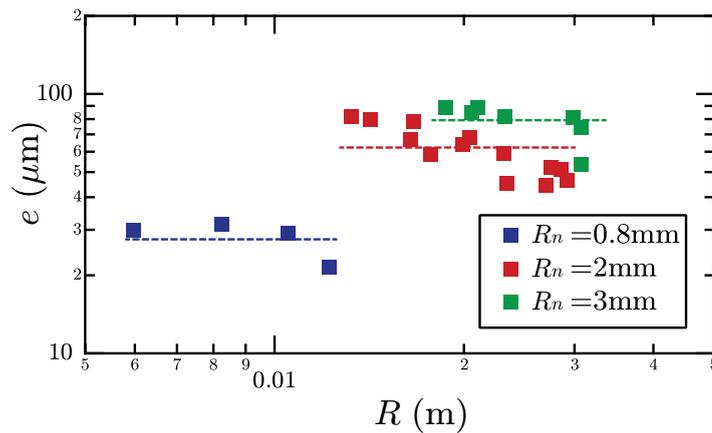


FIGURE 10.8: Épaisseur  $e$  au pied de la bulle déduite de la mesure du temps de détachement  $\tau_p$  aux petites bulles. Chaque jeu de symboles correspond à un rayon d'aiguille  $R_n$  donné.

Aux grandes tailles de bulles, le terme croissant l'emporte : les différents jeux de données obtenues pour différentes valeurs de  $R_n$  se regroupent assez bien autour d'une loi de puissance d'équation  $3\sqrt{\rho_a R^3/\gamma}$ , dont le préfacteur reste proche de celui déterminé pour la mesure de  $\tau_2$  (voir Fig. 10.4). Aux petites tailles de bulles, le terme décroissant devient prédominant : il est alors possible d'en tirer une estimation de l'épaisseur  $e$  à l'aide de la relation 10.44, les résultats étant présentés sur la figure 10.8. Pour l'aiguille millimétrique, nous retrouvons une épaisseur typique de  $25\ \mu\text{m}$ , du même ordre que les valeurs considérées plus tôt dans ce chapitre. Remarquons que les grandes épaisseurs déterminées par cette méthode pour les capillaires de rayons  $R_n=2\ \text{mm}$  et  $3\ \text{mm}$  semblent très différentes de ce qu'on pourrait attendre pour l'épaisseur de ces bulles. En observant leur aspect irisé dû aux interférences en lumière blanche, nous pouvons supposer que leur épaisseur est plutôt proche de la longueur d'onde moyenne dans le domaine visible, soit de l'ordre du micron. Cet écart est une nouvelle fois attribué aux fortes inhomogénéités d'épaisseur de la bulle engendrées par le drainage gravitaire qu'elle subit. Nous observons également que l'épaisseur croît avec la taille du capillaire utilisé. Qualitativement, il semble effectivement logique que plus le rayon du capillaire est grand, plus ce dernier emporte de liquide lors de son immersion initiale dans la solution savonneuse.

## 6 Perspectives

Proposons dans ce dernier paragraphe quelques pistes de prolongement de ce travail.

Comme déjà évoqué dans ce chapitre, une limitation forte de ce modèle réside dans l'hypothèse que l'épaisseur est prise uniforme spatialement et constante dans le temps. Il est en pratique compliqué de s'affranchir du drainage, même s'il est toujours possible de le limiter en utilisant une solution liquide assez visqueuse par exemple, ou une enceinte renfermant une atmosphère fraîche et humide ; cette piste d'amélioration du dispositif expérimental doit encore faire l'objet de plus amples

investigations.

À l'instar du chapitre précédent, il serait intéressant de faire varier la masse volumique du gaz enfermé dans la bulle en la gonflant avec de l'hélium ou du  $\text{SF}_6$ . Ceci pourrait éventuellement permettre de généraliser les résultats de ce chapitre en remplaçant  $\rho_a$  par la masse volumique  $\rho_g$  du gaz contenu dans la bulle.

En parallèle avec les travaux d'étalement d'une goutte, une perspective de ce travail consisterait également à étudier l'influence du substrat (inhomogénéités chimiques, rugosité de surface) sur l'étalement de la bulle.



# Chapitre 11

## Conclusion et perspectives

Après avoir décrit quelques formes simples adoptées par un film de savon à l'équilibre (Chap. 6), nous avons étudié dans les chapitres suivants de cette seconde partie plusieurs processus de création et de déformation de bulles et de bulles interfaciales. En dépit de la complexité des problèmes abordés, nous avons pu montrer que des analyses en loi d'échelle suffisent, dans de nombreux cas, à interpréter les résultats expérimentaux. À l'instar de la première partie consacrée à la microfluidique, les effets capillaires sont omniprésents, jouant parfois le rôle de terme limitant pour la déformation d'une interface fluide (voir par exemple Chap. 8 et Chap. 9), mais également le rôle de terme moteur dans des processus spontanés, tel l'effondrement quasi-statique d'une demi-caténoïde symétrique (Chap. 7) ou encore l'étalement d'une bulle sphérique sur une surface solide (Chap. 10). Bien que les problèmes de cette seconde partie soient, en contraste avec la microfluidique, généralement associés à de grands nombres de Reynolds, se ramenant ainsi à une absence de dissipation et à des écoulements supposés parfaits, nous avons remarqué dans le chapitre 8 que des effets visqueux de l'air sont, de façon surprenante, susceptibles d'intervenir. Notons également que l'utilisation de films liquides très visqueux peut conduire à la présence d'effets dissipatifs importants dans le liquide (voir Chap. 7).

En guise d'ouverture, nous proposons ici un dernier exemple de déstabilisation de l'interface d'une bulle interfaciale. Après avoir formé une telle bulle par étalement sur un substrat solide fixé sur un pot vibrant (voir Chap. 10), nous la sollicitons de façon mécanique. En faisant varier la fréquence d'excitation, nous répertorions qualitativement différents modes d'instabilité, pour un rayon de bulle donné.

- Aux basses fréquences, nous observons une instabilité « en cône ». Les oscillations de la bulle rappellent la structure du cône de Taylor, rencontré dans divers processus de pulvérisation. Ainsi, de petites gouttelettes peuvent être éjectées par le haut de la bulle instable.
- Aux fréquences intermédiaires, nous remarquons une instabilité « en dôme ». L'instabilité apparaît de chaque côté du dôme formé par la bulle interfaciale. Parfois, nous observons également des gouttelettes rebondissantes à l'intérieur de la bulle.
- Aux fréquences plus élevées, une instabilité survient proche de la surface solide : le ménisque liquide ondule sur le pourtour de la bulle (Fig. 11.1).

Dans la suite, nous discutons brièvement de ce dernier mode. Nous remarquons que les motifs observés vibrent à la fréquence moitié de celle du pot vibrant (voir

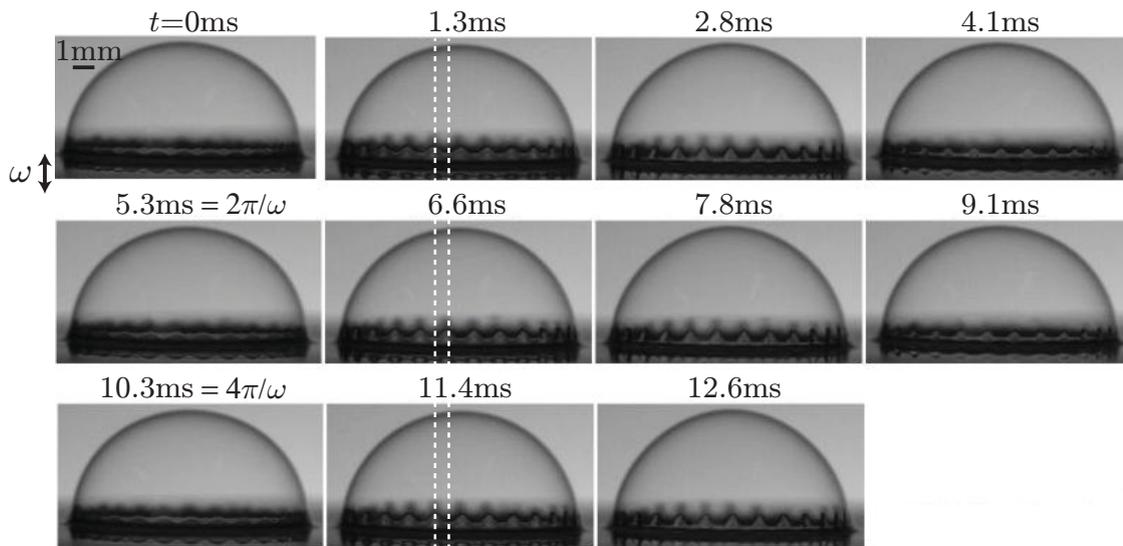


FIGURE 11.1: Série de photographies expérimentales illustrant l'instabilité subie par le ménisque liquide au pied de la bulle. Les lignes pointillées mettent en exergue le caractère paramétrique de cette instabilité.

Fig. 11.1). La nature paramétrique des ondulations observées rappelle les ondes de surface engendrées par l'instabilité classique de Faraday [216, 217], mais ici dans une version quasi-unidimensionnelle. Nous avons également renouvelé l'expérience dans deux géométries rigides en remplaçant la bulle interfaciale par un cylindre en plexiglas ou une cuve en plastique, autour desquels on dispose une flaque liquide. L'expérience montre que les oscillations paramétriques ne sont pas propres à la présence d'une bulle interfaciale, puisque celles-ci sont reproduites à l'identique dans ces géométries rigides. Cette expérience présentant certaines similitudes avec d'autres travaux extraits de la littérature [218, 219], il serait ainsi intéressant d'effectuer une analyse de stabilité linéaire de la situation en écrivant l'équation d'Euler régissant le mouvement du ménisque, de façon à obtenir la relation de dispersion des ondes observées ainsi que le seuil d'apparition de cette instabilité. Nous pourrions également tenter de déterminer les éventuelles différences entre ces ondes subies par le ménisque liquide et les ondes de Faraday classiques : quel est l'effet de la géométrie circulaire de la bulle? Quelle est l'influence du rayon de la bulle et du mouillage sur ce phénomène? Ce procédé permet-il de ralentir le drainage de la bulle en redistribuant périodiquement dans le temps le liquide sur sa surface, et ainsi retarder son éclatement? Que se passe-t-il lorsque la fréquence et l'amplitude de la vibration sont choisies de telle sorte à avoir du couplage entre les différents modes de déstabilisation cités plus haut? Ce projet s'inscrit dans la continuité de ce travail de thèse et fera l'objet de plus amples investigations dans le futur.

# Annexe 1 : Tensiométrie et rhéométrie, principes de mesure

Nous présentons dans ce chapitre annexe les méthodes de mesure de tension de surface et de viscosité dynamique utilisées au cours de la thèse. L'ensemble des mesures a été effectué dans un environnement à température contrôlée, avec l'aide d'Arnaud Saint-Jalmes.

## 1 Tensiométrie : méthode de la goutte pendante (ou bulle montante)

Il existe de nombreuses méthodes pour déterminer une tension de surface liquide/liquide ou liquide/air [11, 75, 141, 142]. La méthode de la goutte pendante est un procédé couramment utilisé, nécessitant une faible quantité de liquide et permettant d'obtenir de façon rapide une mesure relativement précise de la tension superficielle. Cette méthode est basée sur la forme des gouttes à l'équilibre.

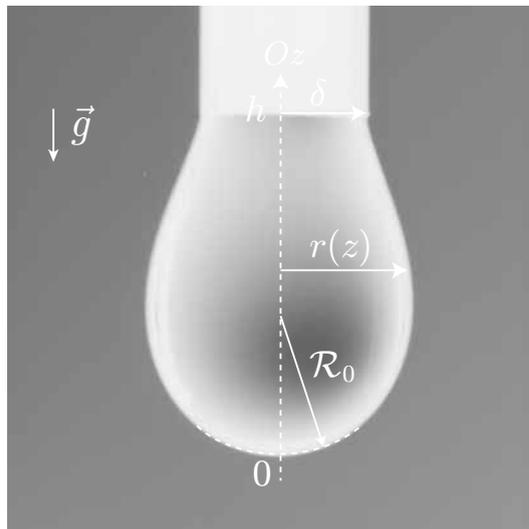


FIGURE 11.2: Profil axisymétrique d'une goutte d'eau suspendue à une aiguille millimétrique : notations utilisées.

En reliant une aiguille de rayon  $\delta$  à un pousse-seringue, il est possible d'y suspendre à son extrémité une goutte (Fig. 11.2), celle-ci adoptant une forme « en ampoule »

dont l'interface est paramétrée par un profil axisymétrique noté  $r(z)$ . Cette dernière est maintenue à l'équilibre par la compensation exacte de son poids et des forces capillaires. Notons respectivement  $\rho_l$  et  $\rho_a$  les masses volumiques du liquide composant la goutte et du milieu moins dense, gazeux ou liquide, qui l'entoure ;  $\gamma$  désigne la tension de surface entre les deux phases en présence. Les lois de l'hydrostatique imposent que la pression  $p$  dans la goutte ne dépende que de  $z$ . Prenons l'origine  $O$  de l'axe ( $Oz$ ) à l'extrémité inférieure de la goutte, où les rayons de courbure principaux de l'interface valent tous deux  $\mathcal{R}_0$ . En notant  $p_0$  la pression atmosphérique et  $g$  l'accélération due à la gravité, la pression dans le liquide en  $z$  peut s'exprimer de deux manières différentes :

$$p_0 + \frac{2\gamma}{\mathcal{R}_0} - \rho_l g z = p_0 - \rho_a g z + \gamma \left( \frac{1}{\mathcal{R}_1(z)} + \frac{1}{\mathcal{R}_2(z)} \right), \quad (11.1)$$

avec  $\mathcal{R}_1(z)$  et  $\mathcal{R}_2(z)$  les rayons de courbure principaux à la cote  $z$ . Il vient donc :

$$\gamma \left( \frac{1}{\mathcal{R}_1(z)} + \frac{1}{\mathcal{R}_2(z)} \right) = -\Delta\rho g z + \frac{2\gamma}{\mathcal{R}_0}, \quad (11.2)$$

où nous avons introduit le contraste de masse volumique  $\Delta\rho = \rho_l - \rho_a > 0$  entre les deux phases. En exprimant les rayons de courbure en coordonnées cylindriques :

$$\gamma \left( \frac{1}{r(1+r'^2)^{\frac{1}{2}}} - \frac{r''}{(1+r'^2)^{\frac{3}{2}}} \right) = -\Delta\rho g z + \frac{2\gamma}{\mathcal{R}_0}, \quad (11.3)$$

la fonction  $r$  devant satisfaire aux conditions aux limites,  $r(0) = 0$  et  $r(h) = \delta$ . En utilisant les longueurs adimensionnées  $R=r/\kappa^{-1}$ ,  $Z=z/\kappa^{-1}$  avec  $\kappa^{-1} = \sqrt{\gamma/\Delta\rho g}$ , il vient finalement :

$$\frac{1}{R(1+R'^2)^{\frac{1}{2}}} - \frac{R''}{(1+R'^2)^{\frac{3}{2}}} = -Z + \frac{2}{\sqrt{\mathcal{B}o}}, \quad (11.4)$$

où le nombre de Bond  $\mathcal{B}o = \Delta\rho g \mathcal{R}_0^2 / \gamma$  intervient naturellement dans la compétition des effets capillaires et gravitaires mis en jeu dans l'équilibre de la goutte. La résolution de cette équation paramétrée par la tension de surface fournit finalement le profil  $r(z)$  de la goutte. L'équation 11.4 n'admettant pas de solution analytique générale, nous avons recours à des outils de résolution numérique. L'image de la goutte pendante est acquise par une caméra puis transmise à un ordinateur équipé d'un logiciel de traitement des données (Tracker, Teclis ; voir Fig. 11.3). L'ajustement du profil de la goutte permet alors de déterminer la tension superficielle, connaissant les masses volumiques des deux phases en présence<sup>1</sup>. Comme tout procédé de tensiométrie, ce protocole expérimental nécessite une grande propreté (rinçage préalable à l'éthanol puis à l'eau chaude), la précision de la mesure étant par ailleurs optimale pour des nombres de Bond intermédiaires,  $0.2 < \mathcal{B}o < 0.3$  typiquement. Remarquons que cette méthode s'applique de façon symétrique en configuration montante (c'est le cas des bulles notamment), pour laquelle le contraste de masse volumique change de signe.

1. Avec cette méthode, il est également possible de sonder des effets de tension interfaciale dynamique et d'élasticité de surface en analysant le suivi temporel de  $\gamma$  jusqu'à l'établissement de sa valeur stationnaire [13, 14, 15, 16].

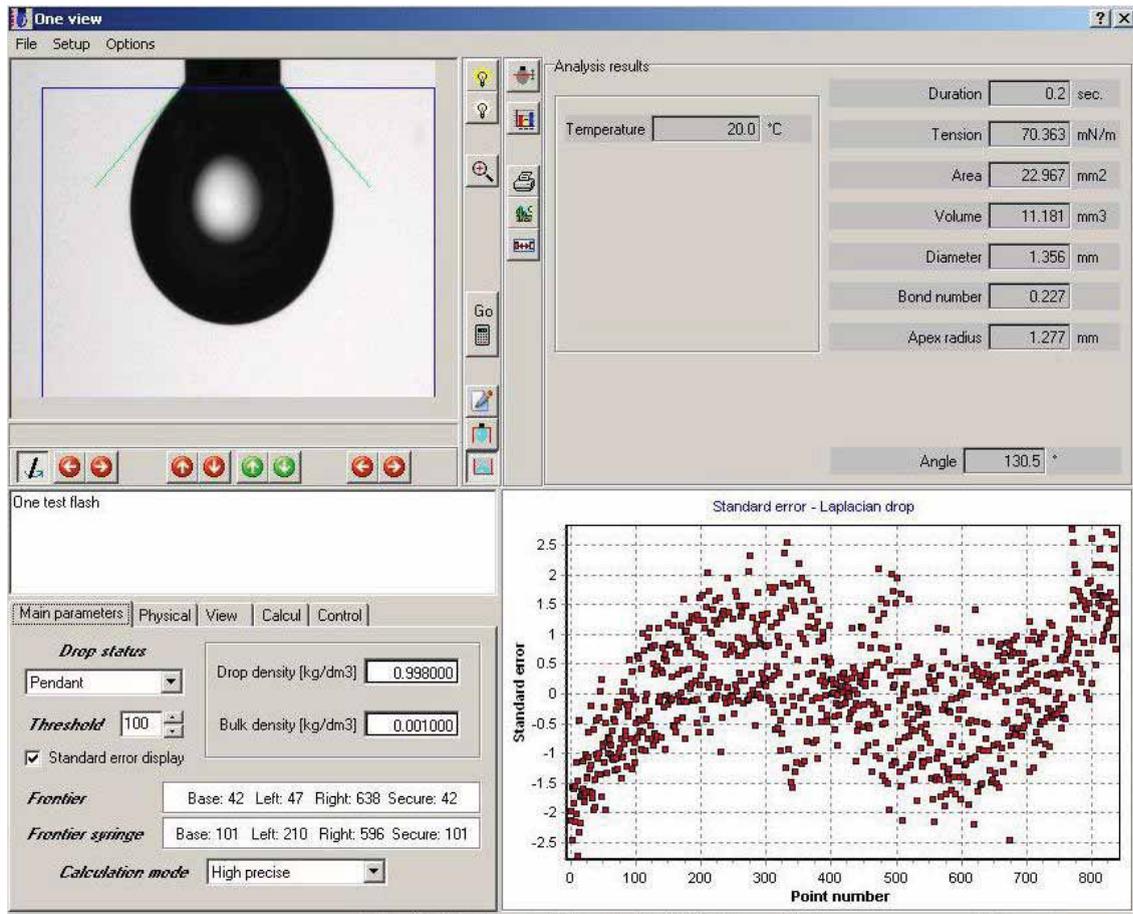


FIGURE 11.3: Capture d'écran du logiciel d'ajustement utilisé en tensiométrie.

## 2 Rhéométrie en géométrie cône/plan

Nous avons mesuré la viscosité dynamique des solutions utilisées à l'aide d'un rhéomètre en géométrie cône/plan<sup>2</sup> (Anton Paar MCR 301). Comme son nom l'indique, cet appareil est constitué d'un cône tronqué, dont le sommet fictif est amené au contact d'un plan fixe (Fig. 11.4). Le diamètre  $D=2R$  du cône vaut 70 mm, l'angle  $\alpha$  entre le cône et le plan vaut  $5^\circ$ . Le fluide étudié est initialement versé entre le plan et le cône. En appliquant au cône une rotation angulaire  $\Omega$  autour de son axe de symétrie, le champ de vitesse azimutal se met sous la forme [220] :

$$\vec{v}(r, z) = r\omega(z)\vec{u}_\theta, \quad (11.5)$$

avec des conditions aux limites de non-glissement sur le plan et sur le cône :

$$\omega(z=0) = 0 \quad \text{et} \quad \omega(z=r \tan \alpha) = \Omega. \quad (11.6)$$

Le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  vaut :

$$\dot{\gamma} = \frac{r\Omega}{r \tan \alpha} = \frac{\Omega}{\tan \alpha} \simeq \frac{\Omega}{\alpha}. \quad (11.7)$$

2. Il existe d'autres géométries permettant de mesurer les propriétés rhéologiques d'un fluide. Citons à titre d'exemple les rhéomètres de type Searle ou Couette, constitués de deux cylindres coaxiaux, et particulièrement adaptés aux mesures de faibles viscosités.

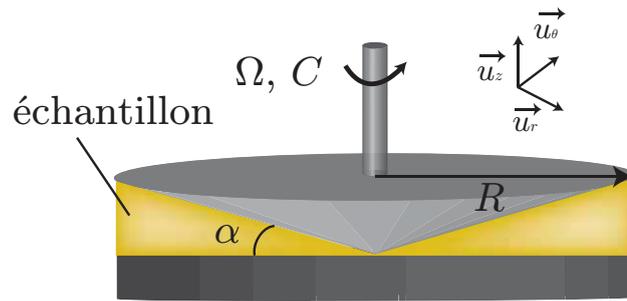


FIGURE 11.4: Schéma de principe du rhéomètre cône/plan : notations utilisées.

Ainsi, comme dans le cas d'un écoulement de Couette idéal entre deux plaques parallèles en mouvement relatif de translation, le cisaillement est homogène dans tout l'espace compris entre le cône et le plan. En réalité, cette propriété est valable tant que l'angle  $\alpha$  reste faible,  $\alpha < 6^\circ$  typiquement. La contrainte visqueuse  $\tau$ , également homogène dans l'espace, est reliée au couple  $C$  par la relation :

$$\tau = \frac{3C}{2\pi R^3}. \quad (11.8)$$

Ainsi, la mesure de  $C$  permet d'avoir accès à la contrainte  $\tau$ . La viscosité  $\eta_l$  du liquide s'en déduit alors par la relation :

$$\eta_l = \frac{\tau}{\dot{\gamma}}. \quad (11.9)$$

## Annexe 2 : Publications

Ce chapitre annexe est constitué des articles publiés au cours de la thèse, triés par ordre chronologique.

Publication A [98]

PHYSICAL REVIEW E **86**, 036317 (2012)

## Microfluidic breakups of confined droplets against a linear obstacle: The importance of the viscosity contrast

Louis Salkin, Laurent Courbin,<sup>\*</sup> and Pascal Panizza<sup>†</sup>*IPR, UMR CNRS 6251, Campus Beaulieu, Université Rennes 1, 35042 Rennes, France*

(Received 15 September 2011; published 21 September 2012)

Combining experiments and theory, we investigate the break-up dynamics of deformable objects, such as drops and bubbles, against a linear micro-obstacle. Our experiments bring the role of the viscosity contrast  $\Delta\eta$  between dispersed and continuous phases to light: the evolution of the critical capillary number to break a drop as a function of its size is either nonmonotonic ( $\Delta\eta > 0$ ) or monotonic ( $\Delta\eta \leq 0$ ). In the case of positive viscosity contrasts, experiments and modeling reveal the existence of an unexpected critical object size for which the critical capillary number for breakup is minimum. Using simple physical arguments, we derive a model that well describes observations, provides diagrams mapping the four hydrodynamic regimes identified experimentally, and demonstrates that the critical size originating from confinement solely depends on geometrical parameters of the obstacle.

DOI: 10.1103/PhysRevE.86.036317

PACS number(s): 47.55.df, 47.60.Dx, 47.61.Cb

### I. INTRODUCTION

An everyday experience, the breaking of drops and bubbles, has been extensively studied in a variety of flow geometries [1,2] and in the physics, chemistry, and engineering of emulsions and foams [3,4]. Addressing this issue requires one to determine the minimum energy needed to break an object and the size and number of the created daughter objects. Recent advances in microfluidics, which offer possibilities for handling nanoliter fluid elements, have inspired investigations on the breakup of deformable objects in confined geometries [5–12]. Most of these studies on geometry-mediated breakups focus on droplets reaching T junctions [5–8], or junctions having arbitrary angles [9], while a few deal with flows past an obstacle, e.g., a square obstruction [5] or a circular post [12]. Microfluidic technologies raise challenging scientific questions and they are powerful tools for various applications that rely on the ability to perform and combine basic operations such as breaking deformable objects [13]. Yet, establishing a general theoretical framework that fully describes the break-up dynamics in confined geometries remains a challenging task because of the numerous governing parameters potentially at play: the size and speed of an object, the viscosities of dispersed and transporting phases, the surface tension, and the geometrical parameters.

Within this setting, here we discuss the breakup of confined drops in one particular geometry, namely, a linear obstacle. We show that the selected geometry allows for a solution to this complex problem: we identify the seven dimensionless quantities controlling the dynamics, and we present a theoretical framework that provides a full description of the break-up dynamics and accounts for the various experimental observations. Our model provides diagrams mapping the four hydrodynamic regimes identified experimentally. Our findings target the hidden nature of viscosity contrast between dispersed and transporting phases, as they reveal the unexpected existence of a critical drop size for which the critical capillary

number for breakup is minimum in the case of positive viscosity contrasts.

### II. EXPERIMENTS

#### A. Setup and materials

To study the physics of obstacle-mediated breakup, we work with planar microfluidic devices which consist of a drop generator based on a flow-focusing method [14], a dilution module [15] that enables control of the velocity of the drops without changing their size by infusing additional continuous phase, and a linear obstacle, placed in a rectangular microchannel of width  $w = 130 \mu\text{m}$  and height  $h = 45 \mu\text{m}$  [see Fig. 1(a)]. The devices are fabricated in polydimethylsiloxane (PDMS-Sylgard 184, Dow Corning) using standard soft lithography techniques [16]. The flow-focusing geometry produces periodic trains of monodisperse drops in an oil phase. We work with large drops, their size  $L_d$  is larger than  $w$ , herein referred to as “slugs.” We use syringe pumps (PHD 2000, Harvard Apparatus) to inject the dispersed and continuous phases at controlled flow rates, which are adjusted independently until a steady flow of monodisperse slugs with a desired size  $L_d = 150\text{--}900 \mu\text{m}$  is obtained. Typical values of the corresponding flow rates for the dispersed and continuous phases are  $q_w = 5\text{--}200 \mu\text{l/h}$  and  $q_o^f = 5\text{--}500 \mu\text{l/h}$ , respectively. The dilution module enables control of the speed of the slugs  $v = 0.1\text{--}10 \text{ mm/s}$  and the distance between slugs  $\lambda = 600\text{--}2000 \mu\text{m}$  by infusing additional continuous phase at a constant flow rate  $q_o^d = 0\text{--}1000 \mu\text{l/h}$ ; hence the total flow rate is  $q = q_w + q_o^f + q_o^d$ . In all our experiments, the Reynolds and the capillary numbers are small and span the ranges  $10^{-3}\text{--}10^{-1}$  and  $10^{-3}\text{--}10^{-2}$ , respectively. The linear obstacle of length  $L = 200\text{--}800 \mu\text{m}$  is parallel to the channel walls and is off-centered so that slugs may flow in two gaps (1) and (2), having different widths  $w_1$  and  $w_2 < w_1$ , with  $W = w_2/w_1 < 1$  [Fig. 1(a)]. In all our experiments, the interslug distance is large enough so that we study the breakups of isolated slugs. We record images of the flow close to the obstacle with a high-speed camera (Phantom V7) working at 500–5000 frames/s. The speed and the size of a slug

<sup>\*</sup>laurent.courbin@univ-rennes1.fr<sup>†</sup>pascal.panizza@univ-rennes1.fr

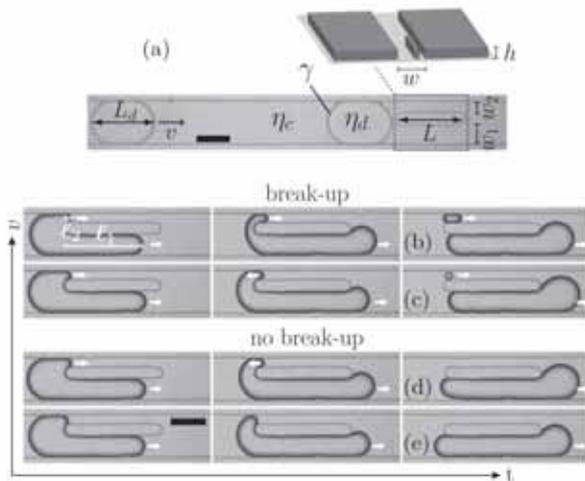


FIG. 1. (a) Schematic of the setup near the obstacle and top-view images of the flow defining the ten governing parameters at play. (b)–(e) Typical flow behaviors of slugs having the same size meeting an obstacle at different speeds. For large enough speeds, breakup occurs without (b) or with (c) the retraction of an interface in the narrow gap. The slug does not break at lower speeds; this occurs with the invasion and subsequent retraction of an interface of the narrow gap (d) or without the invasion of this gap (e).  $\ell_i$  denotes the position of an interface in the  $i$ th gap,  $i = 1$  or  $2$ . White arrows indicate the flow direction in both gaps. Scale bars  $100 \mu\text{m}$ .

are obtained from image processing using a custom-written MATLAB software.

We use two liquid-liquid systems. For the first one, we use different mass percentages of water-glucose mixtures (from 100/0 to 56/44) to vary the viscosity of the dispersed phase from  $\eta_d = 1$ –7 mPa s. The continuous phase is hexadecane (Sigma-Aldrich), whose viscosity is  $\eta_c = 3$  mPa s. The interfacial tension between the two phases is  $\gamma = 6.5$ –5 mN/m, for the range of viscosities of the mixtures we prepare. The glucose is purchased from Sigma-Aldrich, and we use deionized water (Millipore, 18 M $\Omega$  cm). The second system consists of deionized water dispersed in a viscous silicone oil (Fluka) whose viscosity is  $\eta_c = 50$  mPa s. The liquid-liquid surface tension is  $\gamma = 9.7$  mN/m. For both systems, a surfactant (sodium dodecyl sulfate, Sigma) is solubilized in the dispersed phase (concentration, 15 g/L). Viscosities and surface tensions are measured using an Anton Paar MCR 301 rheometer and pendant drop tensiometry, respectively.

### B. Experimental results

We begin by studying the response of a fluid system for which  $\eta_d > \eta_c$ . We vary  $v$  and we observe the behavior of slugs having the same size meeting the same linear obstacle. We find four different hydrodynamic regimes as  $v$  decreases [Figs. 1(b)–1(e) and movies S1–S4 in [17]]. In the first two, the collision with the obstacle yields breakup. In the first, when a slug collides with the obstacle, two fluid-fluid interfaces invade gaps (1) and (2) and move forward. The slug breaks into two daughter drops emitted in both gaps when its rear edge meets the obstacle [Fig. 1(b) and movie S1] [17]. In the second,

breakup is preceded by a drastically different dynamics of the two-fluid interface invading the narrow gap (2): as time elapses, it suddenly stops and begins to recede [Fig. 1(c) and movie S2]. In the third, a receding interface is also observed in the narrow gap; however, the slug does not break as its rear edge reaches the obstacle after total withdrawal of this interface [Fig. 1(d) and movie S3]. No propagation, and thus no retraction, is observed in gap (2) for lower speeds: the slug does not break and flows through gap (1) [Fig. 1(e) and movie S4] [17].

Systematic variations of  $v$  and  $L_d$  provide diagrams mapping these dynamical behaviors reported for two illustrative fluid systems whose viscosity contrasts have opposite signs [Figs. 2(a) and 2(b)]. When  $\eta_d > \eta_c$ , we observe two distinct sequences of regimes as  $v$  decreases for slugs either larger or smaller than a critical slug size  $L_d^c$ . When  $L_d > L_d^c$ ,

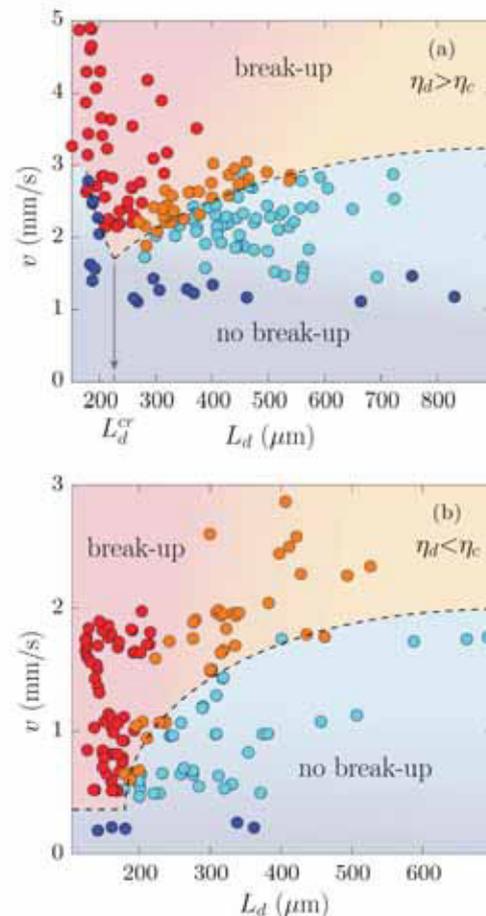


FIG. 2. (Color online) Experimental diagrams characterizing the dynamical behavior for (a)  $\eta_d > \eta_c$  and (b)  $\eta_d < \eta_c$  as a function of  $L_d$  and  $v$ . A slug may (orange and red symbols) or may not (blue and cyan symbols) break against the obstacle. These regimes can occur with (orange and cyan symbols) or without the retraction of a two-fluid interface in gap (2) (red and blue symbols). The dashed lines are guides for the eyes and indicate the transition between breakup and no breakup regimes. The length of the obstacle is  $L = 300 \mu\text{m}$ . (a) Viscous water-glucose mixture (44 wt.% glucose) in hexadecane and  $W = 0.5$ . (b) Water in a viscous silicone oil and  $W = 0.6$ .

we find the sequence of four regimes previously discussed. By contrast, only regimes without retraction in gap (2) are observed when  $L_d < L_d^*$  [Fig. 2(a)]. Remarkably, the transition between breakup and no-breakup regimes is nonmonotonic, with a global minimum point at  $L_d = L_d^*$ . In addition, the critical slug speed to observe a two-fluid interface invading the narrow gap presents a crossover at  $L_d \approx L_d^*$ , since this speed is constant for  $L_d > L_d^*$  and decreases with  $L_d$  for  $L_d < L_d^*$  [Fig. 2(a)]. By contrast, when  $\eta_d < \eta_c$ , the transition between breakup and no-breakup regimes is a monotonically increasing function of  $L_d$ , a critical slug size is not observed, and the critical speed at which an interface enters the narrow gap is constant over the whole range of slug sizes [Fig. 2(b)].

### III. INTERPRETATION

#### A. Model

To explain the diversity of our findings, we begin by describing the transport of slugs in microfluidic conduits at low Reynolds and capillary numbers. Building on earlier works [12,18], we assume that the speed  $v$  of a slug flowing in a channel of constant cross section  $hw$  varies with  $q$  the total flow rate as  $v = \frac{q}{hw}$ , and that the flows of the slug and the continuous phase satisfy Darcy's law, with an effective viscosity  $\eta_d^{eff}$  for the slug [19]. Hence, the pressure drop  $\Delta p$  over a portion  $\ell$  of the slug reads

$$\Delta p = \frac{\eta_d^{eff} \ell q}{h^3 w} f\left(\frac{w}{h}\right), \quad (1a)$$

where  $f(\frac{w}{h})$  is a known dimensionless function which can be written  $f \approx 12[1-0.63(\frac{w}{h})^{-1}]^{-1}$  for  $h < w$  [20]. There is also a pressure drop across the front edge of the slug due to the curved two-fluid interface, which we write approximately as [9,12]

$$\Delta p_{curv} = \frac{2\gamma}{w} \left(1 + \frac{w}{h}\right). \quad (1b)$$

In our model, the pressure drop given in Eq. (1b) accounts for the presence of curved interfaces. However, for simplicity's sake, we derive our model considering flat interfaces rather than curved. These physical arguments help to rationalize the dynamics starting at  $t = 0$  when a slug meets the obstacle. Since we work at constant flow rates, a two-fluid interface always invades gap (1) at  $t = 0$  and begins to move forward at a speed  $d\ell_i/dt$  [see Fig. 1(b) defining  $\ell_i$ ]. After the collision, our observations show that the velocity of the slug  $v$  remains roughly constant until the rear edge of the slug reaches the obstacle. In our simple model, since we consider slugs having flat interfaces, we assume that the time  $t_f$  at which the rear edge of the slug meets the obstacle is  $t_f = \frac{L_d - cw}{v}$ , where  $c$  is a free parameter  $O(1)$  that depends on the dimensionless parameters of the cross section of the channel, i.e.,  $\frac{w}{h}$ ,  $\frac{w_2}{h}$ , and  $\frac{w_1}{W}$ . As breakup occurs, provided that a two-fluid interface has invaded gap (2) and has not completely withdrawn from this gap at  $t_f$ , we next work with the dimensionless time  $T = \frac{t}{t_f}$ .

#### B. Invasion of the narrow gap

We now derive the condition required to observe a two-fluid interface invading gap (2). We begin with the

situation where one interface has entered the gap (1) and is located at  $\ell_i(T) = X_1(T)L \leq L$ . At  $T$ , the conservation of the total flow rate gives  $X_1(T) = \frac{(L_d - cw)w}{Lw_1} T = \alpha T$  and, using Eq. (1), we write the pressure drop over  $L$  in gap (1),  $\Delta p = \frac{\eta_d^{eff} L q}{h^3 w_1} f_1[(1 + \Delta\eta)X_1] + \frac{2\gamma}{C}(1 + \frac{w_1}{h})$ , where  $\Delta\eta = (\eta_d^{eff} - \eta_c)/\eta_c$  and  $Z = (f_1 h^{-2} w L)^{-1}$  with  $f_1 = f(\frac{w_1}{h})$  are two dimensionless parameters, and  $C = \frac{\eta_c v}{\gamma}$  is the capillary number.  $\Delta\eta$  is a free parameter that depends on the unknown effective viscosity  $\eta_d^{eff}$ . The evolution of  $\Delta p$  over time strongly depends on the sign of  $\Delta\eta$ . When a low-viscosity fluid is displacing at constant flow rate a fluid having a larger viscosity, the pressure drop in gap (1) decreases with time. By contrast, when  $\Delta\eta > 0$ ,  $\Delta p$  increases with  $T$ . As shown below, this dependence on  $\Delta\eta$  controls the invasion dynamics of the narrow gap. Physically, a two-fluid interface may begin to fill up gap (2) only when  $\Delta p$  overcomes the capillary pressure  $\frac{2\gamma}{w_2}(1 + \frac{w_2}{h})$  required for a curved interface to exist in this narrow gap. This condition can be mathematically expressed as  $1 + \Delta\eta X_1 > \frac{C_2}{C_1}$ , where  $C_1 = 2Z \frac{1-w}{w}$ . When  $\Delta\eta < 0$ , the term on the left-hand side of the inequality,  $1 + \Delta\eta X_1$ , decreases with  $T$ , so that the time  $T_p$  at which an interface begins to propagate in gap (2) is  $T_p = 0$  whenever  $C > C_1$ . By contrast, when  $\Delta\eta > 0$ , this term increases with  $T$  so that  $T_p = \frac{1}{\alpha \Delta\eta} (\frac{C_2}{C_1} - 1) \geq 0$ . Two conditions need to be fulfilled to allow propagation in gap (2),  $X_1(T_p) \leq 1$ , which corresponds to the situation considered, and  $T_p < 1$ . Indeed, physically, invasion can no longer occur when the rear end of a slug reaches the obstacle, which gives the condition  $T_p < 1$ . Using these conditions, one finds that this occurs when  $C > \frac{C_1}{1 + \alpha \Delta\eta}$  for  $\alpha \leq 1$  and when  $C > \frac{C_1}{1 + \Delta\eta}$  for  $\alpha \geq 1$ . For both positive and negative viscosity contrasts, if those conditions are not fulfilled when the fluid-fluid interface exits gap (1), the pressure drop in this gap suddenly decreases and remains constant over time,  $\Delta p = \frac{\eta_d^{eff} L q}{h^3 w_1} f_1(1 + \Delta\eta)$ . In that case, the pressure drop can no longer become larger than the capillary pressure needed to accommodate the presence of a curved interface in the narrow gap and the invasion of the narrow gap never occurs. Our experiments concur with these theoretical predictions [Figs. 3(a) and 3(b)].

#### C. Dynamics of the two-fluid interfaces

At  $T \geq T_p$ , the dynamics of the interfaces present in both gaps are governed by a set of two coupled first-order ordinary differential equations. The conservation of the total flow rate gives the first equation:

$$\frac{dX_1}{dT} + W \frac{dX_2}{dT} = \alpha. \quad (2a)$$

The second equation is given by the equality of pressure drops over both sides of the obstacle:

$$(1 + \Delta\eta X_1) \frac{dX_1}{dT} - FW(1 + \Delta\eta X_2) \frac{dX_2}{dT} = \alpha \frac{C_2}{C_1} \quad (2b)$$

for  $X_1 \leq 1$  and  $X_2 \leq 1$ ;

$$(1 + \Delta\eta) \frac{dX_1}{dT} - FW(1 + \Delta\eta X_2) \frac{dX_2}{dT} = \alpha \frac{C_2}{C_1} \frac{1 + \frac{w_2}{h}}{1 - W} \quad (2c)$$

for  $X_1 > 1$  and  $X_2 \leq 1$ , with  $F = f(\frac{w_2}{h})/[Wf(\frac{w_1}{h})]$ .

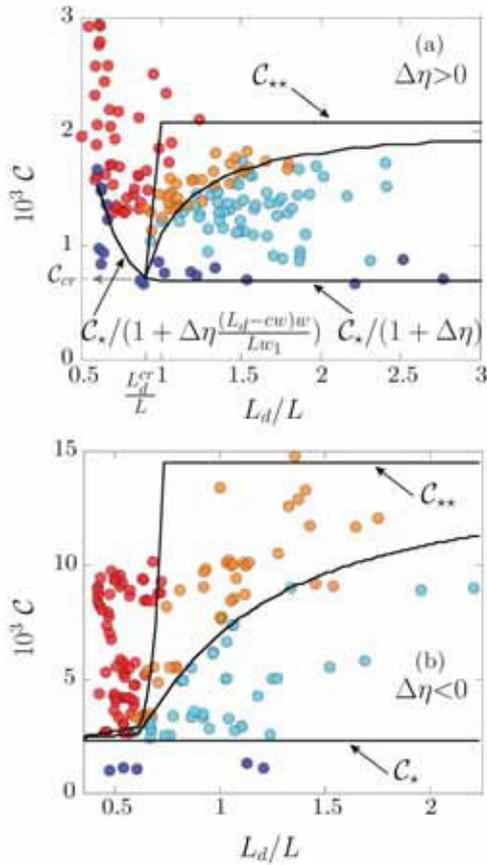


FIG. 3. (Color online) Diagrams mapping the break-up dynamics as a function of  $L_d/L$  and  $C$  for (a)  $\Delta\eta > 0$  and (b)  $\Delta\eta < 0$ . The solid lines are predictions of our model for the transitions between regimes that are compared to experimental data of Figs. 2(a) and 2(b). Symbols are identical to those of Fig. 2. The dimensionless quantities are (a)  $W = 0.5$ ,  $\frac{\sigma}{\eta} = 3$ ,  $\frac{\mu_2}{\mu_1} = 0.7$ ,  $Z = 2.4 \times 10^{-3}$ , and (b)  $W = 0.6$ ,  $\frac{\sigma}{\eta} = 3$ ,  $\frac{\mu_2}{\mu_1} = 0.8$ ,  $Z = 2.1 \times 10^{-3}$ . The two free parameters are (a)  $c = 0.9$  and  $\Delta\eta = 8$ , and (b)  $c = 0.6$  and  $\Delta\eta = -0.2$ . The model predicts the critical capillary numbers above which an interface enters the gap (2):  $\frac{C_*}{1+\Delta\eta}$  for  $\Delta\eta > 0$  and  $\alpha \geq 1$ ,  $\frac{C_*}{1+\alpha\Delta\eta}$ , for  $\Delta\eta > 0$  and  $\alpha \leq 1$ , and  $C_*$  for  $\Delta\eta < 0$ . When  $\Delta\eta > 0$ , we find that  $\eta_d^{eff} > \eta_c$ , which is consistent with the literature [21]. By contrast, when  $\Delta\eta < 0$ , we determine that  $\eta_d < \eta_d^{eff} < \eta_c$ . Similar results have been reported and discussed in [22].

#### D. Conditions for retraction

The retraction of a two-fluid interface in gap (2) observed in two regimes can be expressed as  $\frac{dX_2}{dt} < 0$ . Using Eq. (2), one finds that the sign of  $\frac{dX_2}{dt}$  is given by the sign of  $(1 + \Delta\eta X_1) - \frac{C_*}{C}$  for  $X_1 \leq 1$  and  $X_2 \leq 1$ , and by the sign of  $(1 + \Delta\eta) - \frac{C_*}{C} \frac{1+\frac{\sigma}{\eta}}{1-W}$  for  $X_1 > 1$  and  $X_2 \leq 1$ . Consequently, when  $\Delta\eta \geq 0$ , retraction may only begin when  $X_1(T = T_i) = 1$ , provided that  $C < \frac{C_*}{1+\Delta\eta} \frac{1+\frac{\sigma}{\eta}}{1-W} = C_{**}$ , and  $T_i < T_f = 1$ ; experimental observations corroborate this prediction (see movie S3 in [17]). By contrast, when  $\Delta\eta < 0$ , the retraction may occur at  $T = T_i < T_f$ , when the interface in gap (1) reaches the posi-

tion  $X_1(T_i) = \frac{1}{\Delta\eta} (\frac{C_*}{C} - 1) < 1$ , for  $C \leq \frac{C_*}{1+\Delta\eta}$  and  $T_i < 1$ . The retraction may also begin at  $T = T_i$  when  $\frac{C_*}{1+\Delta\eta} \leq C < C_{**}$ , and  $T_i < 1$ . We use these conditions to compute numerically the transitions between the two break-up regimes. The resulting predictions concur with experiments [see Figs. 3(a) and 3(b)]. Analytical expressions for the transition between break-up regimes with and without retraction in gap (2) can also be derived both for  $\Delta\eta > 0$  and  $\Delta\eta < 0$  (see the Appendix); in both cases, the transition is a plateau given by  $C = C_{**}$ , when  $L_d/L$  is large enough [see Figs. 3(a) and 3(b)].

#### E. Conditions for breakup

Breakup occurs whenever an interface has entered the narrow gap and  $X_2(T = 1) > 0$ . The transition between breakup and no-breakup regimes thus corresponds to  $X_2(1) = 0$ . Using this condition and solving Eq. (2), our numerical simulations well-capture this transition [Figs. 3(a) and 3(b)]. Interestingly, finding an analytical expression is straightforward when  $\Delta\eta \geq 0$  and  $\alpha \leq 1$ : since  $T_i \geq 1$  for any value of  $C$ , the retraction of an interface in gap (2) never occurs as observed experimentally [Fig. 3(a)]; breakup is obtained for  $C > \frac{C_*}{1+\alpha\Delta\eta}$ . As suggested by the experiments, the model predicts a nonmonotonic and a monotonic transition for  $\Delta\eta > 0$  and  $\Delta\eta \leq 0$ , respectively (Fig. 3). Our model therefore confirms the existence, when  $\Delta\eta > 0$ , of a characteristic size  $L_d^*$  for which breaking occurs at a minimum capillary number  $C_{cr}$ . Figure 4 shows that the experimental critical capillary number  $C_{cr}$  correlates with the predicted one  $C_*/(1 + \Delta\eta)$ . Studying the variations of  $L_d^*$  for different fluid systems and values of  $Z$ , we find that the critical size does not depend on  $\Delta\eta$  and varies with the geometrical parameters as the predicted

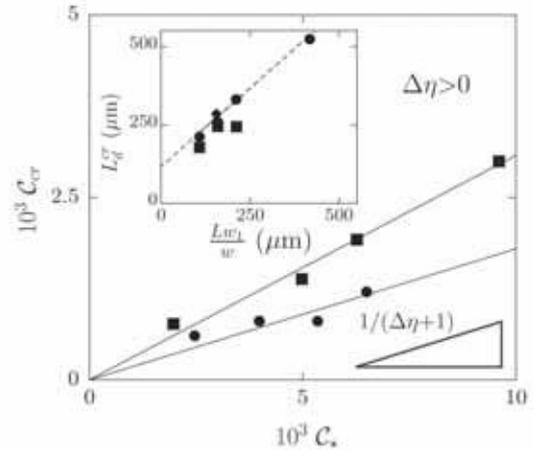


FIG. 4. Evolution of  $C_{cr}$  with  $C_*$  for  $\Delta\eta > 0$ . For both fluid systems, the experimental data collapse onto a single line whose slope is  $1/(\Delta\eta + 1)$ . Inset: Evolution of the critical slug size  $L_d^*$  with  $\frac{L_d w_1}{w}$ . The fluid systems are (■) water in hexadecane, (◆) a viscous water-glucose (28 wt.% glucose) mixture in hexadecane, and (●) a viscous water-glucose mixture (44 wt.% glucose) in hexadecane. The ratio of the widths of the gaps is  $W = 0.48$ . Each data point corresponds to a value of  $Z = 0.8\text{--}3.8 \times 10^{-3}$ . The dashed line stands for the linear fit  $L_d^* = \frac{L_d w_1}{w} + 0.9w$ .

expression  $\frac{Lw_i}{w} + cw$  (inset of Fig. 4). In this figure, assuming that the value of  $c$  for  $W = 0.48$  is close to the one ( $c = 0.9$ ) determined for  $W = 0.5$  in Fig. 3(a), we find that experiments correlate with theoretical predictions.

#### IV. CONCLUSION

Despite the apparent complexity of a problem with ten governing parameters [Fig. 1(a)], we provide a theoretical framework describing the break-up dynamics of deformable objects in terms of the pertinent dimensionless quantities  $(C, \frac{Lz}{L}, \Delta\eta, W, Z, \frac{w}{h}, \frac{w_i}{h})$ . Our model is based on very strong approximations and its derivation employs the most basic physical arguments. Yet, for a given device, this model fully captures experimental observations in the plane  $(\frac{Lz}{L}, C)$  using only two free parameters, the effective viscosity  $\eta_{eff}$  and the numerical constant  $c$ . Our findings bring the role of viscosity contrast to light, showing that the evolution of the critical capillary number to break a drop as a function of its size is either nonmonotonic ( $\Delta\eta > 0$ ) or monotonic ( $\Delta\eta \leq 0$ ). These results uncover a critical size originating from confinement for which the critical capillary number for breakup is minimum when the viscosity contrast is positive. The break-up dynamics of drops against a linear obstacle bear a resemblance to the well-known Saffman-Taylor instability [23], a problem which originates from the displacement of a fluid by another one and depends on the viscosity contrast between the two fluids [24]. In closing, it is worthwhile mentioning that similar experiments can be performed with bubbles rather than drops. As our model also predicts the volumes of both daughter drops or bubbles created upon breakup [25], this could help the design of commercial obstacle-mediated break-up devices for tailoring bidisperse emulsions and foams [26].

#### ACKNOWLEDGMENTS

We thank l'Université Européenne de Bretagne for partial support of this research (EPT *Physfood*). We thank A. Saint-Jalmes for helping us with the surface tension and viscosity measurements.

#### APPENDIX: ANALYTICAL DERIVATIONS OF THE TRANSITIONS BETWEEN BREAK-UP REGIMES WITH AND WITHOUT RETRACTION IN GAP (2)

##### 1. The case $\Delta\eta > 0$

As explained in the main text, for  $\Delta\eta \geq 0$ , the withdrawal of the two-fluid interface in gap (2) occurs at  $T = T_*$ , provided that  $C < \frac{2Z}{1+\Delta\eta} \frac{1+\frac{2Z}{W}}{W} = C_*$ , and  $T_* < 1$ . One has to make a distinction between two possible cases, depending on whether  $\alpha \geq 1$  or  $\alpha \leq 1$ . When  $\alpha \geq 1$ , by integrating Eq. (2a) between  $T_p$  and  $T_*$ , using  $X_2(T_*) = \frac{\alpha T_* - 1}{W}$ ,  $X_2(T_p) = 0$ ,  $X_1(T_*) = 1$ , and the expression of  $T_p$  derived in the text, it is straightforward to show that  $T_*$  is a solution of the following quadratic equation:

$$\frac{\Delta\eta F}{2W} \alpha^2 T_*^2 + \alpha T_* \left[ \frac{C_*}{C} + F \left( 1 - \frac{\Delta\eta}{W} \right) \right] + \Delta\eta \frac{F - W}{2W} - (1 + F) - \frac{\delta}{2\Delta\eta} \left( \frac{C_*}{C} - 1 \right)^2 = 0, \quad (A1)$$

where  $\delta = 0$  for  $C \geq C_*$ , and  $\delta = 1$  for  $C \leq C_*$ . Consequently, the condition  $T_* < 1$  imposes that  $C < \frac{C_*}{Y}$ , where  $Y$  is the positive solution of the following equation:

$$\frac{\Delta\eta F}{2W} \alpha^2 + \left[ \alpha F \left( 1 - \frac{\Delta\eta}{W} \right) + \Delta\eta \frac{F - W}{2W} - (1 + F) \right] + \alpha Y - \delta \frac{(Y - 1)^2}{2\Delta\eta} = 0, \quad (A2)$$

In the  $(\frac{Lz}{L}, C)$  plane, breakup without the retraction of the interface in gap (2) therefore occurs when  $C$  is larger than the critical capillary number  $\min(C_*, \frac{C_*}{Y})$ .

When  $\alpha \leq 1$ , as discussed in the main text, one finds a single transition between regimes without a receding interface in the narrow gap, breakup being observed when  $C > \frac{C_*}{1+\alpha\Delta\eta}$ .

##### 2. The case $\Delta\eta < 0$

The situation is slightly more complex when  $\Delta\eta < 0$ . As pointed out in the text, when  $C \leq \frac{C_*}{1+\Delta\eta}$ , the retraction of the two-fluid interface in gap (2) may occur when  $X_1 < 1$ , at a time  $T = T_r$  at which the fluid-fluid interface present in gap (1) reaches the position  $X_1(T_r) = \frac{1}{\Delta\eta} \left( \frac{C}{C} - 1 \right)$ . Following a similar approach to the one described above, integrating Eq. (2a) between  $T = 0$  and  $T_r$ , and using  $X_2(T_r) = \frac{\alpha T_r - X_1(T_r)}{W}$  and  $X_2(0) = 0$ , one shows that  $T_r$  is the solution of the following quadratic equation:

$$\frac{\Delta\eta F}{2W} \alpha^2 T_r^2 + \alpha T_r \left[ \frac{C}{C} \left( 1 - \frac{F}{W} \right) + F \left( 1 + \frac{1}{W} \right) \right] - \frac{1}{\Delta\eta} \left( \frac{C}{C} - 1 \right) \left[ 1 + F + \frac{1}{2W} \left( \frac{C}{C} - 1 \right) (W - F) \right] = 0. \quad (A3)$$

One experimentally witnesses such a phenomenon only provided that  $T_r < 1$ , a condition imposing that  $C < \frac{C_*}{Y}$ , where  $Y$  is now the positive solution of the following second-degree polynomial equation:

$$\frac{\Delta\eta F}{2W} \alpha^2 + \alpha \left[ Y \left( 1 - \frac{F}{W} \right) + F \left( 1 + \frac{1}{W} \right) \right] - \frac{Y - 1}{\Delta\eta} \left[ 1 + F + \frac{Y - 1}{2W} (W - F) \right] = 0. \quad (A4)$$

Although in the case  $C \geq \frac{C_*}{1+\Delta\eta}$  withdrawal of the two-fluid interface in gap (2) can no longer be observed for  $X_1 < 1$ , it may begin at  $T_r = T_*$ , when  $X_1(T_*) = 1$ , provided that  $C < C_*$ . Since  $T_p = 0$ , following the same approach as the one used in Sec. 1, one shows that  $T_*$  is a solution of Eq. (A1) with  $\delta = 0$ . To observe receding, the condition  $T_* < 1$  must hold. This additional condition imposes that

$$C < \frac{\alpha C_*}{1 + F - \frac{\Delta\eta}{2W} (F - W) - \frac{F\Delta\eta\alpha^2}{2W} - \alpha F \left( 1 - \frac{\Delta\eta}{W} \right)}$$

To summarize, in the  $(\frac{L_d}{L}, C)$  plane, breakup without a receding interface in gap (2) is observed when  $C$  is larger than the critical capillary number  $\frac{C_c}{\gamma}$  for  $C \leq \frac{C_c}{1+\Delta\eta}$  and  $\min(C_c, \frac{\alpha C_c}{1+F-\frac{\Delta\eta}{2W}(F-W)-\frac{F\Delta\eta\alpha^2}{2W}-\alpha F(1-\frac{\Delta\eta}{W})})$  for  $C \geq \frac{C_c}{1+\Delta\eta}$ .

As discussed in the main text, for both  $\Delta\eta \geq 0$  and  $\Delta\eta < 0$ , the transition is a plateau given by  $C = C_c$ , when  $L_d/L$  is large enough.

- 
- [1] G. I. Taylor, Proc. R. Soc. London A **38**, 41 (1932); **146**, 501 (1934).
- [2] H. A. Stone, Annu. Rev. Fluid Mech. **26**, 65 (1994).
- [3] F. Leal-Calderon, V. Schmitt, and J. Bibette, *Emulsion Science, Basic Principles* (Springer, New York, 2007).
- [4] D. Weaire and S. Hutzler, *The Physics of Foams* (Oxford University Press, New York, 2001).
- [5] D. R. Link, S. L. Anna, D. A. Weitz, and H. A. Stone, Phys. Rev. Lett. **92**, 054503 (2004).
- [6] M. De Menech, Phys. Rev. E **73**, 031505 (2006).
- [7] A. M. Leshansky and L. M. Pismen, Phys. Fluids **21**, 023303 (2009).
- [8] M.-C. Jullien, M.-J. Tsang Mui Ching, C. Cohen, L. Menetrier, and P. Tabeling, Phys. Fluids **21**, 072001 (2009).
- [9] L. Ménétrier-Deremble and P. Tabeling, Phys. Rev. E **74**, 035303(R) (2006).
- [10] A. Vananroye, P. Van Puyvelde, and P. Moldenaers, Langmuir **22**, 3972 (2006).
- [11] T. Cubaud, Phys. Rev. E **80**, 026307 (2009).
- [12] S. Protière, M. Z. Bazant, D. A. Weitz, and H. A. Stone, EPL **92**, 54002 (2010).
- [13] M. Joanicot and A. Ajdari, Science **309**, 887 (2005).
- [14] S. L. Anna, N. Bontoux, and H. A. Stone, Appl. Phys. Lett. **82**, 364 (2003).
- [15] M. Belloul, W. Engl, A. Colin, P. Panizza, and A. Ajdari, Phys. Rev. Lett. **102**, 194502 (2009).
- [16] J. C. McDonald, D. C. Duffy, J. R. Anderson, D. T. Chiu, H. Wu, O. J. A. Schueller, and G. M. Whitesides, Electrophoresis **21**, 27 (2000).
- [17] See Supplemental Material at <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevE.86.036317> for four high-speed movies and movie captions.
- [18] D. A. Sessoms, M. Belloul, W. Engl, M. Roche, L. Courbin, and P. Panizza, Phys. Rev. E **80**, 016317 (2009).
- [19] The effective viscosity  $\eta_d^{eff}(h, w, \eta_d, \eta_c)$  accounts for additional viscous dissipation inside the slug, in the thin films of continuous phase between the slug and the channel walls, floor, and ceiling, and in the corners of the rectangular geometry. Considering different effective viscosities for the two gaps has a very weak effect on the results; in our model  $\eta_d^{eff}$  is the same in both gaps.
- [20] H. Bruus, *Theoretical Microfluidics* (Oxford University Press, New York, 2008).
- [21] V. Labrot, M. Schindler, P. Guillot, A. Colin, and M. Joanicot, Biomicrofluidics **3**, 012804 (2009).
- [22] S. A. Vanapalli, A. G. Banpurkar, D. van den Ende, M. H. G. Duits, and F. Mugele, Lab. Chip **9**, 982 (2009).
- [23] P. G. Saffman and G. I. Taylor, Proc. R. Soc. London A **245**, 312 (1958).
- [24] Such a similarity is also discussed in the case of droplet breakup past a circular obstacle in [12].
- [25] L. Salkin, A. Schmit, L. Courbin, and P. Panizza (unpublished).
- [26] P. Panizza, W. Engl, C. Hany, and R. Bäckov, Colloids Surf., A **102**, 24 (2008).

Publication B [105]

## Passive breakups of isolated drops and one-dimensional assemblies of drops in microfluidic geometries: experiments and models

Cite this: *Lab Chip*, 2013, 13, 3022

Louis Salkin, Alexandre Schmit, Laurent Courbin\* and Pascal Panizza\*

Using two different geometries, rectangular obstacles and asymmetric loops, we investigate the breakup dynamics of deformable objects, such as drops and bubbles, confined in microfluidic devices. We thoroughly study two distinct flow configurations that depend on whether object-to-object hydrodynamic interactions are allowed. When such interactions are introduced, we find that the volumes of the daughter objects created after breakup solely depend on the geometrical features of the devices and are not affected by the hydrodynamic and physicochemical variables; these results are in sharp contrast with those obtained for non-interacting objects. For both configurations, we provide simple phenomenological models that capture well the experimental findings and predict the evolution of the volumes of the daughter objects with the controlling dimensionless quantities that are identified. We introduce a mean-field approximation, which permits accounting for the interactions between objects during breakup and we discuss its conditions of validity.

Received 8th January 2013,  
Accepted 23rd April 2013

DOI: 10.1039/c3lc00040k

www.rsc.org/loc

### 1 Introduction

The use of liquid droplets as micron-sized analogs of test tubes, *i.e.* as microreactors, is a promising route towards the design of high-throughput microfluidics applications<sup>1–4</sup> that aim at analyzing faster and at a lower cost than conventional techniques. This approach known as digital microfluidics<sup>2,3</sup> relies on the ability to generate periodic trains of mono-dispersed droplets, to handle the drops individually, and to perform and combine basic operations on these deformable objects, *e.g.* fragmentation, dilution, mixing, and sorting. In contrast to the classical *top-down* emulsification techniques, for which large amounts of droplets are handled at the same time, this technology permits to manipulate individual drops with a precise control of their size and inner composition. This original *bottom-up* approach makes microfluidics a powerful tool for material and emulsion sciences<sup>5</sup> to create new materials, *e.g.* double emulsions with inner droplets of different compositions,<sup>6</sup> multiple emulsions,<sup>7,8</sup> Janus<sup>9,10</sup> or core-shell<sup>11,12</sup> particles.

The development of applications requires the understanding of the physics behind the basic operations mentioned above. In particular, many recent works have focused on the breakup of drops in confined geometries.<sup>13–25</sup> Indeed, digital microfluidics is a robust tool for high-throughput biological assays,<sup>26</sup> droplet splitting being employed for instance for on-chip Polymerase Chain Reaction (PCR)<sup>27</sup> and the screening of

compound libraries.<sup>28</sup> An external controlling parameter, *e.g.*, an electric field,<sup>24</sup> can be used to break droplets in microfluidic devices. However, most works rely on passive (geometry-based) methods that do not require the use of an external field. The pioneering work on the topic<sup>13</sup> describes the two main geometry-mediated methods that can be employed. A train of droplets flowing in a channel can either reach a junction,<sup>13–21</sup> that is, the inlet node of a loop having generally two arms of different lengths, or be directed towards a micro-obstacle.<sup>13,22,23</sup> All these works show that breakup only occurs when the capillary number exceeds a minimum value. Above this value, all of the droplets of a train successively break into two daughter droplets that flow in each of the gaps of an obstacle or in the two arms of a loop depending on the studied geometry. When drops fragment against obstacles, experiments show that the size of the daughter droplets depends on the governing parameters at play: the volume and velocity of the drops, the viscosities of the two immiscible fluids, the surface tension, and the geometrical parameters.<sup>22</sup> By contrast, when loops are used, the experimental size ratio of the produced droplets solely depends on the geometrical features of the device;<sup>13</sup> using successive loops, this method helps to increase the production rate of monodisperse emulsions.<sup>29</sup> The investigations on geometry-mediated breakups almost exclusively describe the various hydrodynamic regimes that can be observed and experimental conditions required to witness drop fragmentation.<sup>13–25</sup> On the other hand, the evolution of the size of the daughter objects created upon breakup with the governing parameters has been well

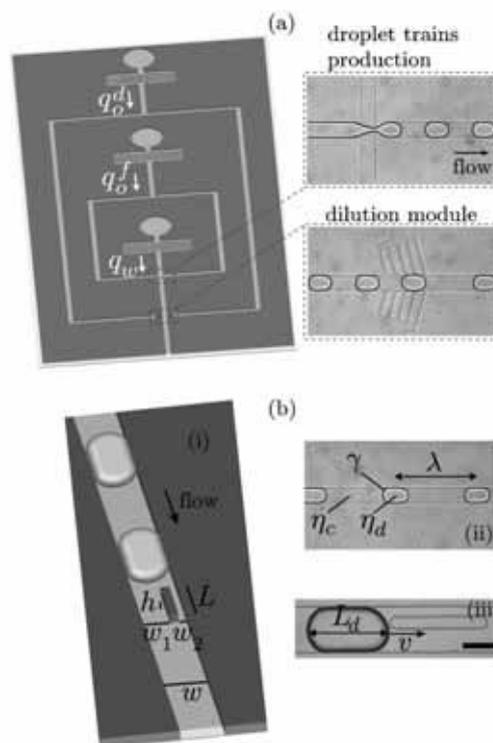
IPR, UMR CNRS 6251, Campus Beaulieu, Université Rennes 1, 35042 Rennes, France.  
E-mail: laurent.courbin@univ-rennes1.fr; pascal.panizza@univ-rennes1.fr

studied experimentally, but is still poorly understood. Modeling this size is indeed a challenging task because of the large number of parameters potentially at play and possible object-to-object interactions, which induce time-delayed feedback;<sup>30–34</sup> because of such feedbacks, the breakup of an object may be influenced by the behavior of the preceding objects.

Here, we aim to address this question working with both isolated and interacting drops and bubbles using the two different methods, obstacles and asymmetric loops. We begin with a brief presentation of results recently obtained in the case of isolated drops flowing against obstacles.<sup>23</sup> We describe the basic elements necessary to develop a model that captures most of the experimental findings, accounts for the four hydrodynamic regimes observed experimentally, and describes the transitions between these regimes.<sup>23</sup> We then show that this model can also predict the volumes of the daughter drops or bubbles produced when breakup occurs. Afterwards, we perform systematic experiments with rectangular obstacles and asymmetric loops that are very long compared to the distance between objects. In both cases, we identify the physical parameters controlling the volume of the daughter objects. Our experiments show that the set of governing parameters depends on whether the objects are isolated or interacting. Building on previous works on the dynamics of droplet traffic at a junction,<sup>35,36</sup> we introduce a “mean-field” approximation that allows us to analytically treat the problem when object-to-object interactions are present. The predictions obtained for the volume of the created drops after breakup concur very well with the experiments. This model also explains a conjectured result reported in ref. 13.

## 2 Set-up

We carry out experiments with microfluidic devices, fabricated in poly-dimethylsiloxane (PDMS) using soft lithography techniques.<sup>37</sup> The microchannels have a rectangular cross-section,  $hw$ , with a height  $h = 45 \mu\text{m}$  and a width  $w = 130 \mu\text{m}$  (see Fig. 1). A periodic train (frequency  $f$ ) of monodisperse droplets (or bubbles) is generated using a flow focusing method.<sup>38</sup> In the case of drops, we use syringe pumps (PHD 2000, Harvard Apparatus) to inject the dispersed (an aqueous solution) and continuous (an oil) phases at controlled flow rates, which are adjusted independently until a steady flow of monodisperse drops with a desired size  $L_d = 150\text{--}900 \mu\text{m}$  is obtained. Typical values of the flow rates for the dispersed and continuous phases are  $q_w = 5\text{--}200 \mu\text{l h}^{-1}$  and  $q_o^c = 5\text{--}500 \mu\text{l h}^{-1}$ , respectively [Fig. 1(a)]. We employ a similar procedure to generate monodisperse trains of bubbles, besides the injection of the dispersed phase (nitrogen gas) that is performed at constant pressure, 50–700 mbar, using a microfluidic flow control system (MFCS-FLEX, Fluigent). The train is directed towards a linear obstacle of length  $L = 200\text{--}800 \mu\text{m}$  and a width  $30 \mu\text{m}$  that is parallel to the walls of the channel, but is off-centered so that objects may flow in two gaps, (1) and (2), having



**Fig. 1** (a) A schematic representation of the microfluidic device upstream of the obstacle and photographs showing the two main modules used to create periodic trains of monodisperse slugs. Defined are the oil flow rates in the production and dilution modules,  $q_o^d$  and  $q_o^c$ , and the flow rate of the slugs phase  $q_w$ . (b) (i) A schematic representation of the flow-geometry near the obstacle defining the geometrical parameters  $h$ ,  $L$ ,  $w$ ,  $w_1$ , and  $w_2$ . (ii) and (iii) Photographs defining the hydrodynamics and physicochemical variables  $\gamma$ ,  $\eta_c$ ,  $\eta_d$ ,  $\lambda$ ,  $v$ , and  $L_d$ . Scale bar:  $100 \mu\text{m}$ .

different widths  $w_1$  and  $w_2 < w_1$  respectively, with  $W = w_2/w_1 = 0.4\text{--}0.9$  characterizing the asymmetry of the obstacle [see Fig. 1(b)]. We only consider situations for which  $L_d$  is larger than  $w$  so that the drops (or bubbles) adopt a shape that resembles a pancake; in what follows, we refer to these large objects as “slugs”. An additional injection of the continuous phase at a constant flow rate  $q_o^c = 0\text{--}1000 \mu\text{l h}^{-1}$  performed far upstream from the obstacle permits to vary the velocity of the slugs  $v$  and the distance between slugs  $\lambda$ , while maintaining their size, thus their volume  $\Omega = q_w/f$ , unchanged.<sup>32</sup> In our experiments, the Reynolds and the capillary numbers are small and span the ranges  $10^{-3}\text{--}10^{-1}$  and  $10^{-3}\text{--}10^{-2}$ , respectively. Images of the flow are recorded close to the obstacle with a high-speed camera (Phantom V7, Vision Research) working at typical frame rates of  $500\text{--}5000 \text{ frames s}^{-1}$ . The motion of the slugs, as well as their size, are obtained from image analysis using a custom-written software developed with MATLAB. The liquid–liquid systems are water–glucose mixtures (viscosity  $\eta_d = 1$  to  $7 \text{ mPa s}$ ) dispersed in

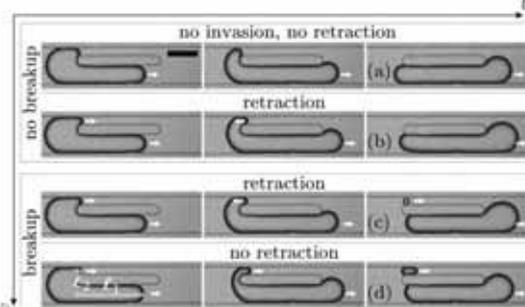
either hexadecane (viscosity  $\eta_c = 3$  mPa s) or a viscous silicone oil ( $\eta_c = 50$  mPa s). The dispersed phase contains  $15 \text{ g L}^{-1}$  of a surfactant (sodium dodecyl sulfate, Sigma). The gas-liquid system is a nitrogen gas in hexadecane. For each system, we measure the surface tension  $\gamma$  between dispersed and continuous phases with pendant drop (or bubble) tensiometry.

### 3 Fragmentation of isolated drops and bubbles

#### 3.1 Experiments: hydrodynamic regimes

We begin by studying the fragmentation of isolated drops and bubbles against a rectangular obstacle. This situation is obtained when the slugs are sufficiently far apart so that whenever the front edge of a slug meets the obstacle, the two gaps (1) and (2) are only filled with the continuous phase. In such a configuration, the fragmentation of a slug does not affect the breakup dynamics of the following slug and a drop or bubble can therefore be considered as non-interacting, *i.e.*, isolated. This situation is obtained experimentally when  $\lambda \gg L_d$ .

For  $\eta_d > \eta_c$  and a fixed value of  $L_d$ , we observe the behavior of isolated slugs flowing against the same rectangular obstacle at different velocities  $v$ . We obtain four different hydrodynamic regimes (Fig. 2). A slug may or may not break against the obstacle, these regimes occurring with [Fig. 2(b-c)] or without [Fig. 2(a-d)] the retraction of the two-fluid interface in the narrow gap (2). More specifically, for small enough speeds [see Fig. 2(a-b)], a slug does not break and flows through the large gap (1). When the speed is sufficiently large, breakup occurs with or without the retraction of an interface in the gap (2) [see Fig. 2(c-d)]. In a recent study,<sup>23</sup> we have systematically studied the occurrence of these regimes as a function of the governing parameters shown in Fig. 1(b). This earlier work reports a theoretical framework, which describes well the experimental findings in terms of the seven dimensionless quantities controlling the dynamics. This model also provides diagrams mapping the four hydrodynamic regimes found



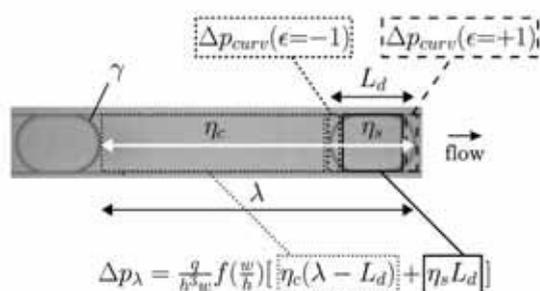
**Fig. 2** (a-d) Four different hydrodynamic regimes are observed when isolated slugs of the same size flow against an obstacle at different speeds; adapted from ref. 23. The position of an interface in the  $i$ -th gap,  $i = 1$  or 2, is defined by  $\ell_i(t)$ ; the slug meets the obstacle at a time  $t = 0$ . Scale bar: 100  $\mu\text{m}$ .

experimentally. In the next section, we give the basic elements necessary to derive this model.

#### 3.2 Modeling the flow

**3.2.1 Transport of slugs.** Building on previous models describing the transport of slugs in microfluidic conduits at low Reynolds and capillary numbers,<sup>20,22,23</sup> we assume that  $v$  varies as  $v = \frac{q}{h^3 w}$  with  $q = q_w + q'_0 + q''_0$  the total flow rate, and that Darcy's laws describe the flows of both the continuous phase and the slugs phase with an effective viscosity  $\eta_e(h, w, \eta_d, \eta_c)$  for the slugs. This phenomenological effective viscosity accounts for additional viscous dissipation inside the slug, in the thin films of the continuous phase between the slug and the channel walls, floor, and ceiling, and in the corners of the rectangular geometry. The pressure drop  $\Delta p$  over a portion  $\ell$  of a slug then reads  $\Delta p = \frac{\eta_e \ell}{h^3 w} f\left(\frac{w}{h}\right) q$ , where  $f\left(\frac{w}{h}\right) \approx 12 \left(1 - 0.63 \left(\frac{w}{h}\right)^{-1}\right)^{-1}$  in the situation ( $h < w$ ) considered here.<sup>39</sup> Due to the curved two-fluid interfaces, there are also pressure drops across the front and rear edges of the slug, which we write approximately as  $\Delta p_{\text{curv}} = \epsilon \frac{2\gamma}{w} \left(1 + \frac{w}{h}\right)$ , with  $\epsilon = 1$  or  $-1$  depending on whether the front or the rear edge of the slug is considered. Because of its spatial periodicity, we model the flow over a length  $\lambda$ , within two distinct regions of lengths  $L_d$  and  $\lambda - L_d$  corresponding respectively to the slug and the space between slugs (see Fig. 3). In the situation depicted in Fig. 3, the contribution to the total pressure drop of the curved rear and front slug edges cancel out<sup>40</sup> so that the pressure drop over  $\lambda$  is  $\Delta p_\lambda = \frac{\eta_c \lambda}{h^3 w} f\left(\frac{w}{h}\right) [1 + \Delta \eta \frac{L_d}{\lambda}] q$ , with the viscosity contrast  $\Delta \eta = \frac{\eta_d - \eta_c}{\eta_c}$ .

It is worthwhile mentioning that in the case of a long channel of length  $\ell \gg \lambda$  the pressure drop is  $\Delta p \approx \frac{\ell}{\lambda} \Delta p_\lambda$  so that the hydrodynamic resistance of the channel reads  $\frac{\Delta p}{q} \approx \frac{\eta_c \ell}{h^3 w} f\left(\frac{w}{h}\right) [1 + \Delta \eta \frac{L_d}{\lambda}] \approx \frac{\eta_c \ell}{h^3 w} f\left(\frac{w}{h}\right) (\ell + n L_d)$  where  $n \approx \frac{\ell}{\lambda}$  is



**Fig. 3** A photograph of the flow describing the modeling of the pressure drops in our study. Slugs of size  $L_d$  separated by a distance  $\lambda$  flow in a rectangular channel of width  $w$  and height  $h$ . The pressure drop over the length indicated by the white arrow is the sum of  $\Delta p_\lambda$ , corresponding to the flow of the continuous phase and slugs, and the additional pressure drop across the front and rear edges of the slug due to the curved two-fluid interface  $\Delta p_{\text{curv}} = \epsilon \frac{2\gamma}{w} \left(1 + \frac{w}{h}\right)$ ;  $\epsilon = 1$  (front edge) or  $\epsilon = -1$  (rear edge). This model assumes that the continuous phase and slugs flow at the same speed.

the number of slugs in the channel and  $L_r = L_d \Delta \eta$  has the dimension of a length. This phenomenological model, neglecting the dependence of the hydrodynamic resistance on the recirculation around the caps of the slugs, predicts that the hydrodynamic resistance of a channel filled with slugs varies linearly with the number of slugs it contains, with  $L_r$  an excess length added by each slug to the channel in terms of hydrodynamic resistance. The existence of such a resistive length is also predicted in the case of the transport of spherical drops in a microfluidic conduit at low capillary and Reynolds numbers using a slightly different phenomenological approach<sup>41</sup> validated by experiments for both spherical drops and slugs.<sup>32,35,41–43</sup> Interestingly, our simple model for the hydrodynamic resistance of a microchannel filled with slugs also predicts that the effective length  $L_r = L_d \Delta \eta$  can be negative when  $\Delta \eta < 0$ . This prediction could inspire further experimental investigations of droplet traffic for fluid–fluid systems having negative viscosity contrasts.

**3.2.2 Fragmentation against a rectangular obstacle.** Here, we briefly present the model reported in ref. 23 that allows for a rationalization of the experiments discussed in section 3.1. We will then show that this model also predicts the volumes of the daughter drops or bubbles that are created when breakup occurs.

Our model is based on the basic physical arguments discussed in section 3.2.1. The dynamics start at a time  $t = 0$  when an isolated slug meets the obstacle. Since our experiments are carried out at constant flow rates, a two-fluid interface always enters the large gap (1) and begins to move forward at a speed of  $v_1(t) = d\ell_1/dt$  up to a distance  $\ell_1 = X_1 L$  [see Fig. 2(d) defining  $\ell_1$ ]. Similarly, in regimes for which a two-fluid interface propagates in the narrow gap, the velocity and location of this interface in gap (2) are  $v_2(t) = d\ell_2/dt$  and  $\ell_2 = X_2 L$ , respectively [Fig. 2(d) defines  $\ell_2$ ]. In our model, the pressure drop  $\Delta p_{\text{curv}}$  accounts for the presence of the curved interfaces. However, this simple model is derived considering flat interfaces. Our experiments show that the velocity of the slug  $v$  remains constant after collision until the rear edge of the slug reaches the obstacle. Therefore, since we consider slugs having flat interfaces, we assume that this event occurs at a time  $t_f = \frac{L_d - cw}{v}$ ;  $c$  is a free parameter  $O(1)$  that depends on the dimensionless parameters of the cross-section of the channel, i.e.,  $\frac{w}{h}$ ,  $\frac{w_2}{h}$ , and  $\frac{w_2}{Wh}$ . We next work with the dimensionless time  $T = \frac{t}{t_f}$ .

Breakup occurs provided that a two-fluid interface has invaded gap 2 and has not completely withdrawn from this gap at  $T = 1$ . The dynamics of the two-fluid interfaces in both gaps are controlled by a set of two coupled first-order ordinary differential equations.<sup>23</sup> The first equation is given by the conservation of the total flow rate:

$$\frac{dX_1}{dT} + W \frac{dX_2}{dT} = \frac{(L_d - cw)w}{Lw_1} = \alpha. \quad (1a)$$

The equality of pressure drops over both gaps gives the second equation:

$$(1 + \Delta \eta X_1) \frac{dX_1}{dT} - FW(1 + \Delta \eta X_2) \frac{dX_2}{dT} = \alpha \frac{C}{C} \quad (1b)$$

for  $X_1 \leq 1$  and  $X_2 \leq 1$ ;

$$(1 + \Delta \eta) \frac{dX_1}{dT} - FW(1 + \Delta \eta X_2) \frac{dX_2}{dT} = \alpha \frac{C}{C} \frac{1 + \frac{w_2}{h}}{1 - W} \quad (1c)$$

for  $X_1 > 1$  and  $X_2 \leq 1$ .  $F = f\left(\frac{w_2}{h}\right) / \left[Wf\left(\frac{w_2}{Wh}\right)\right]$  and  $C = \frac{\eta_c v}{\gamma}$  is the capillary number. Other dimensionless quantities are  $C_c = 2Z \frac{1-W}{W}$  with  $Z = \left(f\left(\frac{w_2}{Wh}\right) h^{-2} w L\right)^{-1}$ .

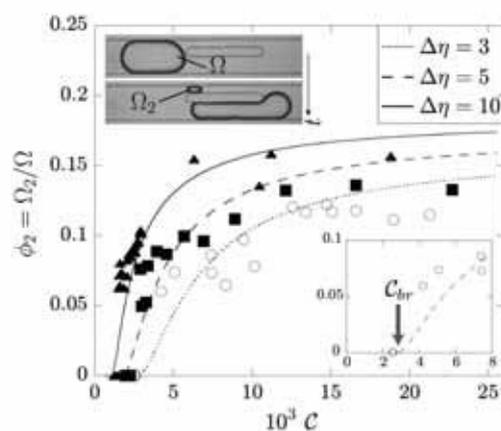
This set of equations is written in terms of the seven dimensionless quantities controlling the breakup dynamics  $(W, Z, \frac{w}{h}, \frac{w_2}{h}, C, \frac{L_d}{L}, \Delta \eta)$ . The first four quantities are associated with the geometry of the channel whereas  $C$ ,  $\frac{L_d}{L}$ , and  $\Delta \eta$  depend on the hydrodynamic parameters and fluid properties. Not surprisingly,  $C$ , which compares the magnitude of viscous and capillary stresses, appears to be a governing quantity as seen in other problems addressing the breakup of drops or bubbles.<sup>13,20,22,44</sup> This theoretical framework captures experimental observations and transitions between hydrodynamic regimes discussed in section 3.1 and reported in Salkin *et al.*<sup>23</sup>

### 3.3 Size distribution after breakup

A slug breaks whenever it has entered the narrow gap and  $X_2(T = 1) > 0$ . Using this condition for breakup and solving numerically the set of eqns (1) allows us to determine the volume of the daughter slugs  $\Omega_i = w_i h L X_i(1)$  produced in gap ( $i$ ) with  $i = 1$  or 2. Varying the size and velocity of a slug, the fluid viscosities, the surface tension, and the geometrical features of the obstacle, we next compare the predicted volumes  $\Omega_i$  with experimental measurements. Despite the apparent complexity of a problem with a large number of governing parameters [see Fig. 1(b)], in what follows, we show that our simple model based on strong approximations can predict the daughter slugs size distribution using only two free parameters, the effective viscosity  $\eta_e$  and the numerical constant  $c$ , introduced because we consider flat interfaces rather than curved. The results presented below from Fig. 4 through to Fig. 6 are discussed in terms of  $\phi_2 = \frac{\Omega_2}{\Omega}$ , the ratio of the volume  $\Omega_2$  over the volume of the initial slug  $\Omega$  studied as a function of  $C$ . As shown in these figures, the numerical simulations provide a good qualitative description of our experimental findings as it captures well the variations of the volume fraction  $\phi_2$  when the experimental parameters are varied. In addition, the values taken by the free parameters to determine the best fits to the experimental volume of the daughter slugs are consistent with the free parameters determined in our previous work<sup>23</sup> by fitting the analytical expressions of the transitions separating the four hydrodynamic regimes in the  $(C, L_d)$  plane to the experimental data; these regimes are briefly discussed in section 3.1.

We begin by studying the evolution of  $\phi_2$  with  $C$  for different liquid–liquid systems, i.e., for different viscosity con-

Paper

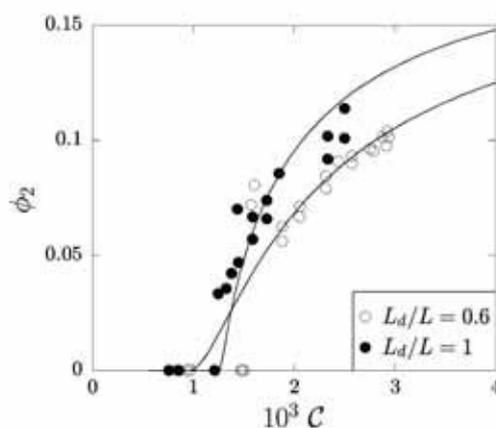


**Fig. 4** Evolution as a function of  $C$  of the volume fraction  $\phi_2$  for different water-glucose mixtures in hexadecane: ( $\circ$ )  $\eta_d = 1$  mPa s, ( $\blacksquare$ )  $\eta_d = 2.7$  mPa s, and ( $\blacktriangle$ )  $\eta_d = 7.2$  mPa s. The photographs define  $\Omega$  and  $\Omega_2$ . Inset: Magnification at low  $\phi_2$  and  $C$  defining the minimum capillary number for breakup to occur,  $C_{br}$ . The dimensionless quantities are  $W = 0.4$ ,  $\frac{w}{h} = 2.7$ ,  $\frac{w_2}{h} = 0.57$ ,  $Z = 2.8 \times 10^{-3}$ . The lines are predictions of the model. The two free parameters are  $c = 0.5$  and (dotted line)  $\Delta\eta = 3$ , (dashed line)  $\Delta\eta = 5$ , and (solid line)  $\Delta\eta = 10$ .

trasts. Fig. 4 shows that above a critical value  $C_{br}$  of  $C$  a slug breaks into two daughter slugs (see inset of Fig. 4 defining  $C_{br}$  for a set of data) in accordance with our previous observations.<sup>23</sup> Additionally, when  $C > C_{br}$ ,  $\phi_2$  is a monotonically increasing function of  $C$ , which indicates that  $\Omega_2$  becomes larger as  $C$  increases. When breakup occurs, for a given capillary number,  $\phi_2$  strongly increases with the viscosity contrast. Experiments also show that  $C_{br}$  becomes smaller when the viscosity contrast is increased. This result indicates that, for  $\Delta\eta > 0$  and a given continuous phase, the minimum capillary number to break a slug against a rectangular micro-obstacle is smaller for a high-viscosity fluid slug compared to a low-viscosity one. This behavior is surprising as it differs from what is usually observed in bulk for an isolated drop submitted to a flow;<sup>44</sup> it clearly shows that the physics of drop fragmentation is highly sensitive to confinement.<sup>45</sup> The model captures well all of the experimental observations discussed above (Fig. 4).

We next investigate the effect of the slug size on the fragmentation process. Fig. 5 shows the evolution of  $\phi_2$  with  $C$  for two different values of  $L_d/L$  in the case of a liquid-liquid system whose viscosity contrast is positive ( $\eta_c = 3$  mPa s and  $\eta_d = 7.2$  mPa s). For such viscosity contrasts, we have recently reported the existence of a critical drop size  $L_d^c$ , for which breakup requires a minimum capillary number.<sup>23</sup> When  $L_d < L_d^c$ , only breakup regimes occurring without the retraction of a two-fluid interface in the narrow gap are observed. By contrast, depending on the value of  $C$ , the fragmentation may or may not occur with such a retraction when  $L_d > L_d^c$ ; a detailed discussion of these findings is provided in ref. 23. As shown in Fig. 4, the model describes reasonably well the variations of  $\phi_2$  when  $L_d/L$  either smaller or

Lab on a Chip

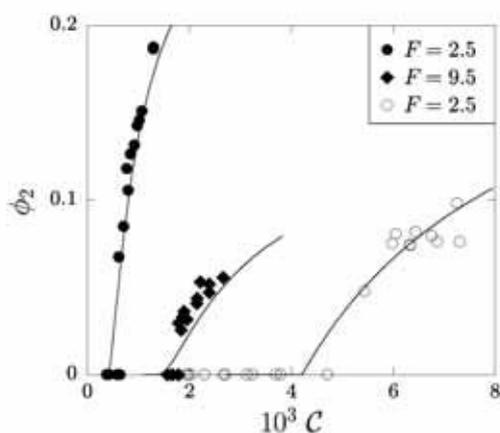


**Fig. 5** Variations of  $\phi_2$  as a function of  $C$  for a water-glucose mixture in hexadecane ( $\eta_c = 7.2$  mPa s) and two values of  $L_d/L$  respectively smaller and larger than  $L_d^c/L$ : ( $\circ$ )  $L_d/L = 0.6$  and ( $\bullet$ )  $L_d/L = 1$ ; in these experiments,  $L_d^c/L = 0.74$ . The dimensionless quantities are  $W = 0.4$ ,  $\frac{w}{h} = 2.7$ ,  $\frac{w_2}{h} = 0.57$ , and  $Z = 2.8 \times 10^{-3}$ . The lines are predictions of the model calculated using the two free parameters  $c = 0.5$  and  $\Delta\eta = 10$ .

larger than  $L_d^c/L$ . Above  $C_{br}$ ,  $\phi_2$  monotonically increases with  $C$  and its evolution weakly depends on  $L_d/L$ .

Using different devices, we next study the influence of the obstacle asymmetry  $W$  on the evolution of  $\phi_2$  with  $C$  (Fig. 6); note that the results are discussed in terms of  $F = f\left(\frac{w_2}{h}\right) / \left[Wf\left(\frac{w}{h}\right)\right]$  instead of  $W$  as  $w_2/h$  may vary from one device to another. As mentioned previously, experiments can be conducted with bubbles rather than drops. We provide in Fig. 6 a set of results obtained for the gas-liquid system showing that the model predicts the volumes of both drops and bubbles well. In other words, this model can predict the volume of daughter objects for both positive and negative viscosity contrasts. Experiments performed with the liquid-liquid system show that  $C_{br}$  increases with  $F$ . The volume fraction  $\phi_2$  is also sensitive to the obstacle asymmetry: for a given capillary number,  $\phi_2$  strongly decreases with  $F$  (Fig. 6).

To summarize, working within the limit  $\lambda \gg L$ , we have studied the volume of daughter drops or bubbles obtained after the breakup of isolated slugs against a rectangular obstacle. Our results show that breakup occurs when the capillary number  $C$  exceeds a minimum value  $C_{br}$ . When  $C \geq C_{br}$ , daughter slugs are produced in both gaps and the volume fraction in the narrow gap  $\phi_2$  is an increasing function of  $C$ . Although  $C_{br}$  is a non-trivial function of the governing parameters of the problem, its variations can be fully captured using the model described in ref. 23. Experiments show that the volume of the daughter slugs depends on the capillary number, the size of the initial slug, the viscosity contrast, and the asymmetry of the obstacle. Using only two free parameters, the model reported in ref. 23 describes semi-quantitatively our experiments. When we compare the viscosity of the dispersed



**Fig. 6** Evolution of  $\phi_2$  with  $C$  for different values of  $F$ . The solid lines correspond to the model for (closed symbols) slugs of the water/glucose mixture in hexadecane ( $\eta_0 = 7.2$  mPa s) and (open symbols) bubbles filled with nitrogen gas in hexadecane. The shape of the symbols stand for different values of  $F$ , as indicated in the figure. The dimensionless quantities are ( $\square$ )  $W = 0.6$ ,

$\frac{w_1}{h} = 0.78$ ,  $Z = 3 \times 10^{-3}$ ,  $L_d/L = 0.7$ , ( $\blacklozenge$ )  $W = 0.35$ ,  $\frac{w_2}{h} = 0.54$ ,  $Z = 3.7 \times 10^{-3}$ ,  $L_d/L = 0.9$ , and  $\frac{w_1}{h} = 0.83$  ( $\blacktriangle$ )  $W = 0.6$ ,  $Z = 3.3 \times 10^{-3}$ ,  $L_d/L = 0.9$ . For each experiment,  $\frac{w_2}{h} = 3.03$ . The free parameters are ( $\square$ )  $c = 0.49$  and  $\Delta\eta = -0.97$ , ( $\blacklozenge$ )  $c = 0.8$  and  $\Delta\eta = 10$ , and ( $\blacktriangle$ )  $c = 0.9$  and  $\Delta\eta = 10$ .

phase  $\eta_d$  with the values of  $\eta_b$  determined for the fits to the data in Fig. 4 through Fig. 6, we find that our results concur with the literature. Indeed, when  $\Delta\eta > 0$ , we find that  $\eta_b > \eta_c$ , which is consistent with ref. 42. By contrast,  $\eta_d < \eta_b < \eta_c$  when  $\Delta\eta < 0$ , which concurs with other works.<sup>43</sup> In section 4, working within the limit  $\lambda \ll L$ , we will investigate the breakup in the presence of slug-to-slug interactions. When  $\lambda \sim L$ , we observe the emergence of complex breakup dynamics that include periodic fragmentation events; these results will be discussed elsewhere.<sup>46</sup> Using a mean-field approach, we determine in the next section the critical value of  $\lambda$ , below which the slugs can no longer be considered as isolated.

### 3.4 Long obstacles and large capillary numbers: a mean-field approximation

We consider configurations for which  $L_d/L$  is small enough to establish a mean-field approximation. In our model, considering flat interfaces, this situation corresponds to small enough ratios  $L_d^{eff}/L = (L_d - c\nu)/L$ . In this case, a two-fluid interface is still present in the large gap when the rear edge of a slug reaches the obstacle, i.e.,  $X_1(T=1) < 1$ , and the dynamics of the two-fluid interfaces propagating in both gaps are solely governed by eqn (1a and b). One can then assume that the variations in time of the pressure drops in both gaps associated with the flow of the slug and the presence of the curved interfaces remain negligible when compared to the mean values of the pressure drops. This assumption can be mathematically expressed as  $|\Delta\eta|X_i \ll 1$  and  $C \gg \alpha C_c$ . Hence,

eqn (1b) becomes:

$$\frac{dX_1}{dT} - FW \frac{dX_2}{dT} \approx 0. \quad (2)$$

By solving eqn (1a) and (2) one easily finds  $\frac{dX_1}{dT} \approx \frac{\alpha F}{(1+F)}$  and  $\frac{dX_2}{dT} \approx \frac{\alpha}{W(1+F)}$ . Using these relationships, one derives expressions for  $\phi_i = \Omega_i/\Omega$  in the gap ( $i$ ) with  $i = 1$  or 2:

$$\phi_2 \approx \frac{1}{1+F} \quad (3a)$$

and

$$\phi_1 \approx \frac{F}{1+F}. \quad (3b)$$

Using these results, the conditions for the validity of our approximation read  $\frac{L_d^{eff}}{L} < \frac{w_1(1+F)}{wF}$ ,  $\frac{L_d^{eff}}{L} \ll \frac{w_1(1+F)}{wF|\Delta\eta|}$ , and  $C \gg \alpha C_c$ . One can also derive an expression for the critical distance between slugs  $\lambda_c$ , above which a slug can be considered as isolated when reaching an obstacle at  $T = 0$ . At this time, when  $\lambda \geq \lambda_c$ , both gaps are only filled with the continuous phase, which indicates that the daughter slug created in the narrow gap after the breakup of the previous slug at  $T = -\frac{\lambda - L_d^{eff}}{L_d^{eff}}$  has moved by at least a dimensionless distance 1 over the duration  $\frac{\lambda - L_d^{eff}}{L_d^{eff}}$ . Using  $\frac{dX_2}{dT} \approx \frac{\alpha}{W(1+F)}$ , when  $\lambda = \lambda_c$  this simple analysis gives:

$$\lambda_c \approx L \frac{w_2(1+F)}{w} + L_d^{eff}. \quad (4)$$

For larger  $L_d^{eff}$ , a two-fluid interface may have left the large gap at  $T = 1$ . This situation is apparently more complex since the dynamics of the two-fluid interfaces are then controlled by the complete set of eqn (1). Nevertheless, when  $|\Delta\eta| \ll 1$  and

$$C \gg \alpha C_c \frac{1 + \frac{w_2}{h}}{1 - W}, \quad \text{eqn (1b and c) both reduce to eqn (2) and a}$$

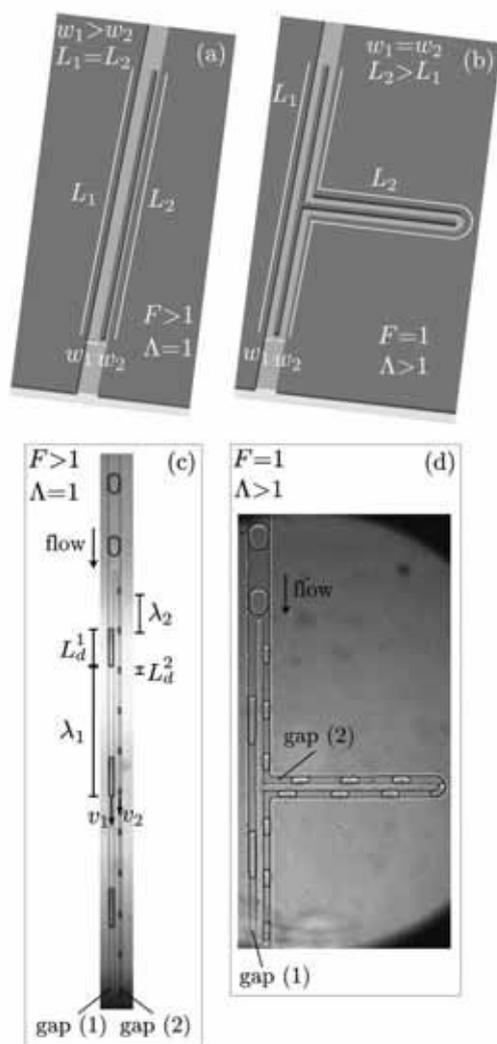
similar analysis gives the same expressions for  $\phi_1$ ,  $\phi_2$ , and  $\lambda_c$  as determined when  $X_1(T=1) < 1$ .

## 4 Fragmentation in the presence of slug-to-slug interactions

### 4.1 Experiments

We now study the breakup dynamics of one-dimensional assemblies of slugs, for which  $\lambda \ll L_i$  against obstacles depicted in Fig. 7.

The two gaps (1) and (2) of the obstacles have lengths  $L_1$  and  $L_2$  and widths  $w_1$  and  $w_2$  (Fig. 7);  $L_i = 10^3$ – $10^4$   $\mu\text{m}$  with  $i = 1$  or 2. These obstacles are either long and rectangular [Fig. 7(a)] or can be viewed as long asymmetric loops [Fig. 7(b)].  $F$  and  $\Lambda = \frac{L_2}{L_1}$  characterize the asymmetry:  $F > 1$  and  $\Lambda = 1$  for rectangular obstacles whereas  $F = 1$  and  $\Lambda > 1$  in the case of loops.

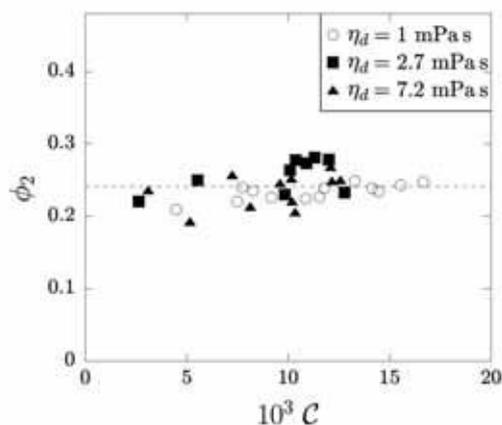


**Fig. 7** A sketch of the long rectangular obstacles (a) and asymmetric loops (b).

The asymmetry is controlled by  $F = f\left(\frac{w_2}{h}\right) / \left[\pi \gamma \left(\frac{w_1}{\pi h}\right)\right]$  and  $\Lambda = L_2/L_1$ .

Photographs showing typical flows of slugs against long rectangular obstacles (c) and in asymmetric loops (d). Defined are the velocity  $v_i$  of the slugs produced in the  $i$ -th gap ( $i = 1$  or  $2$ ) after breakup, their size  $L_d^i$ , and the distance  $\lambda_i$  between them.

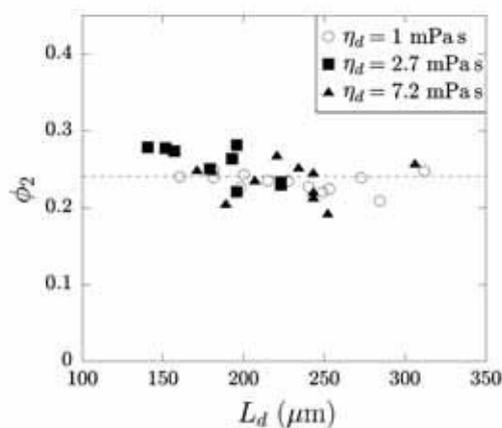
We work within the limits of long obstacles ( $\lambda \ll L_d$ ) since, for this flow configuration, one may assume that the temporal fluctuations of the total flow rates in each gap of an obstacle can be neglected; this will help to rationalize our results in section 4.2. As we wish to study the volumes of daughter slugs after breakup, we work with large enough capillary numbers so that all of the slugs of a train break when meeting an obstacle. In this case, experiments show that whenever the front edge of a slug meets the obstacle, two fluid–fluid interfaces invade



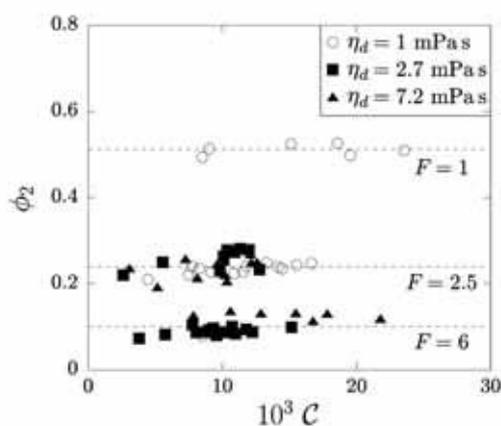
**Fig. 8** Evolution of  $\phi_2$  with  $C$  for a fixed slug size and geometry ( $L_d = 230 \pm 30 \mu\text{m}$  and  $F = 2.5$ ) and different water–glucose mixtures in hexadecane, i.e., different values of  $\eta_d$ .

both gaps, propagating in the gap ( $i$ ) at a speed  $v_i$  [see Fig. 7(c–d)]. The rear edge of this slug collides with the obstacle at a time  $t_f$  defined in the section 3.2.2. At  $t_f$ , the slug breaks into two daughter slugs (size  $L_d^i = v_i t_f$ ) that flow in the two gaps (see Fig. 7 defining  $L_d^1$  and  $L_d^2$ ). The time between two successive breakup events being  $\tau = \frac{1}{f} = \frac{\lambda}{v}$ , the distance between the front edges of two consecutive slugs flowing in gap ( $i$ ) is  $\lambda_i = v_i \tau$ . In what follows, we study the volume fraction  $\phi_2$  as a function of  $C$ ,  $L_d$ ,  $\eta_d$ ,  $F$ , and  $\Lambda$ .

We begin by investigating the breakup dynamics in rectangular geometries ( $\Lambda = 1$  and  $F > 1$ ). For a given fluid–fluid system and size of the slug, our experiments show that  $\phi_2$  does not depend on  $C$  (Fig. 8). Furthermore, Fig. 8 shows that  $\phi_2$



**Fig. 9** Variations of  $\phi_2$  with  $L_d$  for three different values of  $\eta_d$ . The parameter controlling the asymmetry is  $F = 2.5$ .

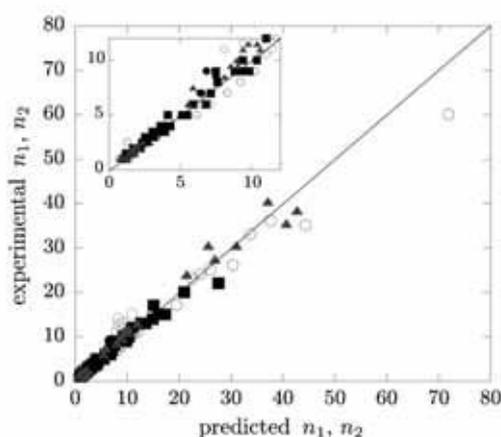


**Fig. 10** Evolution of  $\phi_2$  as a function of  $C$  for different values of  $F$  and  $\eta_d$  as indicated in the figure.

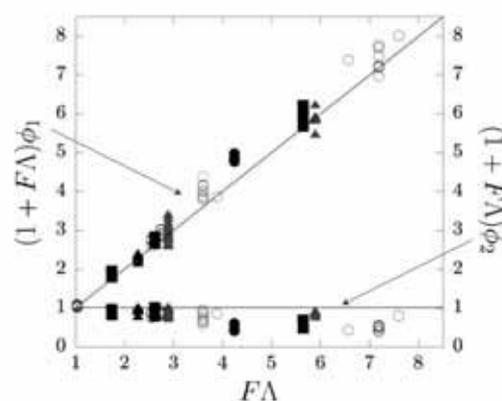
is independent of the viscosity contrast for the range of studied capillary numbers.

For a given geometry and capillary number, we report in Fig. 9 the variations of  $\phi_2$  with the slug size  $L_d$ . For three different values of  $\eta_d$ , experiments show that  $\phi_2$  remains constant when  $L_d$  is varied and roughly equal to the quarter of the volume of the initial slug.

By contrast, the response is sensitive to the asymmetry as  $\phi_2$  roughly decreases from 0.5 to 0.1 when  $F$  is varied between 1 and 6 (Fig. 10).



**Fig. 11** A comparison between the experimental and predicted average numbers of slugs  $n_i$  obtained in the gap ( $i$ ) after breakup. Inset: magnification at a small number of slugs. The shapes of the symbols correspond to different liquid-liquid systems and values of  $\eta_d$ : water-glucose mixtures in hexadecane with ( $\circ$ )  $\eta_d = 1$  mPa s, ( $\blacksquare$ )  $\eta_d = 2.7$  mPa s, and ( $\blacktriangle$ )  $\eta_d = 7.2$  mPa s, and water in a viscous silicone oil ( $\square$ )  $\eta_d = 1$  mPa s. Colors stand for experiments either carried out using long obstacles (black) or asymmetric loops (grey).



**Fig. 12** A comparison between experiments and theoretical predictions of the volume fraction  $\phi_1$  (left  $y$ -axis) and  $\phi_2$  (right  $y$ -axis) of the slugs produced after breakup. The shape of the symbols and their colors are identical to those of Fig. 11.

To summarize, the volume fraction  $\phi_i$  does not depend on hydrodynamic parameters and physicochemical properties and is a decreasing function of the asymmetry of the obstacle. These results contrast with our findings for isolated drops discussed in section 3.3. In the next section, we will develop a phenomenological model based on a mean-field approximation to rationalize our experiments. We will show that this model concurs well with experimental results obtained both for rectangular obstacles and asymmetric loops (Fig. 11 and 12).

#### 4.2 Interpretation: a mean-field approach

We have investigated the flow of periodic trains made of monodisperse slugs for which  $\lambda \ll L_i$  working with large enough capillary numbers so that all slugs of a train successively break when meeting the obstacle. It is interesting to note that the sole occurrence of breakup regimes without retraction, although not intuitive for loops, could have been expected for long obstacles, since the minimum capillary number to break a slug varies as  $1/L$  for an isolated slug flowing against a rectangular micro-obstacle.<sup>23</sup> Furthermore, when  $\lambda \ll L_i$ , the number of daughter slugs present in both gaps is very large [see Fig. 7(c-d)]. We therefore assume that the temporal fluctuations of the pressure drops resulting from the entrance and exit of a slug in the gaps are very small compared to the mean values of the pressure drops and can be neglected. The validity of this mean-field approximation will be discussed in details in section 4.3.

Within this mean-field approach, the total flow rates in each gap are constant over time. Consequently, all two-fluid interfaces present in the  $i$ -th gap ( $i = 1$  or  $2$ ) move at the same constant velocity  $v_i$ . The size of a daughter slug flowing through the gap ( $i$ ) and the distance between slugs are respectively  $L'_d = v_i t_f$  and  $\lambda_i = v_i \tau$ , as defined in the previous section. When  $\lambda \ll L_i$ , an estimate of the pressure drop in the gap ( $i$ ) is  $\Delta p \approx f_i [\eta_c L_i + n_i L'_d (\eta_s - \eta_c)] \frac{v_i}{h^2}$  with  $n_i = L_i / \lambda_i$  the

number of slugs present in this gap and  $f_i = f(\frac{w_i}{h})$ . The volume conservation of the "mother" slug reads  $w_1 L_d^1 + w_2 L_d^2 = w L_d^{\text{eff}}$ . Using this equation, the definitions  $L_d^i$  and  $\lambda_i$ , and the equality of the pressure drops over the two gaps, one easily finds:

$$\frac{L_d^1}{L_d^{\text{eff}}} = \frac{\lambda_1}{\lambda} \simeq \frac{w F \Lambda}{w_1 (1 + F \Lambda)}, \quad (5)$$

and

$$\frac{L_d^2}{L_d^{\text{eff}}} = \frac{\lambda_2}{\lambda} \simeq \frac{w}{w_2 (1 + F \Lambda)}. \quad (6)$$

Since the volume and number of the daughter slugs flowing through the gap ( $i$ ) are respectively  $\Omega_i = h w L_d^i$  and  $n_i = L_d^i / \lambda_i$ , using  $\Omega = h w L_d^{\text{eff}}$ , one predicts:

$$\phi_1 \simeq \frac{F \Lambda}{1 + F \Lambda}, \quad (7)$$

$$\phi_2 \simeq \frac{1}{1 + F \Lambda}, \quad (8)$$

$$n_1 \simeq \frac{L_1 w_1 (1 + F \Lambda)}{\lambda w F \Lambda}, \quad (9)$$

and

$$n_2 \simeq \frac{L_2 w_2 (1 + F \Lambda)}{\lambda w}. \quad (10)$$

Consequently, this simple model established within the limit  $\lambda \ll L_i$  predicts that the volume fraction and number of daughter slugs solely depend on the parameters characterizing the asymmetry of an obstacle or a loop. In other words, these physical quantities are independent of the physicochemical and hydrodynamic parameters of the problem. Our experiments presented in section 4.1 concur well with these results. More quantitatively, when  $\Lambda = 1$  and  $F = 2.5$ , the predicted volume fraction of the daughter slug in the narrow gap is  $\phi_2 \simeq 0.28$ , which correlates with experiments (Fig. 8 and 9). These results drastically differ from the breakup dynamics against short rectangular obstacles and underlines the importance of the condition  $\lambda \ll L_i$  for geometry-mediated breakups. Within this limit, it is interesting to note that the volume ratio  $\frac{\Omega_2}{\Omega_1}$  of two daughter slugs reads  $\frac{1}{F \Lambda}$ . For asymmetric loops, it corresponds to the ratio of the hydrodynamic resistances of the two arms only filled with continuous phase. Since both arms are filled with a large number of slugs, this result ( $\frac{\Omega_2}{\Omega_1} \propto \frac{1}{\Lambda}$ ) may seem counter-intuitive, although it was inferred based on experimental results in ref. 13. Our simple model provides theoretical grounds for this intriguing result.

To further validate our theoretical predictions, we work with asymmetric loops and we compare theoretical predictions for the number and volume fractions of the produced daughter slugs for both geometries.

As shown in Fig. 11, the model describes the number of daughter slugs present in both gaps of an obstacle or in the arms of a loop well. Also, when comparing experimental and predicted volume fractions  $\phi_1$  and  $\phi_2$ , the mean-field model well captures experiments (Fig. 12).

### 4.3 Validity of the mean-field approach

We now discuss the conditions for the validity of our mean-field approach. Our first assumption requires that  $n_i \gg 1$  with  $i = 1$  or 2. Using eqn (9) and (10), this condition can be expressed as:

$$\lambda \ll \min(\lambda_c^{(1)}, \lambda_c^{(2)}) \quad (11)$$

with  $\lambda_c^{(1)} = L_1 \frac{w_1 (1 + F \Lambda)}{w F \Lambda}$  and  $\lambda_c^{(2)} = L_2 \frac{w_2 (1 + F \Lambda)}{w}$ .

The mean-field approximation also requires the temporal fluctuations of the pressure drop  $\Delta p(t)$  caused by the entrance, exit, and motion of the slugs in both gaps to be negligible compared to its mean value. Following the description of the motion of slugs in channels having a constant cross-section given in section 3.2.1, the pressure drop can be written  $\Delta p(t) = \frac{f_i v_i}{h^2} [\eta_c L_i + (\eta_s - \eta_c) L_i^s(t)] + \epsilon_i(t) \frac{2\gamma}{w_i} \left(1 + \frac{w_i}{h}\right)$ . In this expression,  $L_i^s(t)$  is the total length occupied at  $t$  by the slugs in the gap ( $i$ ), and  $\epsilon_i(t)$  can take three possible values, 1, 0, or  $-1$  depending on whether at  $t$ , the difference between the number of front and rear edges of slugs present in this gap is 1, 0, or  $-1$ . Since  $L_i$  is generally not commensurate with  $\lambda_i$ , one can write  $L_i^s(t) = N_i L_d^i + \ell(t)$  where  $N_i = \text{floor}\left(\frac{L_i}{\lambda_i}\right)$  and  $\ell(t)$  is a length smaller than  $L_d^i$ .  $N_i$  represents the minimum number of slugs that can entirely fit in the gap ( $i$ ), and  $\ell(t)$  corresponds to the excess length due to the partial entrance and exit of slugs through this gap at time  $t$ . When  $\lambda_i \ll L_i$ ,  $N_i \simeq \frac{L_i}{\lambda_i}$ , and using eqn (5) and (6), the pressure drop can be written  $\Delta p(t) \simeq \frac{f_i v_i \eta_c L_i}{h^2} \left[ \left(1 + \Delta \eta \frac{L_d^{\text{eff}}}{\lambda}\right) + \Delta \eta \frac{\ell(t)}{L_i} + \epsilon_i(t) \frac{2\gamma}{C v_i} Z_i \left(1 + \frac{w_i}{h}\right) \right]$  with  $Z_i = [f h^{-2} w L_i]^{-1}$ .

Neglecting the temporal fluctuations of the pressure drop compared to its mean value therefore requires the two following conditions to be satisfied for  $i = 1$  and 2:

$$(a) |\Delta \eta| \frac{L_d^i}{L_i} \ll 1 + \Delta \eta \frac{L_d^{\text{eff}}}{\lambda}$$

$$(b) \frac{2\gamma}{C v_i} Z_i \left(1 + \frac{w_i}{h}\right) \ll 1 + \Delta \eta \frac{L_d^{\text{eff}}}{\lambda}.$$

The condition (a) is satisfied when the resistive length added by one slug to the gap ( $i$ ) is negligible compared to the effective resistive length of this gap. The condition (b) is fulfilled when the pressure drop accounting for the curved interfaces in the gap ( $i$ ) can be neglected compared to the pressure drop resulting from the flow of slugs and continuous phase over this gap. We will next show that these two conditions, which depend on whether  $\Delta \eta \geq 0$  or  $\Delta \eta < 0$ , imply restrictions on  $\lambda$  and  $C$ .

For  $\Delta \eta \geq 0$ , the condition (a) is fulfilled whenever eqn (11) is satisfied. Using eqn (5), eqn (6), and  $\frac{v}{v_i} = \frac{\lambda}{\lambda_i}$ , one easily finds that the condition (b) reads:

$$C \gg \min(C_c^+, \frac{1 + \frac{w_2}{h}}{1 + \frac{w_1}{h}} C_c^+) \quad (12)$$

$$\text{with } C_c^+ = 2 \frac{w_1}{w} Z_1 \left( 1 + \frac{w_1}{h} \right) \frac{1 + F\Lambda}{F\Lambda} \frac{1}{1 + \Delta\eta \frac{L_d^{\text{eff}}}{\lambda}}$$

It is interesting to note that the expression of  $C_c^+$  can be simplified within the two following limits:

$$\begin{aligned} \bullet \lambda \gg \Delta\eta L_d^{\text{eff}}, C_c^+ &\approx 2 \frac{w_1}{w} Z_1 \left( 1 + \frac{w_1}{h} \right) \frac{1 + F\Lambda}{F\Lambda}, \\ \bullet \lambda \ll \Delta\eta L_d^{\text{eff}}, C_c^+ &\approx 2 \frac{w_1}{w} Z_1 \left( 1 + \frac{w_1}{h} \right) \frac{1 + F\Lambda}{F\Lambda} \frac{\lambda}{\Delta\eta L_d^{\text{eff}}}. \end{aligned}$$

To summarize, when  $\Delta\eta \geq 0$ , the mean-field approximation is valid whenever  $\lambda$  and  $C$  satisfy both eqn (11) and (12). Note that when  $\Delta\eta = 0$ , only eqn (12) has to be fulfilled.

For  $\Delta\eta < 0$ , the condition (a) becomes  $-\Delta\eta \frac{L_d}{L_i} \ll 1 + \Delta\eta \frac{L_d^{\text{eff}}}{\lambda} C$ . Using eqn (5) and (6), and writing  $\frac{L_d}{L_i}$  as  $\frac{L_d^{\text{eff}}}{L_i} \frac{L_i}{L_d}$ , one shows that  $\frac{L_d}{L_i} = \frac{L_d^{\text{eff}}}{L_i^{(i)}}$ . Since  $\lambda \ll \lambda_c^{(i)}$  [see eqn (11)], the condition (a) is fulfilled only when

$$\lambda \gg -\Delta\eta L_d^{\text{eff}}. \quad (13)$$

Using eqn (13), it is straightforward to show that the condition (b) can be written as (14)  $C \gg \min(C_c^-, \frac{1 + \frac{w_2}{h}}{1 + \frac{w_1}{h}} C_c^-)$  with  $C_c^- = 2 \frac{w_1}{w} Z_1 \left( 1 + \frac{w_1}{h} \right) \frac{1 + F\Lambda}{F\Lambda}$ .

To summarize the case  $\Delta\eta < 0$ , the validity of our mean-field approximation requires that  $\lambda$  and  $C$  satisfy eqn (11), eqn (13), and eqn (14).

Note that for the long rectangular obstacles ( $F > 1$  and  $\Lambda = 1$ ) and loops ( $F = 1$  and  $\Lambda > 1$ ) studied here, the conditions for the capillary number given in eqn (12) and (14) respectively read:

$$C \gg 2 \frac{w_1}{w} Z_1 \left( 1 + \frac{w_1}{h} \right) \frac{1 + F\Lambda}{F\Lambda} \frac{1}{1 + \Delta\eta \frac{L_d^{\text{eff}}}{\lambda}} \quad (15)$$

and

$$C \gg 2 \frac{w_1}{w} Z_1 \left( 1 + \frac{w_1}{h} \right) \frac{1 + F\Lambda}{F\Lambda} \quad (16)$$

## 5 Conclusion

Investigating the fragmentation of isolated slugs (large drops and bubbles) against rectangular obstacles, we have shown the existence of a critical capillary number needed to break a slug; this result concurs with a previous study.<sup>23</sup> Above this critical capillary number, a slug breaks into two daughter slugs that

flow through both sides of the obstacle. A thorough study of their respective volumes has shown a complex dependance on the numerous parameters of the problem, the volume and velocity of the initial slug, the viscosity contrast between the dispersed and continuous phases, the surface tension, and the geometrical features of the obstacle. We show that a theoretical framework initially introduced in ref. 23 describes the experimental findings well.

Working within the limit of very long obstacles compared to the distance between slugs allows for slug-to-slug interactions. We show that such interactions drastically change the flow behavior and the breakup dynamics. Indeed for this flow configuration, the ratio of the volume of the daughter slugs over the volume of the initial slug is independent of the hydrodynamic parameters and physicochemical properties and solely depends on the geometrical features of the device. Inspired by recent works on droplet traffic at microfluidic junctions,<sup>35,36</sup> we introduce a mean-field approximation and build on the modeling of the breakup dynamics for isolated slugs to rationalize experiments in the presence of slug-to-slug interactions. The resulting model describes well, both qualitatively and quantitatively, our experimental findings. The predictions of this model for the ratio of the volumes of the two daughter slugs also provide theoretical grounds for an unexplained result reported in the pioneering work on geometry-mediated breakups in microfluidic devices.<sup>13</sup> The conditions of validity of the mean-field approach, *i.e.*, the range of applied capillary numbers and distance between slugs, are also discussed. These results provide an insightful description of geometrically-mediated breakups of drops and bubbles in confined environments and could be useful for engineering bidisperse emulsions and foams.<sup>8</sup>

## References

- 1 M. Joanicot and A. Ajdari, *Science*, 2005, **309**, 887–888.
- 2 R. B. Fair, *Microfluid. Nanofluid.*, 2007, **3**, 245–281.
- 3 S.-Y. Teh, R. Lin, L.-H. Hung and A. P. Lee, *Lab Chip*, 2008, **8**, 198–220.
- 4 N. Lorber, F. Sarrazin, P. Guillot, P. Panizza, A. Colin, B. Pavageau, C. Hany, P. Maestro, S. Marre, T. Delclos, C. Aymonier, P. Subra, L. Prat, C. Gourdon and E. Mignard, *Lab Chip*, 2011, **11**, 779–787.
- 5 W. Engl, R. Backov and P. Panizza, *Curr. Opin. Colloid Interface Sci.*, 2008, **13**, 206–216.
- 6 S. Okushima, T. Nisisako, T. Torii and T. Higushi, *Langmuir*, 2004, **20**, 9905–9908.
- 7 L. Y. Chu, A. S. Utada, R. K. Shah, J.-W. Kim and D. A. Weitz, *Angew. Chem., Int. Ed.*, 2007, **46**, 8970–8974.
- 8 P. Panizza, W. Engl, C. Hany and R. Backov, *Colloids Surf., A*, 2008, **312**, 24–31.
- 9 R. F. Shepherd, J. C. Conrad, S. K. Rhodes, D. R. Link, M. Marquez, D. A. Weitz and J. A. Lewis, *Langmuir*, 2006, **22**, 8618–8622.
- 10 Z. Nie, W. Li, M. Seo, S. Xu and E. Kumacheva, *J. Am. Chem. Soc.*, 2006, **128**, 9408–9412.

- 11 Y. Hennequin, N. Pannacci, C. P. de Torres, G. Tetradis-Meris, S. Chapuliot, E. Bouchaud and P. Tabeling, *Langmuir*, 2009, **25**, 7857–7861.
- 12 J. W. Kim, A. S. Utada, A. Fernández-Nieves, Z. Hu and D. A. Weitz, *Angew. Chem., Int. Ed.*, 2007, **46**, 1819–1822.
- 13 D. R. Link, S. L. Anna, D. A. Weitz and H. A. Stone, *Phys. Rev. Lett.*, 2004, **92**, 054503.
- 14 M. De Menech, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2006, **73**, 031505.
- 15 A. M. Leshansky and L. M. Pismen, *Phys. Fluids*, 2009, **21**, 023303.
- 16 A. M. Leshansky, S. Afkhami, M.-C. Jullien and P. Tabeling, *Phys. Rev. Lett.*, 2012, **108**, 264502.
- 17 M.-C. Jullien, M.-J. Tsng Mui Ching, C. Cohen, L. Menetrier and P. Tabeling, *Phys. Fluids*, 2009, **21**, 072001.
- 18 T. Fu, Y. Ma, D. Funfschilling and H. Z. Li, *Chem. Eng. Sci.*, 2011, **66**, 4184–4195.
- 19 Y. Wu, T. Fu, C. Zhu, Y. Lu, Y. Ma and H. Z. Li, *Microfluid. Nanofluid.*, 2012, **13**, 723–733.
- 20 L. Ménétrier-Deremble and P. Tabeling, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2006, **74**, 035303R.
- 21 M. Yamada, S. Doi, H. Maenaka, M. Yasuda and M. Seki, *J. Colloid Interface Sci.*, 2008, **321**, 401–407.
- 22 S. Protière, M. Z. Bazant, D. A. Weitz and H. A. Stone, *Europhys. Lett.*, 2010, **92**, 54002.
- 23 L. Salkin, L. Courbin and P. Panizza, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2012, **86**, 036317.
- 24 D. R. Link, E. Grasland-Mongrain, A. Duri, F. Sarrazin, Z. Cheng, G. Cristobal, M. Marquez and D. A. Weitz, *Angew. Chem., Int. Ed.*, 2006, **45**, 2556–2560.
- 25 T. Cubaud, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2009, **80**, 026307.
- 26 M. T. Guo, A. Rotem, J. A. Heyman and D. A. Weitz, *Lab Chip*, 2012, **12**, 2146–2155.
- 27 A. C. Hatch, J. S. Fisher, A. R. Tovar, A. T. Hsieh, R. Lin, S. L. Pentoney, D. L. Yang and A. P. Lee, *Lab Chip*, 2011, **11**, 3838–3845.
- 28 J. Clause-Tormos, A. D. Griffiths and C. A. Merten, *Lab Chip*, 2010, **10**, 1302–1307.
- 29 A. R. Abate and D. A. Weitz, *Lab Chip*, 2011, **11**, 1911–1915.
- 30 F. Jousse, R. Farr, D. R. Link, M. J. Fuerstman and P. Garstecki, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2006, **74**, 036311.
- 31 M. Schindler and A. Ajdari, *Phys. Rev. Lett.*, 2008, **100**, 044501.
- 32 M. Belloul, W. Engl, A. Colin, P. Panizza and A. Ajdari, *Phys. Rev. Lett.*, 2009, **102**, 194502.
- 33 O. Cybulski and P. Garstecki, *Lab Chip*, 2010, **10**, 484–493.
- 34 R. Jeanneret, J. P. Vest and D. Bartolo, *Phys. Rev. Lett.*, 2012, **108**, 034501.
- 35 D. A. Sessoms, A. Amon, L. Courbin and P. Panizza, *Phys. Rev. Lett.*, 2010, **105**, 154501.
- 36 T. Glawdel, C. Elbuken and C. L. Ren, *Lab Chip*, 2011, **11**, 3774–3784.
- 37 J. C. McDonald, D. C. Duffy, J. R. Anderson, D. T. Chiu, H. Wu, O. J. A. Schueller and G. M. Whitesides, *Electrophoresis*, 2000, **21**, 27–40.
- 38 S. L. Anna, N. Bontoux and H. A. Stone, *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **82**, 364–366.
- 39 H. Bruus, *Theoretical Microfluidics*, Oxford University Press, 2008.
- 40 Note that if  $\ell$  is not commensurate with  $\lambda$ , the contributions of the rear and front edges usually do not cancel out. Their contribution to the pressure drop can however be neglected as soon as the capillary number becomes sufficiently large. See section 4.3 for a detailed discussion of this point.
- 41 D. A. Sessoms, M. Belloul, W. Engl, M. Roche, L. Courbin and P. Panizza, *Phys. Rev. E: Stat., Nonlinear, Soft Matter Phys.*, 2009, **80**, 016317.
- 42 V. Labrot, M. Schindler, P. Guillot, A. Colin and M. Joanicot, *Biomicrofluidics*, 2009, **3**, 012804.
- 43 S. A. Vanapalli, A. G. Banpurkar, D. van den Ende, M. H. G. Duits and F. Mugele, *Lab Chip*, 2009, **9**, 982–990.
- 44 H. A. Stone, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 1994, **26**, 65–102.
- 45 A. Vananroye, P. V. Puyvelde and P. Moldenaers, *Langmuir*, 2006, **22**, 3972–3974.
- 46 A. Schmit, L. Salkin, L. Courbin and P. Panizza, unpublished.

Publication C [111]

**Path selection rules for droplet trains in single-lane microfluidic networks**

A. Amon, A. Schmit, L. Salkin, L. Courbin, and P. Panizza\*

*IPR, CNRS, UMR No. 6251, Campus Beaulieu, Université Rennes 1, 35042 Rennes, France*

(Received 29 March 2013; published 18 July 2013)

We investigate the transport of periodic trains of droplets through microfluidic networks having one inlet, one outlet, and nodes consisting of T junctions. Variations of the dilution of the trains, i.e., the distance between drops, reveal the existence of various hydrodynamic regimes characterized by the number of preferential paths taken by the drops. As the dilution increases, this number continuously decreases until only one path remains explored. Building on a continuous approach used to treat droplet traffic through a single asymmetric loop, we determine selection rules for the paths taken by the drops and we predict the variations of the fraction of droplets taking these paths with the parameters at play including the dilution. Our results show that as dilution decreases, the paths are selected according to the ascending order of their hydrodynamic resistance in the absence of droplets. The dynamics of these systems controlled by time-delayed feedback is complex: We observe a succession of periodic regimes separated by a wealth of bifurcations as the dilution is varied. In contrast to droplet traffic in single asymmetric loops, the dynamical behavior in networks of loops is sensitive to initial conditions because of extra degrees of freedom.

DOI: 10.1103/PhysRevE.88.013012

PACS number(s): 47.60.Dx, 47.55.D-, 47.20.Ky

**I. INTRODUCTION**

A laminar, steady, and Newtonian flow in a rigid pipe is described by the Hagen-Poiseuille equation, which states  $\Delta P = RQ$ , with  $Q$  the volumetric flow rate,  $\Delta P$  the pressure drop between the pipe's inlet and outlet, and  $R$  a constant having units  $\text{Pa s m}^{-3}$  whose value solely depends on the fluid viscosity and the geometry of the pipe [1]. Because of the analogy between this equation and the classical Ohm's law for the analysis of electric circuits, relationships analogous to Kirchhoff's laws for the electrical current and voltage drop can be written for  $Q$  and  $\Delta P$ , respectively [1–3]. Hence, obeying the combination rules of resistors,  $R$  is known in the literature as the hydrodynamic resistance of the pipe [4].

Now considering a fluidic network made of numerous interconnected branches, the determination of the flow rates in each branch can be difficult. For monophasic Newtonian flows, this problem has a unique solution easily derived using the analogy between fluidic networks and electric circuits mentioned above. For two-phase flows, however, e.g., flows in (droplet-based) digital microfluidic applications [5,6], strong nonlinearities arise and the problem becomes challenging. Indeed, the transport of discrete elements or information through networks, such as droplet traffic in single-lane microchannels having lateral dimensions comparable to the drop size, road traffic [7], blood microcirculation [8], and cell signaling [9], are all regulated by time-delayed feedback and nonlinear couplings. When reaching a node, a droplet generally flows in the channel having the largest instantaneous volumetric flow rate [10,11]. Since the hydrodynamic resistance of a channel depends on the presence of flowing drops [12], the path selection of a drop at a node is monitored by the entrance and exit of the preceding drops in all the branches of the network. Even in the simple case of two bifurcating channels, the traffic of drops or bubbles can be amazingly complex and yields a rich variety of dynamics including periodic and multistable

traffic patterns [11,13–16]. However, so far investigations have mostly focused on trains of bubbles or droplets flowing through a single loop [11,13–22], while a few have dealt with more complex geometries [23,24].

Here we investigate droplet traffic in complex single-lane networks to determine whether the approaches and simple rules employed to rationalize experimental findings for a single loop are still valid. The paper is organized as follows. In Sec. II we briefly present the phenomena observed when studying droplet traffic in the most studied configuration, an asymmetric loop [10,11,13–18], and we give the basic elements used in the continuous [10,11,15–18] and the discrete [13,14] models that rationalize observations. In addition, we provide complete derivations of the analytical results obtained using discrete models [13]. In Sec. III, building on these theoretical grounds, we study droplet traffic through networks having one inlet and one outlet that can be connected using more than two different ways: The nodes of the networks are T junctions. We model the flow and validate the resulting predictions with microfluidic experiments.

**II. TRAFFIC THROUGH A SINGLE-LANE ASYMMETRIC LOOP****A. Background**

The basic elements necessary to describe the transport of droplets in single-lane microfluidic conducts having lateral dimensions of the order of the drop size and through an asymmetric loop are the following [10,11,13–18,25].

(a) The hydrodynamic resistance  $R$  of a pipe of length  $L$  and constant cross section  $S$  varies linearly with the number  $N$  of drops it contains,  $R = \alpha(L + NL_d)$ . In this expression,  $\alpha$  has units  $\text{Pa s m}^{-4}$  and is a function of the viscosity of the continuous phase and of the geometry of the channel cross section [1] and  $L_d$  is a parameter having the dimension of a length that corresponds to the effective resistive length each droplet adds to the pipe in terms of hydrodynamic resistance.

\*pascal.panizza@univ-rennes1.fr

(b) The velocity  $V$  of droplets flowing in such a pipe varies as  $V = \beta \frac{Q}{S}$ , where  $Q$  is the total flow rate and  $\beta$  is a dimensionless number characterizing the mobility of the drops in the pipe.

(c) At a T junction, a droplet always flows in the pipe having the larger total flow rate.

The validity of the expressions for  $R$  and  $V$  in points (a) and (b) has been demonstrated by both millifluidic and microfluidic experiments in channels having circular and rectangular cross sections, respectively [10,12,18]. Such equations can be derived using a phenomenological model considering that the droplets are sufficiently far apart so that they do not interact hydrodynamically [12]. The value of  $L_d$  depends on the geometry of the cross section, the viscosity ratio between dispersed and continuous phases, and the droplet confinement  $\rho$  defined as the ratio between the drop size and the lateral dimension of the channel [12]. The modeling of the flow described above is valid for confinements typically varying in the range 0.7–1 for which  $L_d$  increases with  $\rho$ . For smaller  $\rho$ , the hydrodynamic resistance appears to be nearly independent of the presence of droplets,  $L_d \simeq 0$ . For larger values of  $\rho$ , nonlinearities may arise because of capillary effects [11]. The mobility  $\beta$  is a decreasing function of  $\rho$  that varies between 2 and 1 for circular cross sections;  $\beta$  can be either larger or smaller than 1 in the case of rectangular cross sections [12,26] because of corner flows that exist only in this geometry. The path selection rule at a node given in point (c) has a limited range of validity since experiments have shown that collisions between successive drops can occur at a node and regulate traffic when droplets are close enough [21,25]. In what follows, we consider only situations for which the distance  $\lambda$  between drops reaching a junction is sufficiently large to prevent such collisions from occurring.

So far, most studies have considered one-dimensional (1D) trains of monodisperse droplets produced at a constant rate  $f$  and flowing through a single asymmetric loop (Fig. 1). The reason for considering periodic 1D trains is threefold. First, their production is easy using robust geometry-based methods such as T junctions [27,28] or flow focusing devices [29]. Second, most digital microfluidic high-throughput applications in chemistry [30], biotechnology [31,32], and material sciences [33] require one to index the drops and/or to use a space-to-time conversion, two characteristics that are inherent to 1D trains. Finally, the use of such trains makes the modeling easier. We consider that both arms of the loop

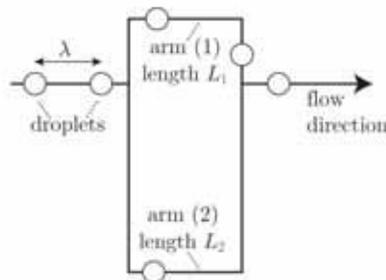


FIG. 1. Schematic of the flow model for a single-lane asymmetric loop defining  $\lambda$ ,  $L_1$ , and  $L_2 > L_1$ .

have the same constant cross section  $S$  but different lengths  $L_1$  and  $L_2 > L_1$  (Fig. 1). The other parameters at play are  $\beta$ ,  $L_d$ , and  $\lambda$ , the velocity of the droplets being  $V = \lambda f$ . More details on microfluidic and millifluidic setups able to monitor independently  $L_d$ ,  $f$ , and  $\lambda$  can be found in [10,12]. Note, however, that  $L_d$  and  $\beta$ , which depend on the droplet confinement, can never be set independently.

The problem can be addressed numerically using a simple algorithm [11,12,17,20,34]. At each time step  $\tau = \frac{1}{f}$  a droplet whose physical volume is neglected reaches the inlet node of the loop. One computes the numbers of droplets  $N_i$  present in each arm ( $i = 1$  or 2) and the hydrodynamic resistance of this arm  $R_i$ . The drop at the inlet node is then injected in the arm having the smaller hydrodynamic resistance. Afterwards,  $N_i$  and  $R_i$  are updated. In each arm ( $i$ ), the velocity of the drops  $V_i$  is computed using the conservation of the total flow rate and the relationships describing the transport of droplets in a pipe of constant cross section. The droplets present in each arm ( $i$ ) are then moved until  $N_i$  changes, i.e., until the exit of a drop or the entrance of a new drop. Whenever a droplet exits the system, the values of  $N_i$ ,  $R_i$ , and  $V_i$  are updated so that the displacements of all droplets are reevaluated. For a given set of parameters  $(L_d, L_1, L_2)$ , when  $\lambda$  is varied, experimental and numerical findings share the following features.

(i) At high dilutions, all droplets flow in the shorter arm. For smaller  $\lambda$ , partitioning of the drops between both arms is observed. The transition between these two regimes, respectively known as the filter and repartition regimes, occurs at  $\lambda = \lambda_f$  (see Fig. 2). In the latter regime, periodic patterns of droplets partitioning are obtained.

(ii) When droplets take both paths at the junction, the total flow rates  $Q_1$  and  $Q_2$  in the arms, hence  $V_1$  and  $V_2$ , fluctuate in time around equal mean values.

(iii) In the repartition regime, at a given  $\lambda$ , a periodic pattern is characterized by three invariants that are independent of the initial conditions, i.e., the number and the positions of the droplets initially present in the loop: the cycle time  $T_{\text{cyc}}$  of the pattern (i.e., the number of drops per cycle), the fraction of drops  $F_2$  flowing in the longer arm, and the number of “packs”

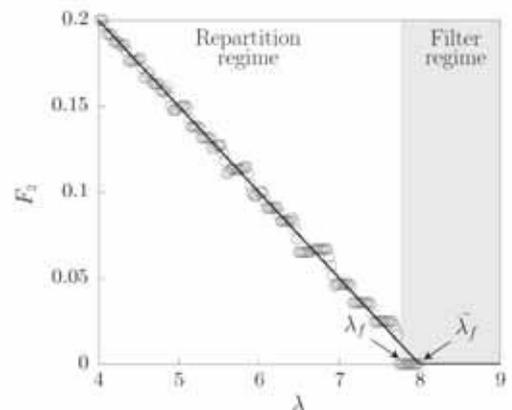


FIG. 2. Numerical fraction of droplets  $F_2$  versus  $\lambda$  for  $L_1 = 100$ ,  $L_2 = 150$ , and  $L_d = 2$ . The lengths have arbitrary units. The solid line is a prediction calculated using Eq. (1a).

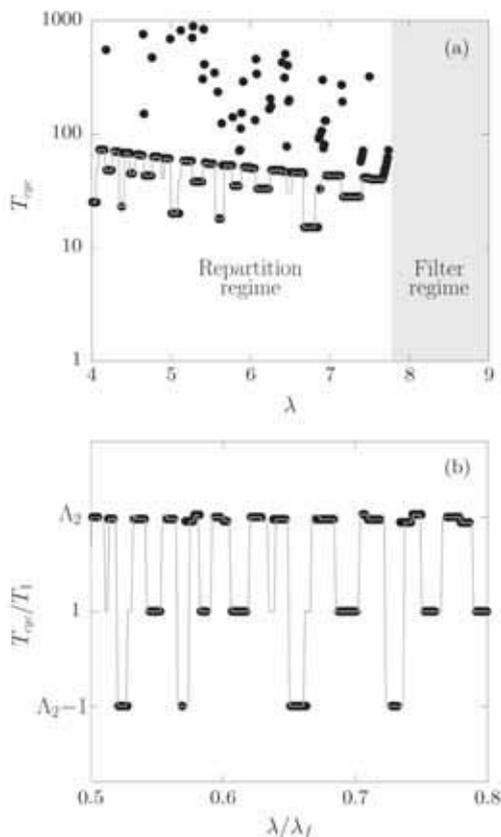


FIG. 3. (a) Shown is  $T_{cyc}$  versus  $\lambda$  for  $L_1 = 100$ ,  $L_2 = 150$ , and  $L_d = 2$ . The lengths have arbitrary units. The solid line is calculated using the discrete model. Closed circles stand for numerical results. (b) Bifurcation diagrams of  $T_{cyc}/T_1$  as a function of  $\lambda/\lambda_f$  shown in the range  $\lambda/\lambda_f = 0.5$ – $0.8$ .

$N_{pack}$  per cycle; a pack is the number of drops flowing in the shorter arm between two successive drops taking the longer arm.

(iv) When plotted versus  $\lambda$ , each invariant presents series of plateaus separated by discontinuous transitions (see Fig. 3 through Fig. 5).

The results presented in Figs. 2–5 are outcomes of numerical simulations and predictions of the continuous and discrete models that are discussed in details in Secs. II B and II C, respectively.

### B. Continuous model

To rationalize some of these findings and derive analytical expressions for  $F_2$  and  $\lambda_f$ , one can use a continuous approach [12]. This description neglects the temporal fluctuations of the number of drops present in each arm and postulates, in the repartition regime, the equality of the total flow rates in both arms [10,12,14,16]. Hence the rate  $f_i$  of the passing drops in the arm ( $i$ ) and the distance  $\lambda_i$  between two successive drops are assumed to be constant. In the repartition regime, using the conservations of the total flow rate and dispersed phase and writing the two relationships given in Sec. II A [points (a) and

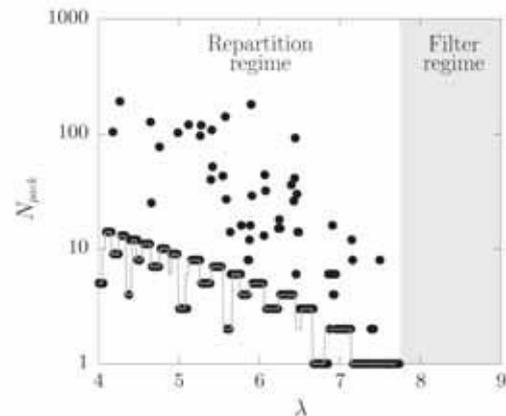


FIG. 4. Shown is  $N_{pack}$  versus  $\lambda$  for  $L_1 = 100$ ,  $L_2 = 150$ , and  $L_d = 2$ . The lengths have arbitrary units. The solid line is calculated using the discrete model. Closed circles stand for numerical results.

(b)] for each arm, one obtains an analytically solvable system of four equations satisfied by  $\lambda_i$  and  $f_i$  (see [12] for details). With the resulting expressions for  $\lambda_i$  and  $f_i$ , one finds that  $F_2 = \frac{L_2}{L_1}$  linearly decreases with  $\lambda$ :

$$F_2 = \frac{1}{\Lambda_2 + 1} \left( 1 - \lambda \frac{\Lambda_2 - 1}{2L_d} \right), \quad (1a)$$

where  $\Lambda_2 = \frac{L_2}{L_1}$ . Hence  $F_2(\lambda = \tilde{\lambda}_f) = 0$  gives

$$\tilde{\lambda}_f = \frac{2L_d}{\Lambda_2 - 1}. \quad (1b)$$

This prediction for the transition between filter and repartition regimes correlates with numerical results ( $\tilde{\lambda}_f \sim \lambda_f$  in Fig. 2). Expressions for the mean number of droplets ( $N_i = L_i/\lambda_i$  in each arm ( $i$ )) can also be found.

The fluctuations of  $R_i$ , which are due to the exit and entrance of droplets in the loop, remain small compared to the resistances' mean values when working with long enough

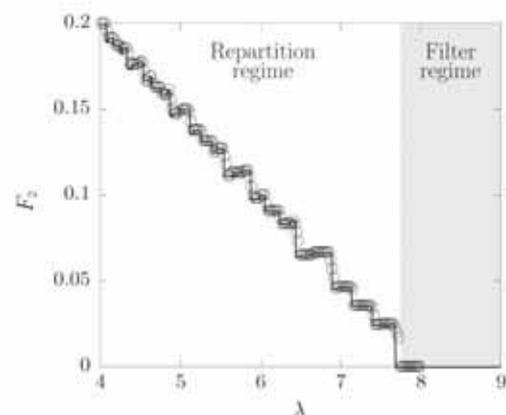


FIG. 5. Shown is  $F_2$  versus  $\lambda$  for  $L_1 = 100$ ,  $L_2 = 150$ , and  $L_d = 2$ . The lengths have arbitrary units. Numerical results (circles) are compared with the prediction of the discrete model (solid line), calculated using  $F_2 = N_{pack}/T_{cyc}$ .

arms. In that case, the model concurs well with numerical results as shown in Fig. 2 [12,14,16]. However, the model does not explain the plateaus observed numerically in the variations of  $F_2$  with  $\lambda$  (see Fig. 2). This limitation results from the discrete nature of the drops, which a continuous approach cannot account for. Another limitation of this approach resides in the impossibility of describing the dynamics of the system.

### C. Discrete model

#### 1. Introduction

To account for the discrete nature of the droplets, one can introduce an approximation for  $V_i$ , making the problem tractable and allowing for a complete theoretical description of the dynamics [13,14]. This approach neglects the temporal fluctuations of the hydrodynamic resistance of the arm ( $i$ ),  $R_i = \alpha(L_i + L_d N_i)$ . One assumes that the temporal variation of  $N_i$  does not significantly affect  $V_i$ . This mean-field approach is reasonable when the mean number of drops present in each arm is large or when the lengths of both arms are large compared to  $L_d$ . As shown in Sec. II C2, neglecting the nonlinear couplings between  $N_i$  and  $Q_i$ , one can demonstrate that  $Q_i$  is nearly constant and equal to one-half of the incoming total flow rate in the repartition regime so that  $V_i \sim V/2$  [13,14].

The time is discretized in  $\tau$  units within this ideal model. Each time step, a new droplet reaches the inlet node of the loop and is injected in one of its arm. At any time step, the positions of the drops present in each arm are multiple of  $\frac{\lambda}{2}$ , the origin of space being located at the inlet node. Because of the finite number of possible configurations and the deterministic nature of the model, only periodic patterns are expected. A drop located in the arm ( $i$ ) at a position  $k\frac{\lambda}{2}$  from the origin ( $k \in \mathbb{N}$ ) has therefore reached the inlet node and selected this arm a time  $k$  earlier in  $\tau$  units. Since the droplets make a binary "choice" at the inlet, if a droplet is located at  $k\frac{\lambda}{2}$  from the origin in the arm (2), a "hole" (that is, the absence of a droplet) is necessarily located at the same distance from the origin in the arm (1) and vice versa. Hence the maximum number of droplets that can be accommodated in each arm is  $T_i = \text{ceil}(\frac{2L_i}{\lambda})$ . Using the space-to-time conversion,  $T_i$ , which corresponds to the number of drops that have reached the inlet node between the entrance and exit of a given drop in the arm ( $i$ ), is the discrete time in  $\tau$  units elapsed between these two events. In what follows,  $\tau$  is the unit of time (i.e.,  $\tau = 1$ ) and we use the superscripts  $-$  and  $+$  to respectively denote the functions evaluated just before or after injecting a new drop in the loop. The values of  $N_1$  and  $N_2$  just before and after the entrance of the  $n$ th droplet in the loop respectively read

$$\begin{aligned} N_1^-(n) &= \sum_{k=n-T_1+1}^{n-1} H[\delta^-(k)], \\ N_2^-(n) &= \sum_{k=n-T_2+1}^{n-1} H[-\delta^-(k)] \\ &= T_2 - 1 - \sum_{k=n-T_2+1}^{n-1} H[\delta^-(k)] \end{aligned}$$

and

$$\begin{aligned} N_1^+(n) &= \sum_{k=n-T_1+1}^n H[\delta^-(k)], \\ N_2^+(n) &= \sum_{k=n-T_2+1}^n H[-\delta^-(k)] \\ &= T_2 - \sum_{k=n-T_2+1}^n H[\delta^-(k)]. \end{aligned}$$

In these expressions,  $\delta(t) = \frac{L_2 - L_1}{L_d} + N_2(t) - N_1(t)$  is the normalized difference between the hydrodynamic resistances of the two arms and  $H$  is the Heaviside function. We next replace  $N_i^+$  by  $N_i$  for readability.

Using the previous relationships, one can derive two equations. A balance on  $N_1$  and  $N_2$  over  $\tau$  between the entrances of the  $n$ th drop and the  $(n+1)$ th one gives the first equation, that is, a recursive relationship

$$\begin{aligned} \delta^-(n+1) &= \delta^-(n) - 2H[\delta^-(n)] + H[\delta^-(n+1-T_1)] \\ &\quad + H[\delta^-(n+1-T_2)]. \end{aligned} \quad (2)$$

During  $\tau$ ,  $H[\delta^-(n+1-T_1)]$  and  $1 - H[\delta^-(n+1-T_2)]$  drops respectively exit the loop via arms (1) and (2), whereas  $H[\delta^-(n)]$  and  $1 - H[\delta^-(n)]$  drops enter these two respective arms. Initial conditions over a time interval are necessary to integrate the recursive relationship and to describe the dynamics of the system; this feature is common to any time-delayed system. In our study, the positions of the drops initially present in the loop define such initial conditions. We next consider that the loop does not initially contain any drop.

Using the expression of the number of holes in the arm (1),  $N_1^H(n) = T_1 - N_1(n) = \sum_{k=n-T_1+1}^n H[-\delta^-(k)]$ , it is possible to show that

$$\begin{aligned} \sum_{j=1}^{T_1} N_2(j) &= \sum_{j=1}^{T_1} \sum_{k=j-T_2+1}^j H[-\delta^-(k)] \\ &= \sum_{j=1}^{T_2} \sum_{k=j-T_2+1}^{j+T_1-T_2} H[-\delta^-(k)] \\ &= \sum_{j=1}^{T_1} N_1^H(j+T_1-T_2) \\ &= \sum_{j=1+T_1-T_2}^{T_1} N_1^H(j). \end{aligned}$$

It is worthwhile noticing that this relationship is valid for any  $n$  and can be written in the following form:

$$\sum_{j=1-T_1+T_2}^{T_2} N_2(j+n) = \sum_{j=1}^{T_2} N_1^H(j+n). \quad (3)$$

#### 2. Repartition regime: The flow rate's equipartition rule

In the repartition regime, as observed in both numerical simulations and experiments [10,12,14,16], the system naturally tends to balance the hydrodynamic resistances of both arms. As shown below, a stability analysis permits

us to understand this phenomenon. When  $\delta^-(n) > 0$ , one easily shows using Eq. (2) that  $\delta^-(n+1) = \delta^-(n) - 2 + H[\delta^-(n+1-T_1)] + H[\delta^-(n+1-T_2)]$ . Hence  $\delta^-(n) - 2 \leq \delta^-(n+1) \leq \delta^-(n)$ , so that  $\delta^-$  either decreases or remains constant. Conversely, when  $\delta^-(n) < 0$ , one shows that  $\delta^-(n+1) = \delta^-(n) + H[\delta^-(n+1-T_1)] + H[\delta^-(n+1-T_2)]$ . Thus  $\delta^-(n) \leq \delta^-(n+1) \leq \delta^-(n) + 2$ , i.e.,  $\delta^-$  increases or remains constant.

We now aim to show that  $\delta^+$  can take only two values after a transient regime. Distinguishing the values taken by  $\delta$  before and after the entrance of the  $n$ th droplet in the loop, respectively denoted  $\delta^-(n)$  and  $\delta^+(n)$ , we use the following relations characterizing (a) the entrance of a new drop in the loop and (b) the exits of drops from the loop.

(a)  $\delta^+(n) = \delta^-(n) - 1$  when  $\delta^-(n) > 0$  and  $\delta^+(n) = \delta^-(n) + 1$  when  $\delta^-(n) < 0$ .

(b)  $\delta^-(n+1) = \delta^+(n)$  when none of the drops exit or two drops exit, each one passing through each arm (such cases are possible since the residence times of the drops in the loop are different);  $\delta^-(n+1) = \delta^+(n) + 1$  if a drop exits via the arm (1); and  $\delta^-(n+1) = \delta^+(n) - 1$  if a drop exits via the arm (2).

After a transient regime,  $\delta^-(n+1) = \delta^-(n)$  for all  $n$  only if all drops exit the loop by taking either the short arm while  $\delta^-(n) > 0$  or the long arm while  $\delta^-(n) < 0$ . The first case implies that the hydrodynamic resistance of the short arm filled with drops is always smaller than that of the long arm: This is the filter regime. The latter situation cannot be encountered since it requires the number of drops in the long arm to be larger than that of the short arm. Hence, in the repartition regime,  $\delta^-(n+1) < \delta^-(n)$  when  $\delta^-(n) > 0$  and  $\delta^-(n+1) > \delta^-(n)$  when  $\delta^-(n) < 0$ . For any initial conditions, after a transient regime in which  $\delta^-$  evolves monotonically, its sign changes when  $\delta^-$  reaches either  $\epsilon$  or  $\epsilon - 1$  with  $\epsilon = \frac{L_2 - L_1}{L_d} - \text{floor}(\frac{L_2 - L_1}{L_d})$ ; with  $N_i$  being integers,  $\epsilon$  or  $\epsilon - 1$ , which have opposite signs, are the two closest values to 0 that  $\delta^-$  can possibly reach. After the transient regime, one can verify that  $\delta^+$  necessarily fluctuates between these two values. A strict balance between the hydrodynamic resistances of the two arms is unfeasible because of the discrete nature of the drops. As a result,  $N_1 - N_2$  is a function of time that can take only two values:  $F = \text{floor}(\frac{L_2 - L_1}{L_d})$  or  $C = \text{ceil}(\frac{L_2 - L_1}{L_d})$ . In our study, we do not consider the case for which  $\frac{L_2 - L_1}{L_d}$  is an integer as it is irrelevant experimentally. Since  $\frac{R_1(t)}{R_2(t)} = \frac{Q_1(t)}{Q_2(t)} = 1 + \delta(t)/(N_1 + \frac{L_1}{L_d})$  and  $|\delta(t)| < 1$ , within the limit  $N_1 \rightarrow \infty$  or  $L_1 \rightarrow \infty$ , our analysis implies that

$$\frac{Q_1(t)}{Q_2(t)} \rightarrow 1.$$

Hence, within one of the above limits, an equipartition of the flow rates  $Q_1$  and  $Q_2$  occurs in steady state as observed numerically and experimentally [12,13].

### 3. Repartition regime: Stationary solutions

Here we aim to determine the existence of stationary solutions for which the numbers of droplets in both arms remain constant over time. Mathematically, such solutions correspond to  $N_i^+(n+1) = N_i^+(n)$  for any integer  $n$ . Using the expressions of  $N_i^+(n)$  given in Sec. II C 1, it is straightforward to show that  $H[\delta^-(n+1)] = H[\delta^-(n-T_i+1)]$ .

Hence, when  $N_i$  is constant over time,  $\delta$  is a  $T_i$ -periodic function. Conversely, a  $T_i$ -periodic system implies a constant  $N_i$ . Both  $N_1$  and  $N_2$  being constant over time, the system is simultaneously  $T_1$  and  $T_2$  periodic. Therefore,  $T_1$  and  $T_2$  are multiples of the system's period. Furthermore, since in this case  $H[\delta^-(n+1)] = H[\delta^-(n-T_1+1)] = H[\delta^-(n-T_2+1)]$ , the system is also  $T_2 - T_1$  periodic. Such a situation is possible only when  $T_1$  and  $T_2$  are multiples of  $T_2 - T_1$ .

Stationary solutions exist, but are witnessed only for specific conditions over the parameters of the problem. Since  $N_1 - N_2$  is constant over time, it is therefore equal to either  $F$  or  $C$ . Using Eq. (3) one can then write

$$\sum_{j=1}^{T_1} N_2(j) = \sum_{j=1+T_1-T_2}^{T_1} N_1^H(j) \quad \text{so that} \quad T_1 N_2 = T_2 N_1^H.$$

Using previously established relations, one finds

$$T_1 N_2 = T_2 [T_1 - F - N_2] \quad \text{or} \quad T_1 N_2 = T_2 [T_1 - C - N_2].$$

Consequently,

$$N_2 = \frac{T_2}{T_1 + T_2} [T_1 - F] \quad \text{or} \quad N_2 = \frac{T_2}{T_1 + T_2} [T_1 - C]. \quad (4)$$

To summarize, a stationary regime occurs whenever either  $\frac{T_2}{T_1+T_2} [T_1 - F]$  or  $\frac{T_2}{T_1+T_2} [T_1 - C]$  is an integer. When such a condition is fulfilled, all the quantities remain constant over time and can easily be expressed using the relationships derived above.

### 4. Repartition regime: Nonstationary solutions

Usually  $N_1$  and  $N_2$  evolve over time. However, after a transient regime, numerical simulations show that at least one of these quantities is constant. Since  $N_1 - N_2$  explores only two consecutive values, so does the sum  $N_1 + N_2$ . We assume that  $N_1 + N_2$  and  $N_1 - N_2$  respectively equal  $S$  or  $S + 1$  and  $F$  or  $F + 1$ , where  $S$  is an integer and  $F = \text{floor}(\frac{L_2 - L_1}{L_d})$ . Writing the integers  $N_1$  and  $N_2$  as  $N_1 = \frac{N_1 + N_2}{2} + \frac{N_1 - N_2}{2}$  and  $N_2 = \frac{N_1 + N_2}{2} - \frac{N_1 - N_2}{2}$ , one shows the following.

(i) When  $S$  and  $F$  have the same parities,  $N_1$  fluctuates between  $\frac{S+F}{2}$  and  $\frac{S+F}{2} + 1$  while  $N_2 = \frac{S-F}{2}$  remains constant over time.

(ii) When  $F$  and  $S$  have different parities,  $N_1 = \frac{S+F+1}{2}$  remains constant over time and  $N_2$  fluctuates between  $\frac{S-F+1}{2}$  and  $\frac{S-F-1}{2}$ .

To summarize, for nonstationary regimes, the number of drops in one of the two arms is independent of time, the other number fluctuating over time between two consecutive values. With  $N_i$  being constant over time, the dynamics of the system are  $T_i$  periodic. We have shown that after an initial transient state, periodic dynamics are always obtained, the period being either  $T_1$ ,  $T_2$ , or  $T_2 - T_1$ .

### 5. Repartition regime: Selection of the cycle time

Here we derive the selection rules that determine the values taken by one of the invariants of the system, the cycle time  $T_{\text{cyc}}$  of the binary series. We begin by considering a  $T_2$ -periodic regime for which  $N_2 = \frac{S-F}{2}$  is constant. Using

$\sum_{j=1}^{T_2} N_1^H(j) = T_1 N_2$  established in Sec. II C3, one finds

$$t \left( T_1 - \frac{S+F}{2} \right) + (T_2 - t) \left( T_1 - \frac{S+F}{2} - 1 \right) = T_1 N_2,$$

where  $N_1 = \frac{S+F}{2}$  during a cumulative time  $t$  and  $N_1 = \frac{S+F}{2} + 1$  during  $T_2 - t$ . Hence  $t = (T_1 + T_2) \frac{S+F}{2} - T_2(T_1 - F - 1)$  with  $0 \leq t \leq T_2$ ; stationary solutions are obtained when  $t = 0$  or  $T_2$ , both  $N_2$  and  $N_1$  remaining constant over time in those cases. The inequality yields

$$0 \leq \frac{T_2}{T_1 + T_2} (T_1 - F) - N_2 \leq \frac{T_2}{T_1 + T_2} < 1.$$

With  $N_2$  being an integer, the occurrence of a  $T_2$ -periodic solution therefore requires the fractional part of  $\frac{T_2}{T_1 + T_2} (T_1 - F)$  to be smaller than  $\frac{T_2}{T_1 + T_2}$ . Then  $N_2$  reads

$$N_2 = \text{floor} \left( \frac{T_2}{T_1 + T_2} (T_1 - F) \right).$$

Following a similar approach for  $T_1$ -periodic regimes in which  $N_1 = \frac{S+F+1}{2}$  remains constant over time, one finds

$$0 \leq \frac{T_1}{T_1 + T_2} (T_1 - F) - (T_1 - N_1) \leq \frac{T_1}{T_1 + T_2} < 1.$$

A  $T_1$ -periodic solution can therefore be obtained when the fractional part of  $\frac{T_1}{T_1 + T_2} (T_1 - F)$  is smaller than  $\frac{T_1}{T_1 + T_2}$ . The number of holes in the arm (1),  $N_1^H = T_1 - N_1$ , which is constant over time, is then given by

$$N_1^H = \text{floor} \left( \frac{T_1}{T_1 + T_2} (T_1 - F) \right).$$

As shown below, the two conditions required for the respective occurrence of  $T_1$ -periodic and  $T_2$ -periodic regimes are incompatible. By noting  $p = \frac{T_1}{T_1 + T_2}$  and  $q = \frac{T_2}{T_1 + T_2}$ , any integer  $M$  can be written as  $M = pM + qM$  since  $p + q = 1$ . With  $I_p$  and  $\epsilon_p$  denoting the integer and fractional parts of  $pM$ , the integer and fractional parts of  $qM$  being  $I_q$  and  $\epsilon_q$ , one obtains  $M = I_p + \epsilon_p + I_q + \epsilon_q$ .

Two different cases can then be distinguished. When  $\epsilon_p$  and  $\epsilon_q$  are both different from zero,  $\epsilon_p + \epsilon_q = 1 = p + q$ . It is then straightforward to derive that  $q < \epsilon_q < 1$  when  $0 < \epsilon_p < p$  and  $p < \epsilon_p < 1$  when  $0 < \epsilon_q < q$ . Note that when  $\epsilon_p = p$  and  $\epsilon_q = q$ , both  $p(M - 1)$  and  $q(M - 1)$  are integers. The latter situation corresponds to the condition on  $q(T_1 - C)$  given Eq. (4) required for a  $(T_2 - T_1)$ -periodic regime. When  $\epsilon_p$  (or  $\epsilon_q$ ) is equal to zero, then  $\epsilon_q$  (or  $\epsilon_p$ ) is also equal to zero. This particular case corresponds to the other condition on  $q(T_1 - F)$  for the occurrence of a  $(T_2 - T_1)$ -periodic regime [see Eq. (4)].

#### 6. Repartition regime: Selection of the number of packs

As previously discussed, for a given set of parameters  $(L_d, L_1, L_2, \lambda)$ , numerical simulations show that  $N_{\text{pack}}$  is an invariant of the problem being independent of initial conditions. For  $T_1$ -periodic regimes, the number of holes in the arm (1) is constant. Since  $T_1$  is the residence time of a drop or a hole in the arm (1),  $N_{\text{pack}}$  is given by

$$N_1^H = \text{floor} \left( \frac{T_1}{T_1 + T_2} (T_1 - F) \right).$$

Similarly, for  $T_2$ -periodic regimes,  $N_{\text{pack}}$  is given by the constant value of

$$N_2 = \text{floor} \left( \frac{T_2}{T_1 + T_2} (T_1 - F) \right).$$

For  $(T_2 - T_1)$ -periodic regimes, the period is shorter than  $T_1$  and  $T_2$ , the residence times in the short and long arms, respectively. Using the space-to-time conversion, the emerging cyclic pattern is observed over a portion of the arm (2) having a length  $(T_2 - T_1) \frac{\lambda}{2}$ . The number of drops in this portion is  $N_2 - N_1^H$ , both being constant in time. Then  $N_{\text{pack}}$  is given by either  $\frac{T_2 - T_1}{T_2 + T_1} (T_1 - F)$  or  $\frac{T_2 - T_1}{T_2 + T_1} (T_1 - C)$ .

#### 7. Selection rules

We summarize below the rules established in previous sections that govern the dynamics of the system. Four cases are identified depending on  $x = \frac{T_2}{T_1 + T_2} (T_1 - F)$ .

(i) When  $x$  is an integer,

$$T_{\text{cyc}} = T_2 - T_1, \quad N_{\text{pack}} = \frac{T_2 - T_1}{T_2 + T_1} (T_1 - F);$$

(ii) when the fractional part of  $x$  is strictly bounded by 0 and  $\frac{T_2}{T_2 + T_1}$ ,

$$T_{\text{cyc}} = T_2, \quad N_{\text{pack}} = \text{floor} \left( \frac{T_2}{T_1 + T_2} (T_1 - F) \right);$$

(iii) when the fractional part of  $x$  is equal to  $\frac{T_1}{T_2 + T_1}$ ,

$$T_{\text{cyc}} = T_2 - T_1, \quad N_{\text{pack}} = \frac{T_2 - T_1}{T_2 + T_1} (T_1 - C);$$

(iv) when the fractional part of  $x$  is strictly bounded by  $\frac{T_2}{T_2 + T_1}$  and 1,

$$T_{\text{cyc}} = T_1, \quad N_{\text{pack}} = \text{floor} \left( \frac{T_1}{T_1 + T_2} (T_1 - F) \right).$$

The invariants are indeed independent of the number and positions of the drops initially present in the loop and solely depend on  $L_d, L_1, L_2$ , and  $\lambda$ . As shown in Figs. 3 and 4, these theoretical predictions for the evolutions of  $T_{\text{cyc}}$  and  $N_{\text{pack}}$  concur well with numerical simulations. They predict the occurrence of the various plateaus obtained numerically and the numerous bifurcations between these plateaus as  $\lambda$  varies [13]. Between two successive plateaus, we note the emergence of singular periodic regimes with very long cycle times. These regimes, which are not predicted by our model, exist only for very narrow ranges of  $\lambda$ , narrower than the experimental stochastic noise of  $\lambda$ , and are not observable experimentally [13].

Using these predictions, one may also derive analytical expressions for the third invariant of the system,  $F_2 = \frac{N_{\text{pack}}}{T_{\text{cyc}}}$ , the fraction of droplets flowing through the long arm. When comparing predictions of the continuous (Fig. 2) and discrete (see Fig. 5) models, the numerical results are better described by the latter model.

A simple criterion permits one to predict the values of  $\lambda$  for which a bifurcation between different periodical regimes may occur [13]. As  $\lambda$  varies, one expects a change of dynamical behavior whenever the integers  $T_1$  or  $T_2$  change by 1. This

occurs whenever  $\lambda = \lambda_c(i, k)$  with

$$\frac{2L_i}{\lambda_c(i, k)} = \text{floor}\left(\frac{L_2 - L_1}{L_d}\right) + k, \quad (5)$$

where  $i = 1, 2$  and  $k \in \mathbb{N}^*$ . Although this simple criterion overestimates the number of observed bifurcations [13], it predicts the exact value of  $\lambda = \lambda_f$  at which the transition between filter and repartition regimes occurs:

$$\lambda_f = \frac{2L_1}{\text{floor}\left(\frac{L_2 - L_1}{L_d}\right) + 1}. \quad (6)$$

### 8. Connections between the two models

When  $L_1$ ,  $L_2$ , and  $L_2 - L_1$  are large compared to  $L_d$ , one can write  $F \sim C \sim \frac{L_1(\lambda_2 - 1)}{L_d}$  and  $T_i \sim \frac{2L_i}{\lambda}$ . Within this limit, using Eq. (6) and the selections rules previously established, it is straightforward to show that  $\lambda_f \sim \frac{2L_1}{\lambda_2 - 1}$  and  $F_2 \sim \frac{1}{\lambda_2 + 1} [1 - \lambda \frac{\lambda_2 - 1}{2L_d}]$ . These mathematical expressions for the predictions of  $\lambda_f$  and  $F_2$  are identical to those found using the continuous model [12].

## III. COMPLEX NETWORKS: TWO EMBEDDED LOOPS

### A. Numerical algorithm and steady state results

We now study the flow of a periodic train of droplets in two embedded loops made of four arms of different lengths and two inlet nodes  $A$  and  $B$  (Fig. 6); channels have identical widths and  $L_1 < L_2$ .

Our simulations are based on an algorithm similar to the one used in the study of a single asymmetric loop described in Sec. II. Drops periodically feed the inlet node  $A$  at a rate  $f$ . Whenever a drop reaches either  $A$  or  $B$ , the number of drops  $N_i$  and the hydrodynamic resistance  $R_i$  are computed. The drop located at one of the inlet node is then injected in the branch having the largest flow rate. Afterwards, the values of  $N_i$ ,  $R_i$ , and  $V_i$  are updated and all drops are moved until  $N_i$  changes. The whole network does not contain any drops when simulations begin. After a transient state, several hydrodynamic regimes are observed when  $\lambda$  varies. As shown below, an important parameter is the hydrodynamic resistance of the branch formed by arms (1), (2), and (4). This resistance

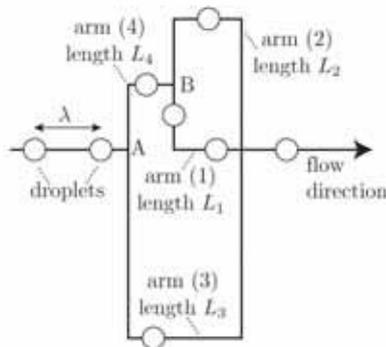


FIG. 6. Schematic of the flow model for two imbedded loops having two inlet nodes  $A$  and  $B$ . Defined are  $\lambda$  and  $L_i$ , with  $i = 1, 2, 3$ , and  $4$ , and  $L_1 < L_2$ .

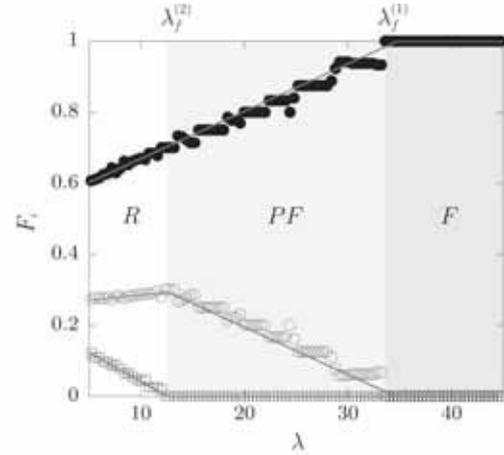


FIG. 7. Variations of  $F_1$  ( $\circ$ ),  $F_2$  ( $\square$ ), and  $F_3$  ( $\bullet$ ) with  $\lambda$ . The parameters expressed in arbitrary units are  $L_1 = L_3 = 100$ ,  $L_2 = 125$ ,  $L_4 = 60$ , and  $L_d = 2.7$  ( $L_{\text{eq}} > L_3$ ). The solid lines are predictions calculated using the continuous model (see Sec. III B). R, PF, and F respectively denote the repartition, partial filter, and the filter regimes.

is identical to that of a single arm having a length  $L_{\text{eq}} = L_4 + L_1 L_2 / (L_1 + L_2)$ . For a given  $\lambda$ , the observed regime depends on whether  $L_{\text{eq}} > L_3$ .

When  $L_{\text{eq}} > L_3$ , we observe the following sequence of regimes when  $\lambda$  decreases (see Fig. 7): In  $\lambda > \lambda_f^{(1)}$ , all droplets flow through the arm (3); in  $\lambda_f^{(1)} > \lambda > \lambda_f^{(2)}$ , drops explore both arms (3) and (1); and in  $\lambda_f^{(2)} > \lambda$ , the droplets flow through all the arms. When  $L_{\text{eq}} < L_3$ , we observe the following sequence (Fig. 8): In  $\lambda > \lambda_f^{(1)}$ , all droplets flow through the arm (1); in  $\lambda_f^{(1)} > \lambda > \lambda_f^{(2)}$ , drops only flow in arms (1) and (2); and in  $\lambda_f^{(2)} > \lambda$ , the droplets explore all arms.

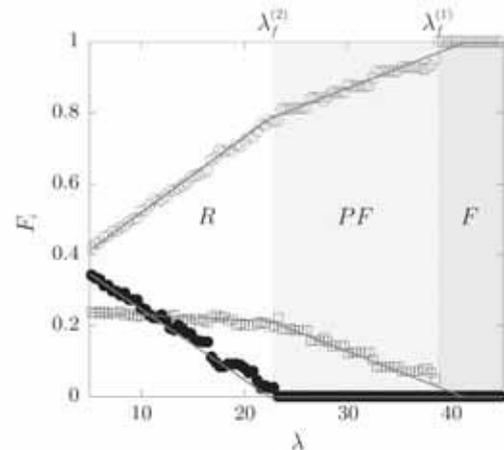


FIG. 8. Variations of  $F_1$  ( $\circ$ ),  $F_2$  ( $\square$ ), and  $F_3$  ( $\bullet$ ) with  $\lambda$ . The parameters expressed in arbitrary units are  $L_1 = L_3 = 100$ ,  $L_2 = 125$ ,  $L_4 = 25$ , and  $L_d = 2.7$  ( $L_{\text{eq}} < L_3$ ). The solid lines are calculated using the continuous model (see Sec. III B).

The critical dilutions  $\lambda_f^{(1)}$  and  $\lambda_f^{(2)}$  separating the three observed hydrodynamic regimes depend on the parameters of the problem  $[L_i, L_d]$ . As shown below, mathematical expressions for these quantities depend on whether or not  $L_{eq} > L_3$ , both cases presenting similar features.

As  $\lambda$  decreases the number of selected paths increases until  $\lambda < \lambda_f^{(2)}$ , a region where all possible paths are explored: This is the repartition regime (denoted R in the figures). When  $\lambda_f^{(1)} < \lambda$ , only one path is taken: This is the filter regime (denoted F) in which all drops flow in the arm having the smallest hydrodynamic resistance in the absence of drops. For intermediate dilutions, that is, for  $\lambda_f^{(2)} < \lambda < \lambda_f^{(1)}$ , the droplets explore only two out of the three possible paths; we refer to this regime as the partial filter regime (denoted PF). As  $\lambda$  decreases, the paths in which drops flow are selected according to the ascending order of their hydrodynamic resistances in the absence of drops.

At any node of the network where the drops divide between two arms, the total flow rates in each of these arms are nearly equal (Figs. 9 and 10). Such features seem inherent to any dynamics of droplet traffic in single-lane microfluidic networks since they can be observed in other complex circuits (results not shown here).

### B. Interpretation using the continuous approach

Our numerical findings can be understood using the continuous approach employed for single asymmetric loops (Sec. II B). Similarly to that case, we define the mean frequency  $f_i$  characterizing the entrance (or exit) of drops in the arm ( $i$ ) and the mean distance  $\lambda_i$  between two consecutive drops in this arm; we use the variable  $X_i = 1/\lambda_i$  for readability.

In the repartition regime, using the equipartition of the total flow rate and the conservation of the dispersed phase at nodes A and B, one derives two equations:  $X_3 + X_4 = 2/\lambda$  and  $X_1 + X_2 = 2X_4$ . Writing the equality of the pressure

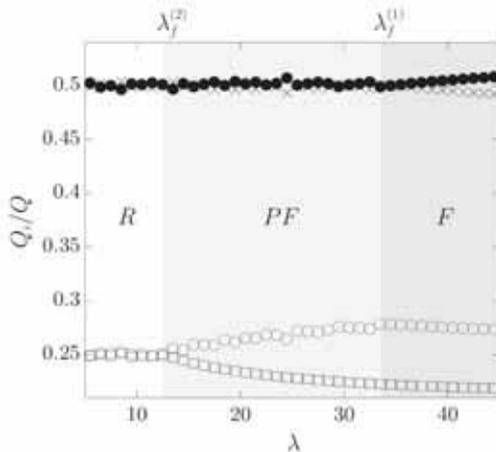


FIG. 9. Variations of  $Q_i/Q$  with  $\lambda$ ,  $Q_i$ , and  $Q$  being the total flow rates in the arm ( $i$ ) and in the whole circuit. The symbols  $\times$ ,  $\bullet$ ,  $\square$ , and  $\circ$  respectively correspond to  $i = 4, 3, 2$ , and  $1$ . The parameters expressed in arbitrary units are  $L_1 = L_3 = 100$ ,  $L_2 = 125$ ,  $L_4 = 60$ , and  $L_d = 2.7$  ( $L_{eq} > L_3$ ).

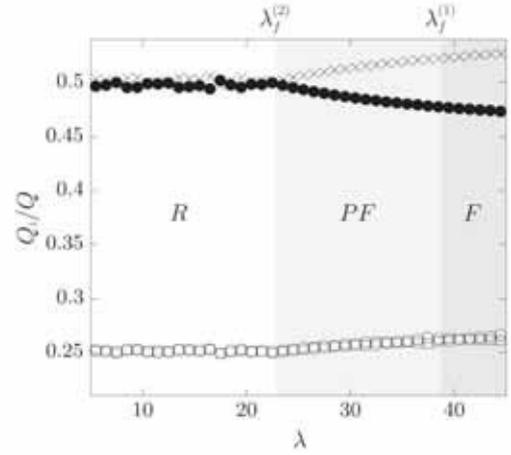


FIG. 10. Variations of  $Q_i/Q$  with  $\lambda$ , where  $Q_i$  and  $Q$  are the total flow rates in the arm ( $i$ ) and in the whole circuit. The symbols  $\times$ ,  $\bullet$ ,  $\square$ , and  $\circ$  respectively correspond to  $i = 4, 3, 2$ , and  $1$ . The parameters expressed in arbitrary units are  $L_1 = L_3 = 100$ ,  $L_2 = 125$ ,  $L_4 = 25$ , and  $L_d = 2.7$  ( $L_{eq} < L_3$ ).

drops between the ends of arms (1) and (2) and between the extremities of the arm (3) and the ends of the branch formed by arms (4) and (1) and using the equipartition of the total flow rate at the two nodes, two other equations can be obtained:  $\Lambda_2(1 + L_d X_2) = 1 + L_d X_1$  and  $\Lambda_3(1 + L_d X_3) = \Lambda_4(1 + L_d X_4) + (1 + L_d X_1)/2$ , where  $\Lambda_i = \frac{L_i}{L_d}$ . By solving this set of four linear equations, one finds the mathematical expression for  $X_i$ . Then analytical expressions for both  $f_i$  and the fractions  $F_i = f_i/f$  of drops flowing in the arm ( $i$ ) are obtained by using the equipartition of the total flow rate at the nodes A and B. One easily finds  $f_4 = X_4 \lambda f/2$ ,  $f_3 = X_3 \lambda f/2$ ,  $f_1 = X_1 \lambda f/4$ , and  $f_2 = X_2 \lambda f/4$ ;  $f_i$  is independent of  $L_{eq}/L_3$ .

The analytical expression for  $F_i$  can also be found in the partial filter regime using the continuous approach. However, these expressions, which we derive next, depend on whether  $L_{eq} > L_3$  or  $L_{eq} < L_3$ , as the two selected paths are different in the two cases.

When  $L_{eq} < L_3$ , for  $\lambda_f^{(1)} > \lambda > \lambda_f^{(2)}$ , all drops flow in either arm (1) or arm (2), i.e.,  $F_3 = 0$ , and all drops reaching node A flow in arm (4) (see Fig. 6). The droplets are therefore fed in the asymmetric loop made of arms (1) and (2) at the rate  $f$ . Then the train of drops reaching node B is also periodic in space, but its period  $\tilde{\lambda}$  is no longer  $\lambda$  since some continuous phase flows in arm (3) at node A. Hence the expressions derived for  $F_2$  and  $F_1 = 1 - F_2$  when drops divide in single asymmetric loops are still valid provided one replaces  $\lambda$  by  $\tilde{\lambda}$  in Eq. (1a). In what follows, we determine the needed relation between  $\tilde{\lambda}$  and  $\lambda$ . The total flow rates at nodes A and B are  $Q = S\lambda f/\beta$  and  $q = S\tilde{\lambda} f/\beta$ , respectively. Using the equipartition rule at node B, the total flow rate in arm (1) is  $q/2$ . Writing the equality of the pressure drops of arm (3) and the serial association of arms (1) and (4) and using the conservation of the total flow rates at node A, one finds

$$\tilde{\lambda} \left( \Lambda_4 + \Lambda_3 + \frac{\Lambda_2}{1 + \Lambda_2} \right) = \Lambda_3 \lambda - L_d \left( \Lambda_4 + \frac{\Lambda_2}{1 + \Lambda_2} \right). \quad (7)$$

When  $L_{eq} > L_3$ ,  $F_2 = 0$  in the partial filter regime, so that all drops flow in either arm (1) or arm (3) and  $f_1 = f_3$  (see Fig. 6). Using the equipartition rule at node  $A$  and the conservation of the total flow rate at node  $B$ , one finds the total flow rates in arms (3) and (4),  $Q/2 = S\lambda f/2\beta = S\lambda_4 f_4/\beta = S\lambda_3 f_3/\beta$ . Also, in arms (1) and (2), the flow rates are  $q = S\lambda_1 f_1/\beta$  and  $Q/2 - q$ , respectively. Using the equality of the pressure drops of arm (1) filled with droplets and arm (2) in the absence of drops, one shows  $\lambda_1 = (\lambda_4 \Lambda_2 - L_d)/(1 + \Lambda_2)$ . By using the equality of the pressure drops of arm (3) and the serial association of arms (1) and (4), the conservation of the total flow rate, as well as the conservation of the dispersed phase at the node  $A$ ,  $F_1$  reads

$$F_1 = \frac{2L_d\Lambda_3 - \lambda[\Lambda_4 - \Lambda_3 + \Lambda_2/(1 + \Lambda_2)]}{2L_d[\Lambda_3 + \Lambda_4 + \Lambda_2/(1 + \Lambda_2)]}. \quad (8)$$

One then easily finds  $F_3 = 1 - F_1$  and  $F_4 = F_1$ . As shown in Figs. 7 and 8, the predictions concur well with numerical results for both  $L_{eq} < L_3$  and  $L_{eq} > L_3$ .

### C. Dynamics: A restricted discrete approach

We now study the dynamical properties of the system. The drops are indexed when entering the network (node  $A$ ) and their successive path selections are coded into series of  $-1, 0$ , and  $1$  when they flow in arms (3), (2), and (1), respectively. Our numerical simulations reveal that in the repartition regime, in contrast to the partial filter regime, the cycle time of the corresponding signals depends on initial conditions, i.e., the number and positions of droplets initially present in the circuit. For the sake of simplicity, in both cases  $L_{eq} < L_3$  and  $L_{eq} > L_3$ , we will discuss results for which no droplets are present in the network when simulations start.

We first study the case  $L_{eq} < L_3$ . Figure 11 shows the variations of the period of the signals describing the successive

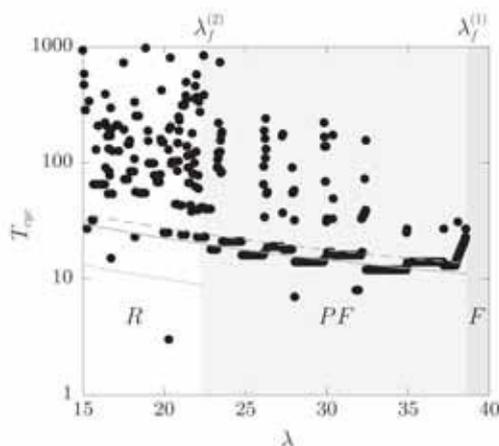


FIG. 11. Variations of  $T_{cyc}$  with  $\lambda$ . The parameters expressed in arbitrary units are  $L_1 = L_3 = 100$ ,  $L_2 = 125$ ,  $L_4 = 25$ , and  $L_d = 2.7$  ( $L_{eq} < L_3$ ). The dotted, dashed, and solid lines correspond to the mean travel times of drops exiting by arms (3), (2), and (1), respectively. These times are computed using the continuous approach.

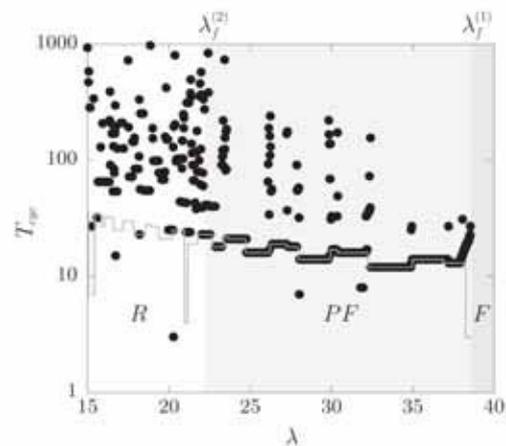


FIG. 12. Shown is  $T_{cyc}$  versus  $\lambda$  for  $L_1 = L_3 = 100$ ,  $L_2 = 125$ ,  $L_4 = 25$ , and  $L_d = 2.7$  expressed in arbitrary units ( $L_{eq} < L_3$ ). The solid line is calculated using the expressions derived with the discrete approach for which  $\lambda$  is replaced by  $\tilde{\lambda}$ .

selected paths with  $\lambda$ . In the partial filter regime, one observes a succession of plateaus where the period is constant, separated by bifurcations. In the narrow regions between two successive plateaus, the period is unusually large, much larger than the different residence times of the drops in the network; such regimes, which are irrelevant to experiments, are also observed in the case of single loops (Sec. II C7). In the partial filter regime, all drops flow in either arm (1) or arm (2). Similarly to our modeling in the previous section, replacing  $\lambda$  by  $\tilde{\lambda}$  and using Eq. (7), we can use the selection rules derived in Sec. II C7. One obtains a relatively good description of the dynamics in this regime (see Fig. 12). The value of  $T_{cyc}$

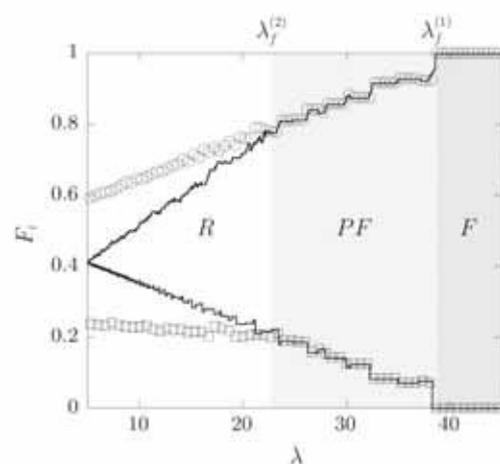


FIG. 13. Variations of  $F_1$  ( $\circ$ ) and  $F_2$  ( $\square$ ) with  $\lambda$  for  $L_1 = L_3 = 100$ ,  $L_2 = 125$ ,  $L_4 = 25$ , and  $L_d = 2.7$  ( $L_{eq} < L_3$ ). The solid lines are calculated using the discrete model in the partial filter regime; these predictions that are extended to the other regimes are established by replacing  $\lambda$  by  $\tilde{\lambda}$ .

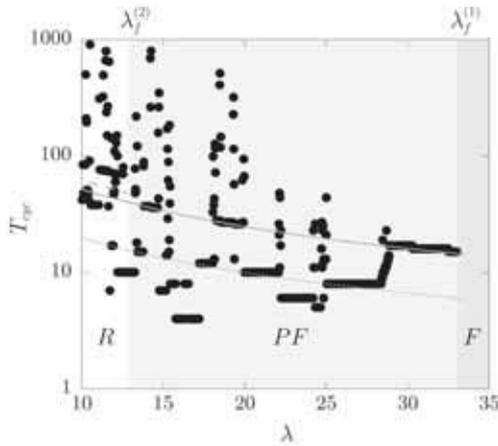


FIG. 14. Shown is  $T_{cyc}$  versus  $\lambda$  for  $L_1 = L_3 = 100$ ,  $L_2 = 125$ ,  $L_4 = 60$ , and  $L_d = 2.7$  ( $L_{eq} > L_3$ ). The dotted, dashed, and solid lines correspond to the mean travel times of drops exiting by arms (3), (2), and (1), respectively. These times are computed using the continuous approach.

for a plateau and the transition between plateaus are well predicted. Since  $F_2 = N_{pack}/T_{cyc}$  in the partial filter regime, this approach also permits one to model the variations of  $F_2$  and  $F_1 = 1 - F_2$  with  $\lambda$  in this regime (Fig. 13). The resulting predictions provide a better description of the fraction of drops than the continuous model (see Fig. 8).

We now investigate the case  $L_{eq} > L_3$ . Figure 14 shows the period of the signals as a function of  $\lambda$ . In both the repartition and partial filter regimes, we also obtain a succession of bifurcations between different plateaus. As observed for single and imbedded loops when  $L_{eq} < L_3$ , irrelevant regimes with unusually long cycle times appear in the narrow regions between successive plateaus. In the partial filter regime, droplets only flow in either arm (1) or arm (3). However, in contrast to the case of a single asymmetric loop, the temporal fluctuations of the number of drops, thus those of the holes, present in the two selected paths, can be larger than one. This

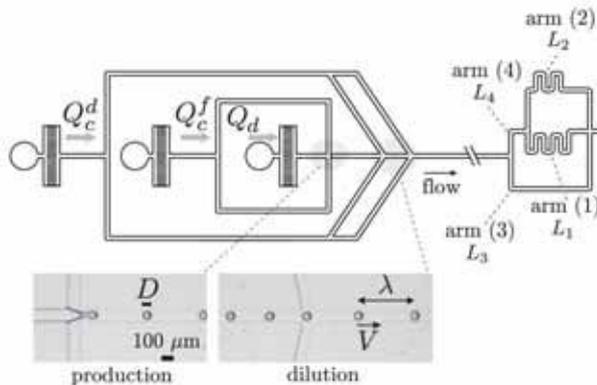


FIG. 15. Schematic of the microfluidic device and photographs defining  $D$ ,  $\lambda$ , and  $V$ .

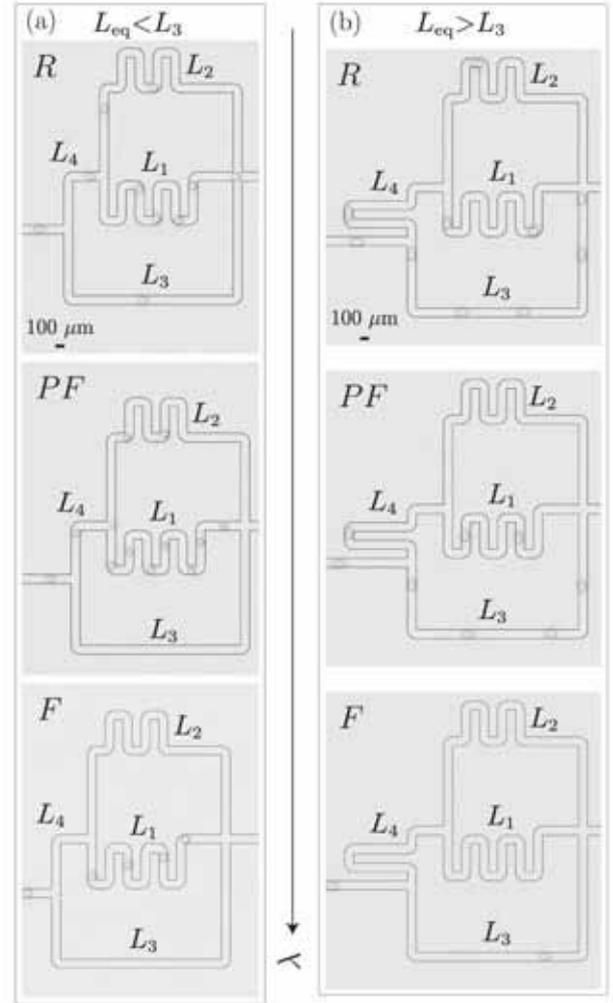


FIG. 16. Images of the three hydrodynamic regimes observed in imbedded loops when varying  $\lambda$  for (a) ( $L_{eq} < L_3$ )  $L_1 = L_3 = 4$  mm,  $L_2 = 5$  mm, and  $L_4 = 1$  mm and (b) ( $L_{eq} > L_3$ )  $L_1 = L_3 = 4$  mm,  $L_2 = 5$  mm, and  $L_4 = 2.6$  mm. The inlet and outlet of the loop are respectively located on the left and on the right of each image.

difference results from the presence of node  $B$ , which provides an extra degree of freedom to this system. The exit and entrance of drops in arm (1) alter the total flow rate in arm (2), which in turn modifies the velocity of the droplets traveling in arms (1) and (4). For this reason, in contrast to the case  $L_{eq} < L_3$ , one cannot employ the discrete approach to find simple selection rules.

#### D. Experiments

To validate our numerical predictions, we carry out experiments with planar microfluidic devices made of polydimethylsiloxane and fabricated using standard soft lithography techniques [35] (see Fig. 15).

A periodic train of monodisperse water-in-oil droplets is produced in a flow focusing geometry [29]. The drop size  $D$

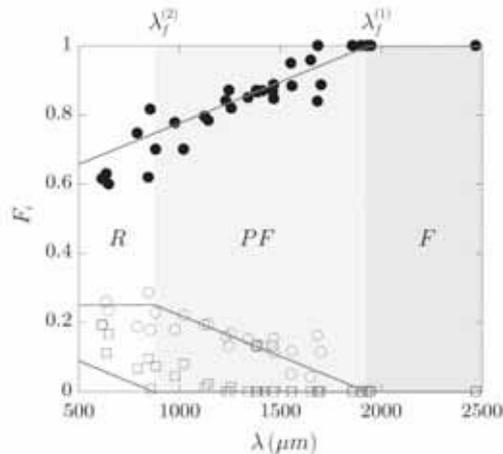


FIG. 17. Experimental variations of  $F_1$  ( $\circ$ ),  $F_2$  ( $\square$ ), and  $F_3$  ( $\bullet$ ) with  $\lambda$  in the configuration shown in Fig. 16(b). The solid lines are calculated using the continuous approach with  $L_d = 165 \mu\text{m}$  in the repartition and partial filter regime.

and the production rate  $f$  are controlled by the flow rates  $Q_c^f$  and  $Q_d$  of the continuous and dispersed phases, respectively (Fig. 15). Additional volumes of the continuous phase can be infused or withdrawn downstream the production module by changing the flow rate  $Q_c^f$  in a dilution module (Fig. 15). Adjustments of  $Q_c^f$  permit one to vary the velocity of the droplets  $V$ , i.e., the dilution  $\lambda = V/f$ , while  $D$  and  $f$  remain constant [25]. The drops are then directed towards the inlet of two imbedded loops (Fig. 15); this network is similar to the one depicted in Fig. 6. The dispersed and continuous phase consist of a mixture of water containing 15 g/L of sodium dodecyl sulfate and hexadecane, respectively. Videos of the flow are recorded with a fast camera (Phantom V7) typically working at 1000 frames/s. Here  $D$ ,  $V$ ,  $\lambda$ , and the trajectory of each drop in the network are obtained from image analysis using a custom-written software developed with MATLAB. In all experiments, the Reynolds and the capillary numbers are very small and span the ranges  $10^{-3}$ – $10^{-1}$  and  $10^{-3}$ – $10^{-2}$ , respectively. For this range of capillary numbers and any values of  $D$ , we do not observe droplet breakup or collision between drops at any T junctions of the circuit [21,25,36–40].

Figure 16 shows the three hydrodynamic regimes found experimentally as  $\lambda$  varies when either  $L_{\text{eq}} < L_3$  or  $L_{\text{eq}} > L_3$ . In both cases, at large dilutions, all drops flow through one arm. As the dilution decreases, the drops explore two and eventually three paths. As shown in Fig. 16, the sequence of selected paths depends on whether  $L_{\text{eq}} < L_3$  or  $L_{\text{eq}} > L_3$ . In each case, the observed sequence concurs with numerical and theoretical findings. As suggested by our simulations, as  $\lambda$  decreases, the paths are selected according to the ascending order of their hydrodynamic resistance in the absence of drops.

We study the variations of the droplet fraction  $F_i$  in each arm ( $i$ ) with  $\lambda$  for  $L_{\text{eq}} > L_3$  and constant values of  $D$  and  $f$ . Comparing the results to predictions calculated using the continuous approach,  $L_d$  being the only free parameter, we obtain relatively good agreement (Fig. 17). This indicates that

the continuous model can describe droplet traffic in complex single-lane networks.

#### IV. CONCLUSION

We have investigated the flow of periodic trains of monodisperse droplets through various single-lane networks. At steady state, when drops divide at a node between two arms, our results show that the mean total flow rates in these arms are nearly equal for any topology of the network. Using this generalized equipartition rule, we have demonstrated that the continuous model approach, introduced to describe traffic through single asymmetric loops [10,12,14,16], can be successfully adapted for more complex single-lane networks. This approach, which neglects the discrete nature of droplets, gives a good description of the steady states provided that the temporal fluctuations of the hydrodynamic resistances of the various arms can be neglected; such fluctuations result from the entrance and exit of drops in these arms. In the case of two imbedded loops, our study reveals the existence of three hydrodynamic regimes as the dilution varies, each regime being characterized by the number of paths explored by the drops. Above a critical dilution, the droplets take only the path that has the smallest hydrodynamic resistance in the absence of drops: This is the filter regime. As the dilution decreases, the number of explored paths increases and eventually the whole network contains droplet in the so-called repartition regime. As the dilution decreases, the paths are selected according to the ascending order of their hydrodynamic resistance in the absence of drops.

The dynamics of droplet traffic in microfluidic networks is controlled by time-delayed feedbacks as a path selection depends on the paths taken by the preceding drops. Complex dynamical behaviors result from such feedbacks, notably long-lasting periodic states separated by a wealth of bifurcations as the dilution varies. In contrast to the case of a single asymmetric loop, the period of the system may strongly depend on initial conditions. This sensitivity to initial conditions is due to extra degrees of freedom, related to the presence in the network of more than one node where the drops select the path to take. In the partial filter regime in which the drops explore only two paths, depending on the topology of the network, we have shown that the discrete approach developed by Sessoms *et al.* [13] in the context of asymmetric loops can successfully describe the dynamics. Such an approach is possible provided downstream the node where the drops divide, no bifurcations exist along the two possible paths.

#### ACKNOWLEDGMENTS

This work was partially funded by an ACOMB grant (*Droplets*) obtained from the Brittany region of France, a PEPS grant from CNRS, and the Université de Bretagne (EPT *Physfood*). We acknowledge fruitful discussions with D. A. Sessoms and we thank J. Bonte and G. Jézéquel for preliminary numerical and experimental studies.

AMON, SCHMIT, SALKIN, COURBIN, AND PANIZZA

PHYSICAL REVIEW E **88**, 013012 (2013)

- [1] H. Bruus, *Theoretical Microfluidics* (Oxford University Press, New York, 2008).
- [2] A. Ajdari, *C. R. Phys.* **5**, 539 (2004).
- [3] K. W. Oh, K. Lee, B. Ahn, and E. P. Furlani, *Lab. Chip* **12**, 515 (2012).
- [4] One can introduce capacitors in the analog electric circuits to account for the deformability of the conducts.
- [5] M. Joanicot and A. Ajdari, *Science* **309**, 887 (2005).
- [6] N. Lorber, F. Sarrazin, P. Guillot, P. Panizza, A. Colin, B. Pavageau, C. Hany, P. Maestro, S. Marre, T. Delclos, C. Aymonier, P. Subra, L. Prat, C. Gourdon, and E. Mignard, *Lab. Chip* **11**, 779 (2011).
- [7] K. Nagel, *Phys. Rev. E* **53**, 4655 (1996).
- [8] R. T. Carr and M. Lacoïn, *Ann. Biomed. Eng.* **28**, 641 (2000).
- [9] D. Angeli, J. E. Ferrell, and E. D. Sontag, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **101**, 1822 (2004).
- [10] W. Engl, M. Roche, A. Colin, P. Panizza, and A. Ajdari, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 208304 (2005).
- [11] F. Jousse, R. Farr, D. R. Link, M. J. Fuerstman, and P. Garstecki, *Phys. Rev. E* **74**, 036311 (2006).
- [12] D. A. Sessoms, M. Belloul, W. Engl, M. Roche, L. Courbin, and P. Panizza, *Phys. Rev. E* **80**, 016317 (2009).
- [13] D. A. Sessoms, A. Amon, L. Courbin, and P. Panizza, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 154501 (2010).
- [14] T. Glawdel, C. Elbuken, and C. L. Ren, *Lab. Chip* **11**, 3774 (2011).
- [15] M. J. Fuerstman, P. Garstecki, and G. M. Whitesides, *Science* **315**, 828 (2007).
- [16] O. Cybulski and P. Garstecki, *Lab. Chip* **10**, 484 (2010).
- [17] M. Schindler and A. Ajdari, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 044501 (2008).
- [18] V. Labrot, M. Schindler, P. Guillot, A. Colin, and M. Joanicot, *Biomicrofluidics* **3**, 012804 (2009).
- [19] B. J. Smith and D. P. Gaver III, *Lab. Chip* **10**, 303 (2010).
- [20] M. Djalali Behzad, H. Seyed-allaei, and M. R. Ejtehadi, *Phys. Rev. E* **82**, 037303 (2010).
- [21] M. Belloul, L. Courbin, and P. Panizza, *Soft Matter* **7**, 9453 (2011).
- [22] P. Parthiban and S. A. Khan, *Lab. Chip* **12**, 582 (2012).
- [23] W. Choi, M. Hashimoto, A. K. Ellerbee, X. Chen, K. J. M. Bishop, P. Garstecki, H. A. Stone, and G. M. Whitesides, *Lab. Chip* **11**, 3970 (2011).
- [24] R. Jeanneret, J. P. Vest, and D. Bartolo, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 034501 (2012).
- [25] M. Belloul, W. Engl, A. Colin, P. Panizza, and A. Ajdari, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 194502 (2009).
- [26] S. Jakiela, P. M. Korczyk, S. Makulska, O. Cybulski, and P. Garstecki, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 134501 (2012).
- [27] J. D. Tice, H. Song, A. D. Lyon, and R. F. Ismagilov, *Langmuir* **19**, 9127 (2003).
- [28] P. Garstecki, M. J. Fuerstman, H. A. Stone, and G. M. Whitesides, *Lab. Chip* **6**, 437 (2006).
- [29] S. L. Anna, N. Bontoux, and H. A. Stone, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 364 (2003).
- [30] H. Song and R. F. Ismagilov, *J. Am. Chem. Soc.* **125**, 14613 (2003).
- [31] A. D. Griffiths and D. S. Tawfik, *Trends Biotechnol.* **24**, 395 (2006).
- [32] B. T. Kelly, J. C. Baret, V. Taly, and A. D. Griffiths, *Chem. Commun.* **18**, 1773 (2007).
- [33] P. Panizza, W. Engl, C. Hany, and R. Backov, *Colloids Surf. A* **312**, 24 (2008).
- [34] O. Cybulski and P. Garstecki, *Phys. Rev. E* **82**, 056301 (2010).
- [35] J. C. McDonald, D. C. Duffy, J. R. Anderson, D. T. Chiu, H. Wu, O. J. A. Schueller, and G. M. Whitesides, *Electrophoresis* **21**, 27 (2000).
- [36] D. R. Link, S. L. Anna, D. A. Weitz, and H. A. Stone, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 054503 (2004).
- [37] L. Ménétrier-Deremble and P. Tabeling, *Phys. Rev. E* **74**, 035303(R) (2006).
- [38] M.-C. Jullien, M.-J. Tsang Mui Ching, C. Cohen, L. Menetrier, and P. Tabeling, *Phys. Fluids* **21**, 072001 (2009).
- [39] L. Salkin, L. Courbin, and P. Panizza, *Phys. Rev. E* **86**, 036317 (2012).
- [40] L. Salkin, A. Schmit, L. Courbin, and P. Panizza, *Lab. Chip* **13**, 3022 (2013).

Publication D [146]

## Influence of boundary conditions on the existence and stability of minimal surfaces of revolution made of soap films

Louis Salkin, Alexandre Schmit, Pascal Panizza,\* and Laurent Courbin†  
 IPR, UMR CNRS 6251, Campus Beaulieu, Université Rennes 1, 35042 Rennes, France  
 (Received; Accepted)

Because of surface tension, soap films seek the shape that minimizes their surface energy, and thus their surface area. This mathematical postulate allows one to predict the existence and stability of simple minimal surfaces. After briefly recalling classical results obtained in the case of symmetric catenoids that span two circular rings with the same radius, we discuss the role of boundary conditions on such shapes, working with two rings having different radii. We then investigate the conditions of existence and stability of other shapes that include two portions of catenoids connected by a planar soap film and half-symmetric catenoids for which we introduce a method of observation. We report a variety of experimental results including metastability—an hysteretic evolution of the shape taken by a soap film—explained using simple physical arguments. Working by analogy with the theory of phase transitions we conclude by discussing universal behaviors of the studied minimal surfaces in the vicinity of their existence thresholds.

### I. INTRODUCTION

Minimal surfaces have been extensively studied for centuries by both physicists and mathematicians.<sup>1,2</sup> Applications include optimization problems such as the Steiner tree,<sup>2,3</sup> crystallography<sup>4</sup>, and even architecture.<sup>5,6</sup> Despite the wide literature on the topic, minimal surfaces still raise challenging questions in physics<sup>7</sup> and in mathematics.<sup>8,9</sup> These surfaces can be easily materialized at low cost by withdrawing wire frameworks from a soap solution to create a soap film in the frame with a (locally) minimum surface area because of surface tension. These soap-film systems can exhibit surprising behaviors bearing analogies with phase transitions including, e.g., metastability.<sup>10–13</sup> For these reasons, minimal surfaces and soap films in particular are topics of value to education that can help the learning of theoretical and experimental physics.<sup>14</sup> Dynamical aspects of minimal surfaces are also documented in the literature, for instance the collapse of soap films or smectic films<sup>15–18</sup> or the deformation of a soap film induced by an impacting projectile in the context of foam physics.<sup>19</sup> Here, we focus on the static description of minimal surfaces of revolution made of soap films.

We build on Euler's original work<sup>20</sup> to investigate the influence of boundary conditions on the existence and stability of such surfaces. We provide generalized ways to derive familiar results and we draw connections between soap films and the physics of phase transitions. Our paper is organized as follows. In Sec. II, we begin by treating the case of a catenoid formed between two circular rings having either identical or different radii. We then study the shape adopted by a soap film when withdrawing a single ring from a bath containing a soap solution. In Sec. III, we investigate the existence and stability of a soap-film structure consisting of two portions of catenoids connected by a planar film. Finally, in Sec. IV we use arguments borrowed from the theory of phase transitions to discuss the universal nature of these minimal surfaces close to their existence thresholds.

### II. CATENOIDS

A catenoid is a minimal surface that spans two coaxial circular rings.<sup>20</sup> As derived in the Appendix and shown in Fig. 1, a catenoid is a surface of revolution generated from a catenary curve having a radius

$$\rho(z) = a \cosh\left(\frac{z}{a} + C\right), \quad (1)$$

where  $a$  and  $C$  are two parameters set by the boundary conditions imposed by the two rings. We next discuss the existence and stability of catenoids considering both symmetric ( $R_1 = R_2 = R$ ) and asymmetric ( $R_2 > R_1$ ) cases,  $R_1$  and  $R_2$  being the radii of the rings (see Fig. 1).

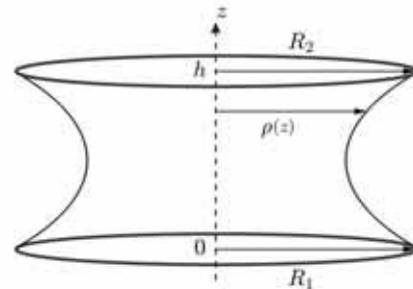


FIG. 1. Sketch of a catenoid formed between two circular rings of radii  $R_1$  and  $R_2$ , separated by a distance  $h$ . The axisymmetric shape is described by  $\rho(z)$ .

#### A. The symmetric catenoid

We begin by studying the case  $R_1 = R_2 = R$ . The two boundary conditions  $\rho(0) = \rho(h) = R$  imposed by the presence of the circular rings at  $z = 0$  and  $z = h$  give  $C = -h/2a$  and  $a \cosh(h/2a) = R$ . This latter

relationship can be written in the dimensionless form

$$f(X, \Delta) = \cosh\left(\frac{\Delta X}{2}\right) - X = 0, \quad (2)$$

where  $X = R/a$  and  $\Delta = h/R$ . For a given value of  $\Delta$ , this implicit equation can be solved graphically by plotting  $f(X, \Delta)$  as a function of  $X$  (Fig. 2). Because of the symmetry of the shape, the neck of the catenoid  $a$ —the minimum value of  $\rho(z)$ —is located at  $z = h/2$ . As shown in Fig. 2, three cases can be distinguished depending on the value of  $\Delta$ :

- $\Delta < \Delta_c \approx 1.33$ . For a given value of  $\Delta$ , Eq. (2) admits two roots for  $X$ . Two different catenoids can therefore exist between two rings having the same radius. One can easily show that the catenoid having the largest neck has the lowest energy.
- $\Delta = \Delta_c$ . Here one finds a single root ( $X_c \simeq 1.81$ ) so that only one catenoid satisfies the given boundary conditions.
- $\Delta > \Delta_c$ . In this regime Eq. (2) has no solution because  $f(X, \Delta) > 0$  for any  $X$  (see Fig. 2). Hence, no catenoid can exist between the two rings for this range of  $\Delta$ .

The critical point corresponding to the loss of existence of solutions can be analytically determined by solving the set of equations  $f(X_c, \Delta_c) = 0$  and  $\partial_X f(X_c, \Delta_c) = 0$ , which gives the implicit equation

$$\coth\left(\frac{\Delta_c X_c}{2}\right) = \frac{\Delta_c X_c}{2}. \quad (3)$$

Equation (3) has the unique solution  $\Delta_c X_c/2 \approx 1.20$ . By using this result and  $f(X_c, \Delta_c) = 0$ , one can obtain expressions for the existence thresholds  $a_c/R = 1/X_c \approx 0.55$  and  $h_c/R = \Delta_c \approx 1.33$ .

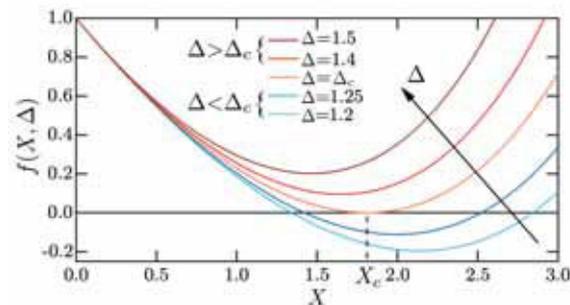


FIG. 2. (Color online) Solution of Eq. (2) imposed by the two boundary conditions  $\rho(0) = \rho(h) = R$  in the case of a symmetric catenoid.

We next validate experimentally these well-known predictions. In all of our experiments except those of

Sec. II C, we use a digital caliper with two circular coaxial rings (radius  $R = 0.5\text{--}5\text{ cm}$ ) made of wire (1 mm in diameter) attached to the caliper's jaws; care is taken to ensure that the rings are parallel. This device enables us to measure the distance  $h$  precisely, the neck radius  $a$  being determined by imaging the shape of the soap film with a camera (EO-1312C, Edmund Optics). We create symmetric catenoids by withdrawing two identical rings perpendicularly from a liquid bath containing a soap solution. This solution is made of water (80% by volume), commercial dishwashing liquid (Fairy, Procter & Gamble, 7% by volume), and glycerol (13% by volume). The air-solution surface tension  $\gamma = 25\text{ mN/m}$  is measured using pendant drop tensiometry (Tracker, Teclis).

After removal of the frame, a so-called *diaboloid surface* (discussed in more detail in Sec. III) is first observed between the rings. This shape consists of two catenoids connected to each other by a planar soap film parallel to the rings. We begin an experiment by bursting the planar film so that the shape relaxes to become a symmetric catenoid that we study as a function of the distance  $h$ . Figure 3 shows the measurements of the normalized neck radius  $a/R = 1/X$  as a function of  $\Delta$ . Although two catenoid solutions can be found mathematically when  $\Delta < \Delta_c$ , only the catenoid having the larger neck (and lower surface energy) is observed experimentally. When  $\Delta = \Delta_c$ , the catenoid collapses into two planar films suspended on the two rings. This type of behavior bears strong analogies with bifurcation diagrams classically observed in the physics of instabilities.

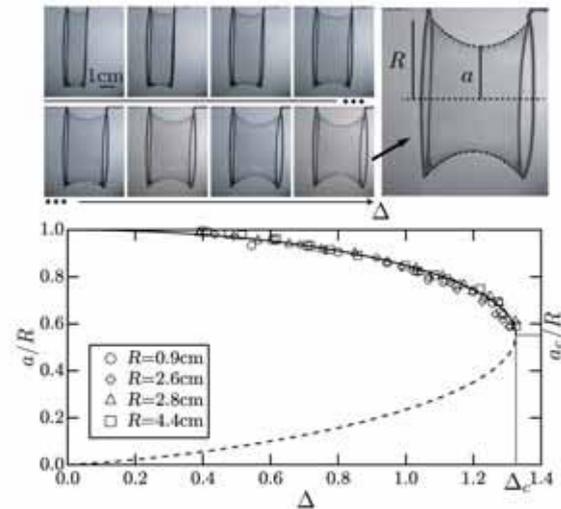


FIG. 3. Top panel: photographs showing the evolution of a symmetric catenoid when  $\Delta = h/R$  increases. Bottom panel: experimental evolution of the normalized neck radius  $a/R$  as a function of  $\Delta$ . Each symbol stands for a given value of  $R$  as indicated. The solid and dashed curves depict the stable and unstable theoretical solutions, respectively (the stable one corresponding to the catenoid having the largest neck).

### B. The asymmetric catenoid

To study the influence of the boundary conditions on the existence and stability of a catenoid, we now work with rings having different radii  $R_1$  and  $R_2 = \alpha R_1$ , with  $\alpha > 1$ ; as previously (see Fig. 1) the two rings are located at  $z = 0$  and  $z = h$ , respectively. The boundary conditions now read

$$\rho(0) = a \cosh C = R_1, \quad (4a)$$

$$\rho(h) = a \cosh \left( \frac{h}{a} + C \right) = R_2. \quad (4b)$$

Using the relation  $\cosh C = X = R_1/a$  and trigonometric identities, Eq. (4b) can be written in the dimensionless form

$$f_\alpha(X, \Delta) = \sinh^2(\Delta X) - X^2 [2\alpha \cosh(\Delta X) - 1 - \alpha^2] = 0, \quad (5)$$

where  $\Delta = h/R_1$ .

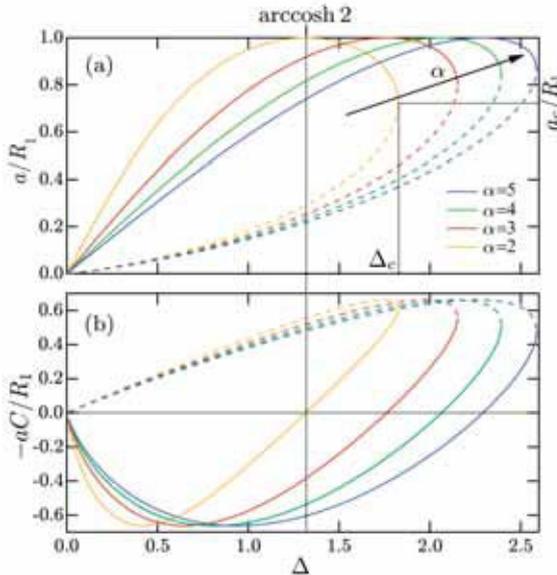


FIG. 4. (Color online) Theoretical evolution of (a)  $a/R_1$  and (b) the normalized position of the neck radius  $-aC/R_1$  as a function of  $\Delta = h/R_1$ . The solid and dashed curves correspond to the stable and unstable solutions, respectively. Each shade of gray (color online) represents a given value of  $\alpha$  as indicated. The coordinates of the point at which the value  $a/R_1$  of a given stable branch is maximum are  $(\text{arccosh } \alpha, 1)$ , as discussed in the text. When  $\Delta = \text{arccosh } \alpha$ , the neck radius is located at  $z = 0$ .

Solving Eq. (5), one obtains the evolution of  $a/R_1$  as a function of  $\Delta$  for different values of  $\alpha$  (see Fig. 4). Comparing the symmetric ( $\alpha = 1$  in Fig. 3) and asymmetric

( $\alpha > 1$  in Fig. 4) cases we observe some similarities in the response. For any  $\alpha > 1$ , when  $\Delta$  is lower than a critical value  $\Delta_c$ , two solutions are found for Eq. (5) so that two asymmetric catenoids can exist, the one with the larger neck having the smaller surface energy. Above  $\Delta_c$ , Eq. (5) has no solutions so no catenoid can exist.

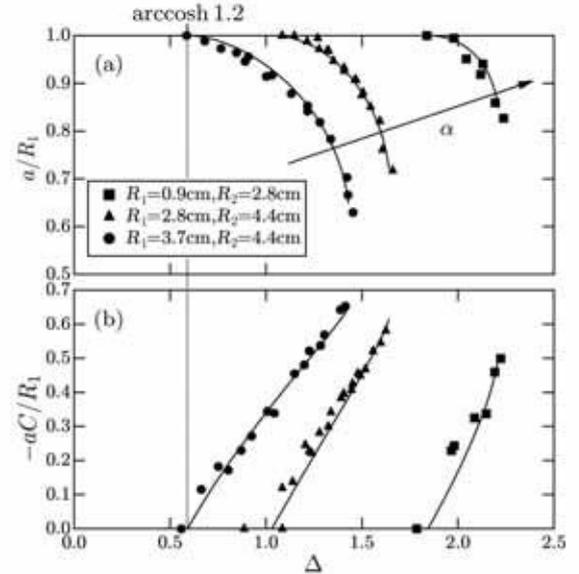


FIG. 5. Experimental evolution of (a)  $a/R_1$  and (b)  $-aC/R_1$  as a function of  $\Delta = h/R_1$ , with  $\alpha = 1.2$  ( $\bullet$ ),  $1.6$  ( $\blacktriangle$ ),  $3.1$  ( $\blacksquare$ ). The solid curves correspond to theoretical predictions for the stable solutions. As indicated in the figure and explained in the text, measurements can be carried out only when  $\Delta \geq \text{arccosh } \alpha$ .

In contrast with the symmetric case, when  $\Delta < \Delta_c$ , the variations of  $a/R_1$  with  $\Delta$  for the stable solutions are nonmonotonic [solid lines in Fig. 4 (a)]. In addition, the position of the neck radius  $z = -aC$  is no longer located at the midpoint between the two rings as shown by the variations of  $-aC/R_1$  with  $\Delta$  [see Fig. 4 (b)]. Indeed, our results for the stable solutions show that  $C$  is positive when  $a$  increases with  $\Delta$  and its sign becomes negative for large  $\Delta$  when  $a$  decreases with this quantity. Consequently, the position of the neck radius is located between the two rings only for large enough  $\Delta$  when  $C$  is negative. The neck radius is at  $z = 0$  when  $C = 0$  and by using Eq. (4) one finds that this occurs when  $\Delta = \text{arccosh } \alpha$  (see Fig. 4). To summarize, one predicts that the neck radius of a catenoid is experimentally measurable only when  $\Delta \geq \text{arccosh } \alpha$  and it is located at  $z = 0$  (i.e.  $a = R_1$ ) when  $\Delta = \text{arccosh } \alpha$  (note that for the symmetric case  $\text{arccosh } 1 = 0$ ). We use the soap solution described in Sec. II A to validate these predictions experimentally. As shown in Fig. 5, the resulting variations of  $a/R_1$  and  $-aC/R_1$  with  $\Delta$ , measured for different values of  $\alpha$ , show good agreement with the predictions.

Following a procedure similar to the one employed in Sec. II A, the existence thresholds  $a_c/R_1 = 1/X_c$  and  $\Delta_c$  can be determined by solving  $f_\alpha(X_c, \Delta_c) = 0$  and  $\partial_X f_\alpha(X_c, \Delta_c) = 0$ . Although these two equations are nonlinear and coupled, they can be solved using a numerical method as follows. By combining these two equations, one finds the following implicit relation that admits  $\Delta_c X_c$  as a root and that can be solved numerically:

$$\tanh(\Delta_c X_c) = \Delta_c X_c (2\alpha \cosh(\Delta_c X_c) - 1 - \alpha^2) / [\alpha (2 \cosh(\Delta_c X_c) + \Delta_c X_c \sinh(\Delta_c X_c)) - 1 - \alpha^2]. \quad (6)$$

Using the result of the resolution of Eq. (6) to solve  $f_\alpha(X_c, \Delta_c) = 0$ , one obtains the numerical evolution of  $X_c$  and subsequently the variations of  $\Delta_c$  as a function of  $\alpha$ . Although we use a slightly different approach, our numerical method is in full agreement with other geometric demonstrations published in the literature.<sup>21</sup> As shown in Fig. 6, the existence thresholds are monotonically increasing functions of  $\alpha$ , which indicates that the asymmetry increases the domain of existence of catenoids. Our numerical predictions agree reasonably well with the experimental results.

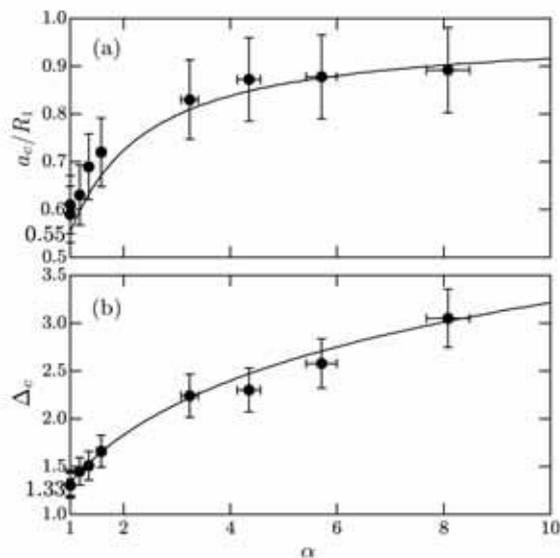


FIG. 6. Existence thresholds (a)  $a_c/R_1$  and (b)  $\Delta_c$  of asymmetric catenoids as a function of  $\alpha$  characterizing the asymmetry: comparison between predictions (solid curves) and experiments (data points).

### C. The half-symmetric catenoid

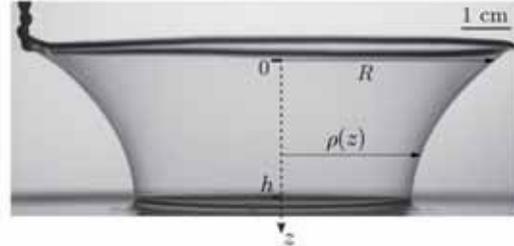


FIG. 7. Image showing the soap film formed when withdrawing a ring from a bath of soap solution and showing the parameters  $R$ ,  $h$ , and  $\rho(z)$ .

Withdrawing a circular ring of radius  $R$  at a height  $h$  from a bath of soap solution creates an axisymmetric soap film as shown in Fig. 7. Above a critical height  $h_c$ , this shape collapses to leave a planar film on the ring and a soap bubble in contact with the bath.<sup>22</sup> Similar to the shapes studied in previous sections, this surface of revolution is also a catenoid. The origin of this shape resides in its specific boundary conditions. Indeed, in this case only a single boundary condition,  $\rho(0) = R$ , is imposed by the operator. When  $h < h_c$ , experiments show that the radius of the soap film at the level of the bath,  $\rho(h)$ , is a decreasing function of  $h$ . In addition, careful observations at  $z = h$  reveal that the soap film is perpendicular to the horizontal surface of the bath for any values of  $R$  and  $h$ . This result—a direct consequence of the mechanical balance of the forces acting on the liquid meniscus connecting the bath and the soap film—gives rise to the second boundary condition:  $\rho'(h) = 0$ . Hence, using Eq. (1), the boundary conditions read

$$\rho(0) = a \cosh C = R, \quad (7a)$$

$$\rho'(h) = \sinh\left(\frac{h}{a} + C\right) = 0. \quad (7b)$$

As seen in other problems in physics, when we compare the case of the symmetric catenoid with that of the present shape, it is worth noting that the change in boundary conditions at  $z = h$  corresponds to a transition from Dirichlet [ $\rho(0) = \rho(h) = R$ ] to mixed Dirichlet-Neumann [ $\rho(0) = R$ ,  $\rho'(h) = 0$ ] conditions.

Using Eqs. (7), one finds  $C = -h/a$  and  $a \cosh(h/a) = R$ . Apart from the factor of  $1/2$ , these results are strictly analogous to those obtained for symmetric catenoids (see Sec. II A). We therefore interpret the shape in Fig. 7 as half of a symmetric catenoid whose neck radius  $\rho(h) = a$  is located at the level of the bath. Thus, existence thresholds can be guessed using previous results (Sec. II A):  $1/X_c = a_c/R \approx 0.55$ ,  $\Delta_c = h_c/R \approx 0.66$ . As shown in

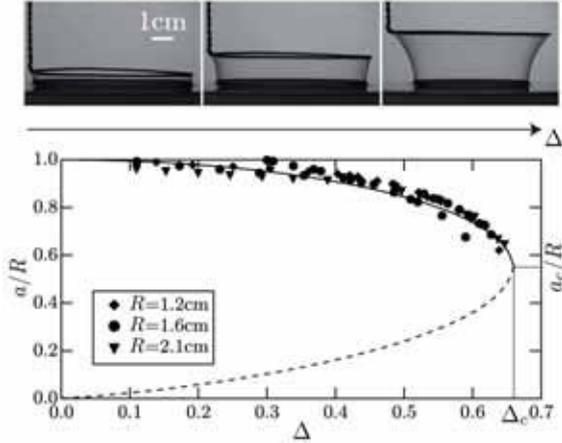


FIG. 8. Top panel: photographs of a typical experiment showing the evolution of a half-symmetric catenoid as  $\Delta = h/R$  increases. Bottom panel: experimental evolution of the normalized neck radius  $\frac{a}{R}$  as a function of  $\Delta$ . The solid and dashed curves stand for the stable and unstable theoretical solutions, respectively.

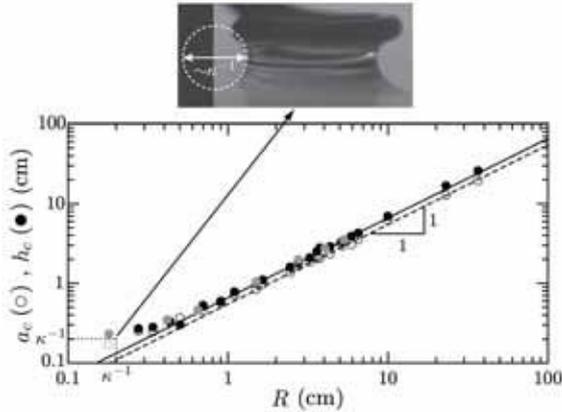


FIG. 9. Top panel: typical liquid meniscus observed when  $\Delta < \Delta_c$  with a ring of radius  $R \sim \kappa^{-1}$ ,  $\kappa^{-1}$  being the capillary length. Bottom panel: predicted thresholds  $a_c \approx 0.55R$  (dashed line) and  $h_c \approx 0.66R$  (solid line) as a function of  $R$ . The black and gray symbols correspond, respectively, to measurements made with the soapy solution described in Sec. II A and the Sodium Dodecyl Sulfate solution.

Fig. 8), experimental results agree well with these predictions.

We also conduct similar experiments with a mixture of water and a surfactant (Sodium Dodecyl Sulfate) at a concentration of 15 g/L. For both this mixture and the soap solution described in Sec. II A, our predictions capture the experimental thresholds as long as  $R$  is larger than a couple of millimeters (see Fig. 9). We attribute

the deviation observed at small  $R$  to capillary effects related to the presence of the liquid meniscus at the level of the bath not taken into account in our simple model. The typical size of this meniscus is given by the capillary length<sup>23</sup>  $\kappa^{-1} = \sqrt{\gamma/\rho g} \approx 2$  mm, with  $\rho$  the liquid density,  $\gamma$  the air-liquid surface tension, and  $g$  the gravitational field strength. When  $R \lesssim \kappa^{-1}$ , meniscus effects come into play and set the thresholds; a more detailed description necessary in this case is beyond the scope of this paper.

### III. DIABOLOIDS

We now study the existence and stability of shapes that span two rings of radii  $R_1$  and  $R_2$  and are composed of two portions of catenoids connected to each other by a planar film (see Fig. 10). In what follows, we refer to these surfaces as “diaboloids” because they resemble a well-known juggling object, the *diabolo*.<sup>24</sup>

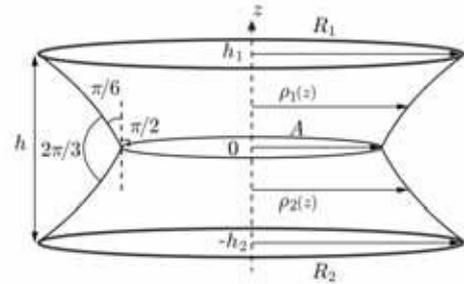


FIG. 10. Sketch of a diabolo defining the variables  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $h$ ,  $h_1$ ,  $h_2$ ,  $A$ ,  $\rho_1(z)$ , and  $\rho_2(z)$ .

Such minimal surfaces have been used as model systems<sup>7,25–27</sup> to address experimental problems in the context of the physics of foams. Here, our goal is to study how the presence of the planar soap film affects the existence and stability of this surface with respect to those of the associated catenoid that would form between two similar rings as discussed in Sec. II.

#### A. The symmetric diaboloïd

We begin by considering the symmetric case, for which  $R_1 = R_2 = R$ . The profiles of the upper and lower catenoids are given by (see Fig. 10)

$$\rho_1(z) = a_1 \cosh\left(\frac{z}{a_1} + C_1\right), \quad (8a)$$

$$\rho_2(z) = a_2 \cosh\left(\frac{z}{a_2} + C_2\right). \quad (8b)$$

The boundary conditions determined at  $z = 0$ ,  $z = h_1$ , and  $z = -h_2$  yield

$$A = a_1 \cosh C_1 = a_2 \cosh C_2, \quad (9a)$$

$$R_1 = a_1 \cosh \left( \frac{h_1}{a_1} + C_1 \right), \quad (9b)$$

$$R_2 = a_2 \cosh \left( \frac{-h_2}{a_2} + C_2 \right), \quad (9c)$$

$$h = h_1 + h_2. \quad (9d)$$

This system of five equations does not enable one to determine the seven unknown parameters ( $a_1, C_1, h_1, a_2, C_2, h_2, A$ ); two supplementary equations are necessary for the system not to be underdetermined. The needed equations are given by the mechanical balance of the forces acting on the Plateau border between the planar film and the two portions of catenoids (Fig. 10). In the dry limit,<sup>25</sup> the third Plateau's law imposes that the three angles made by the films connected to the Plateau border are all equal to  $2\pi/3$ .<sup>1,28</sup> Mathematically, this can be written as

$$\rho'_1(z=0) = \sinh C_1 = \tan \left( \frac{\pi}{6} \right), \quad (10a)$$

$$\rho'_2(z=0) = \sinh C_2 = -\tan \left( \frac{\pi}{6} \right). \quad (10b)$$

As a result,  $C_1 = -C_2 = C \approx 0.55$  and  $a_1 = a_2 = a = A/\cosh C$ . It is worth noting that the profile of the associated catenoid, for which the slope is zero at the midpoint between rings, can be retrieved by writing  $\rho'(z=0) = \sinh C = 0$  so that  $C = 0$ . The apparent discrepancy with the result discussed in Sec. II A ( $C = -h/2a$ ) stems from the different location taken for the origin of the  $z$ -axis. Using these results and Eq. (9) we find

$$h_1 = h_2 = \frac{h}{2} = a \left[ \operatorname{arccosh} \left( \frac{R}{a} \right) - C \right]. \quad (11)$$

Since the radius of the planar soap film  $A$  is easily accessible experimentally when compared to  $a$ , we next derive the existence thresholds of the diaboloid in terms of the dimensionless quantities  $A/R$  and  $h/R$ . The boundary condition at  $z = h_1$  can be expressed in the (dimensionless) form

$$g(X, \Delta) = \cosh \left( \frac{\Delta X}{2} + C \right) - X = 0, \quad (12)$$

with  $X = R/a$  and  $\Delta = h/R$ . This implicit equation admits two roots when  $\Delta$  is smaller than a critical value  $\Delta_c$ . When  $C = 0$ , we retrieve the equation derived in the case of a symmetric catenoid [see Eq. (2)]. In fact,

the resolution of Eq. (12) is qualitatively analogous to that of Eq. (2). The existence thresholds for the symmetric diaboloid are obtained by solving  $g(X_c, \Delta_c) = 0$  and  $\partial_X g(X_c, \Delta_c) = 0$ .

Following the approach employed in Sec. II, we find that  $\Delta_c X_c/2 \approx 1.08$  is the solution of the implicit equation

$$\coth \left( \frac{\Delta_c X_c}{2} + C \right) = \frac{\Delta_c X_c}{2}. \quad (13)$$

Using this result and solving  $g(X_c, \Delta_c) = 0$  we obtain  $A_c/R = \cosh C/X_c \approx 0.44$  and  $h_c/R = \Delta_c \approx 0.82$ . The value of  $\Delta_c$  was inferred by other authors based on experimental data.<sup>25</sup> We note that the critical distance  $h_c$  of a diaboloid is relatively smaller than that of the associated catenoid for which  $\Delta_c \approx 1.33$ . This result suggests that the third Plateau's law is an additional constraint for diaboloids structures that makes them less stable than catenoids. As shown in Fig. 11, experiments mirror our theoretical predictions.

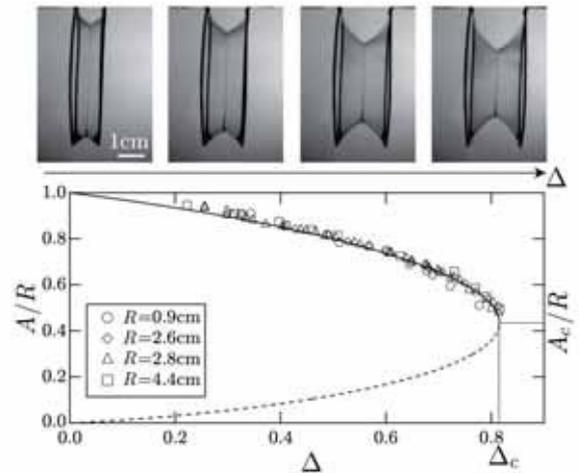


FIG. 11. Top panel: photographs of a typical experiment showing the evolution of a symmetric diaboloid as  $\Delta$  increases. Bottom panel: experimental variations of the normalized radius of the planar film  $A/R$  as a function of the normalized distance  $\Delta = h/R$ . The symbols stand for different values of  $R$  as indicated. The solid and dashed curves correspond to the stable and unstable theoretical solutions, respectively.

## B. The asymmetric diaboloid

To investigate the asymmetric case, we again consider two different rings with radii  $R_1$  and  $R_2 = \alpha R_1$  with  $\alpha > 1$ . This symmetry breaking yields significant changes in the behavior of the diaboloid. The boundary conditions at  $z = h_1$  and  $z = -h_2$  [see Eqs. (9b) and (9c) and

Fig. 10] yield

$$\cosh(\Delta_1 X + C) = X, \quad (14a)$$

$$\cosh(\Delta_2 X + C) = \alpha X, \quad (14b)$$

where  $X = R_1/a$  and  $\Delta_i = h_i/R_1$  with  $i = 1$  or  $2$ . Combining Eqs. (14a) and (14b) we find

$$g_\alpha(X, \Delta) = \operatorname{arccosh} X + \operatorname{arccosh}(\alpha X) - \Delta X - 2C = 0. \quad (15)$$

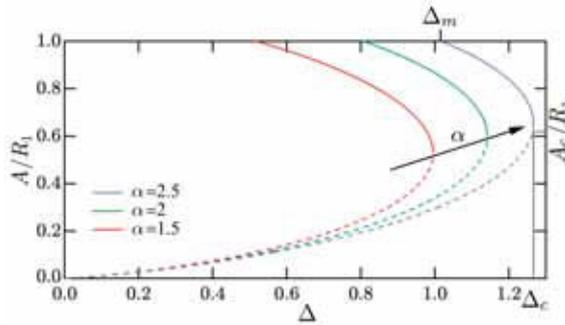


FIG. 12. (Color online) Theoretical evolution of the normalized radius of the planar soap film  $A/R_1$  as a function of the normalized distance  $\Delta = h/R_1$ . The solid and dashed curves correspond to the stable and unstable solutions, respectively. Different shades of gray correspond to different values of  $\alpha$ , as indicated. The coordinates of  $\Delta_m$  are  $([\operatorname{arccosh}(\alpha \cosh C) - C]/\cosh C, 1)$ , as discussed in the text.

Figure 12 shows the evolution of  $A/R_1$  as a function of  $\Delta = h/R_1$  for different values of  $\alpha$ . As previously shown in the case of asymmetric catenoids, the existence thresholds  $\Delta_c$  and  $A_c/R_1$  are increasing functions of  $\alpha$ . Surprisingly, when comparing the symmetric (Fig. 11) and asymmetric (Fig. 12) cases, stable asymmetric diaboloids have smaller domains of existence than symmetric ones. Indeed, Fig. 12 shows that an asymmetric diaboloid exists only when  $\Delta_m \leq \Delta \leq \Delta_c$  for any  $\alpha$ . An expression for  $\Delta_m$  can be derived by having  $A$  take its maximal value ( $A = R_1$ ). When  $\Delta < \Delta_m$ , writing Eq. (9b) with  $R_1 = A$  in this case of asymmetric shapes, one finds that  $h_1 = 0$ , i.e. the most stable minimal surface is composed of an asymmetric catenoid built on the two rings and a planar soap film suspended on the smaller ring. The resolution of the boundary conditions [Eq. (9)] with  $A = R_1$  yields

$$\Delta_m = \frac{\operatorname{arccosh}(\alpha \cosh C) - C}{\cosh C}, \quad (16)$$

with  $C \approx 0.55$ . It is straightforward to show that  $\Delta_m = 0$  in the symmetric case ( $\alpha = 1$ ).

Similar to the previously discussed cases, the existence thresholds  $X_c$  and  $\Delta_c$  are determined by solving  $g_\alpha(X_c, \Delta_c) = 0$  and  $\partial_X g_\alpha(X_c, \Delta_c) = 0$ , which lead to

$$\operatorname{arccosh} X_c + \operatorname{arccosh}(\alpha X_c) = \Delta_c X_c + 2C, \quad (17a)$$

$$\frac{1}{\sqrt{X_c^2 - 1}} + \frac{\alpha}{\sqrt{(\alpha X_c)^2 - 1}} = \Delta_c. \quad (17b)$$

We confront our theoretical predictions with experimental variations of  $A/R_1$  with  $\Delta$  (see Fig. 13). Interestingly, our experiments reveal the existence of an hysteretic behavior, a phenomenon that is a typical signature of a subcritical bifurcation in the physics of instabilities. Indeed, experimental data differ depending on whether the ring separation distance rings  $h$  is continuously increased or decreased (Fig. 13). This hysteresis cycle is an illustration of a phenomenon of metastability resulting from the coexistence of two minimal surfaces: the asymmetric diaboloid characterized by  $A/R_1 < 1$ , and the asymmetric catenoid associated with a planar soap film on the smaller ring characterized by  $A/R_1 = 1$ . We will refer to these two configurations as  $D$  (diaboloid) and  $C$  (catenoid), respectively. Also, we denote as  $\Delta_{C \rightarrow D}$  the value of  $\Delta$  for which the system undergoes the transition from the configuration  $C$  to the configuration  $D$  as  $h$  increases. Similarly, the transition from the configuration  $D$  to the configuration  $C$  is obtained at  $\Delta_{D \rightarrow C}$  when  $h$  decreases (Fig. 13).

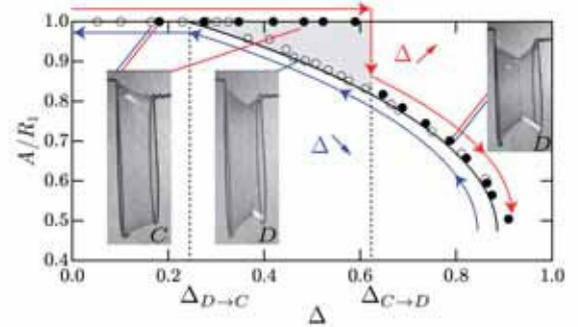


FIG. 13. (Color online) Experimental evolution of  $A/R_1$  as a function of  $\Delta = h/R_1$  illustrating the hysteretic response. The symbols indicate the experimental conditions: (solid)  $h$  increases, (open)  $h$  decreases. The experimental parameters are  $R_1 = 3.7$  cm,  $R_2 = 4.4$  cm, and  $\alpha = 1.2$ . The solid curve corresponds to the theoretical solution of the stable diaboloid.

To rationalize the observed hysteresis and predict theoretical expressions for  $\Delta_{C \rightarrow D}$  and  $\Delta_{D \rightarrow C}$ , we next investigate the transitions from one configuration to the other. As previously discussed, asymmetric diaboloids exist only when  $\Delta_m \leq \Delta \leq \Delta_c$ , hence the transition from  $D$  to  $C$  is observed at  $\Delta_{D \rightarrow C} = \Delta_m = [\operatorname{arccosh}(\alpha \cosh C) - C]/\cosh C$ . Studying the transition from  $C$  to  $D$ , and given that  $\Delta_{C \rightarrow D} \neq \Delta_{D \rightarrow C}$ , one guess is that the system is metastable in configuration  $C$ . Indeed, calculations (not shown here) indicate that the surface energy of state  $D$ , when this configuration exists, is always lower than but close to that of configuration  $C$ . Accordingly, we need to find a plausible transition path selected by the system that can account for the metastability. Following the classical picture used in the theory of

chemical reactions, we propose a phenomenological two-step mechanism detailed below and depicted in Fig. 14:

- (1) The planar soap film moves from the smaller ring to its final position in the configuration  $D$ , the profile of the asymmetric catenoid remaining unchanged.
- (2) The profile of the initial asymmetric catenoid changes to accommodate the presence of the planar film by satisfying angular constraints imposed by the third Plateau's law.

This two-step mechanism suggests that the transition from  $C$  to  $D$  occurs only if the first step is favorable in terms of surface energy. During this step, the surface area of the planar film decreases only when the neck radius of the asymmetric catenoid is located between the two rings. Hence, using results obtained in Sec. II B we infer that  $\Delta_{C \rightarrow D} = \text{arccosh } \alpha$ .

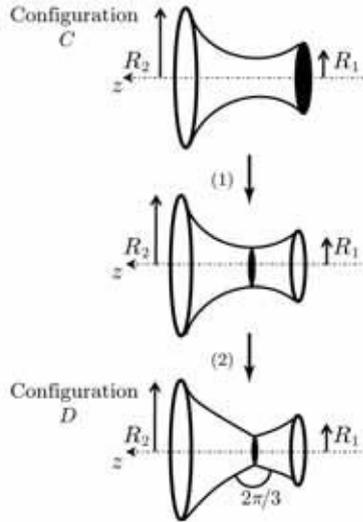


FIG. 14. Sketch of the two-step mechanism. First, the planar soap film moves without affecting the profile of the initial asymmetric catenoid. Second, the catenoid adapts its shape because of the presence of the planar film.

Figure 15 (a) shows the evolution with  $\alpha$  of the variables characterizing the hysteretic behavior,  $\Delta_{D \rightarrow C}$ ,  $\Delta_{C \rightarrow D}$ , and  $\Delta_c$ . As shown in this figure, our simple physical arguments help explain the experiments. Also, the predicted variations of  $A/R_1$  with  $\Delta$  for different  $\alpha$  agree well with experiments [Fig. 15 (b)]. As the predicted curves for  $\Delta_{C \rightarrow D}$  and  $\Delta_c$  intersect at  $\alpha = \alpha_c \approx 1.56$ , two different scenarios that depend on  $\alpha$  are possible:

- $\alpha < \alpha_c$ ,  $\Delta_{C \rightarrow D} < \Delta_c$ : when  $h$  is increased one first observes the transition from  $C$  to  $D$  and then the collapse of the film at the existence threshold;
- $\alpha > \alpha_c$ ,  $\Delta_{C \rightarrow D} > \Delta_c$ : when  $h$  increases the soap film breaks at  $\Delta_{C \rightarrow D}$  so that configuration  $D$  is

never observed. Experiments conducted for  $\alpha = 1.6$  correlate with this scenario [Fig. 15 (b)]. To overcome this limitation and force the transition from  $C$  to  $D$  when  $\Delta_m < \Delta < \Delta_c < \Delta_{C \rightarrow D}$ , one can provide some activation energy to the system experimentally. For instance, blowing air on the soap film or touching it with a wet spatula can actively tune down the value of  $\Delta_{C \rightarrow D}$  and select the configuration adopted by the film.

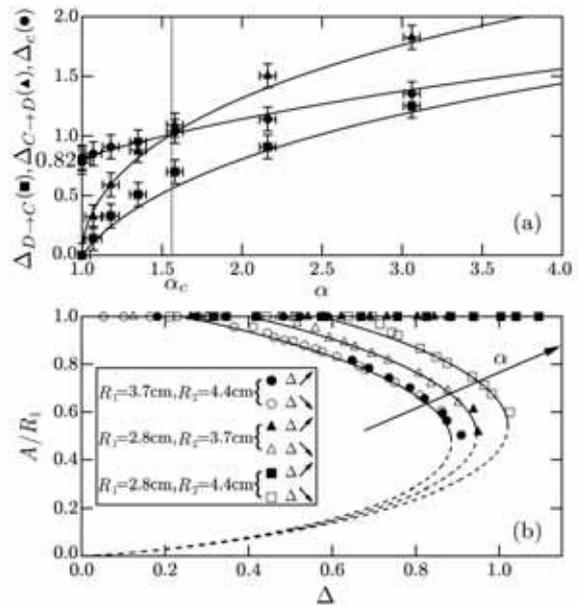


FIG. 15. (a) Variations of  $\Delta_{D \rightarrow C}$  (■),  $\Delta_{C \rightarrow D}$  (▲), and  $\Delta_c$  (●) as a function of  $\alpha$ : comparison between experiments (points) and theory (curves). (b) Experimental evolution of  $A/R_1$  as a function of  $\Delta$ . Solid and open symbols correspond to measurements taken when the rings are moved apart and closer, respectively. The shape of the symbol labels for the asymmetry:  $\alpha = 1.2$  (circles),  $1.3$  (triangles),  $1.6$  (squares). Solid and dashed curves correspond to the stable and unstable theoretical solutions, respectively. For the largest asymmetry  $\alpha > \alpha_c$  (Fig. 15 (a) defines  $\alpha_c$ ), configuration  $D$  is not observed experimentally when  $h$  increases.

#### IV. UNIVERSAL BEHAVIOR IN THE VICINITY OF THE EXISTENCE THRESHOLD

Solving Eq. (17), one can determine the existence thresholds ( $X_c$ ,  $\Delta_c$ ) for all minimal surfaces of revolution considered in this article. Indeed, thresholds for symmetric diaboloids and (symmetric and asymmetric) catenoids are respectively retrieved by taking  $\alpha = 1$  and either  $C = \text{arsinh}(\tan \pi/6)$  or  $C = 0$  in Eq. (17). In addition, the threshold of the half-symmetric catenoid can be de-

duced from that of the symmetric catenoid by dividing  $\Delta_c$  by 2. These results are summarized in Fig. 16.

stability thresholds: $\left[ \frac{\operatorname{arccosh} X_c + \operatorname{arccosh}(\alpha X_c) - \Delta_c X_c + 2C}{\sqrt{X_c^2 - 1} + \frac{\alpha}{\sqrt{(\alpha X_c)^2 - 1}}} = \Delta_c \right.$			
catenoids $C = 0$	symmetric $\alpha = 1$	asymmetric $\alpha > 1$	half-symmetric $\alpha = 1$ $\tilde{\Delta}_c = 2\Delta_c$
	$\Delta_c \approx 1.33$	$\Delta_c(\alpha)$	$\Delta_c \approx 0.66$
diaboloids $C \approx 0.55$	symmetric $\alpha = 1$		asymmetric $\alpha > 1$
	$\Delta_c \approx 0.82$		$\Delta_c(\alpha)$

FIG. 16. Table summarizing the stability thresholds  $\Delta_c$  derived in the text, for each minimal surface studied in this article. The thresholds are determined by Eqs. (17). In the case of half-symmetric catenoids, one determines the threshold by replacing  $\Delta_c$  by  $\tilde{\Delta}_c$  in Eq. (17) when solving this set of equations.

Similar to the behavior of second-order phase transitions characterized by the same critical exponents close to their critical point, all minimal surfaces studied here present a universal behavior in the vicinity of their existence thresholds. Indeed, they are fully described by the two geometrical quantities  $X$  and  $\Delta$ . Close to their existence thresholds, we can approximate  $g_\alpha(X, \Delta)$  [Eq. (15)] by a second-order Taylor series. For fixed values of  $C$  and  $\alpha$ , using  $\Delta = \Delta_c + \delta\Delta$  and  $X = X_c + \delta X$ , we can then expand  $g_\alpha(X, \Delta)$  as

$$g_\alpha(X, \Delta) \simeq g_\alpha(X_c, \Delta_c) + \partial_X g_\alpha \delta X + \partial_\Delta g_\alpha \delta\Delta + \frac{\partial_{XX} g_\alpha (\delta X)^2}{2} + \partial_{X\Delta} g_\alpha \delta\Delta \delta X + \frac{\partial_{\Delta\Delta} g_\alpha (\delta\Delta)^2}{2} = 0, \quad (18)$$

where all the derivatives are computed at  $X = X_c$  and  $\Delta = \Delta_c$ . Since  $X_c$  and  $\Delta_c$  are solutions of  $\{g_\alpha(X_c, \Delta_c) = 0, \partial_X g_\alpha(X_c, \Delta_c) = 0\}$ , by comparing the different terms of the Taylor series, we can show that

$$\delta X \simeq \pm \sqrt{\frac{2\partial_{\Delta\Delta} g_\alpha}{\partial_{XX} g_\alpha}} \sqrt{-\delta\Delta}. \quad (19)$$

As  $X = R/a$ , we have  $\delta X = -R\delta a/a_c^2$ . Near the threshold, we therefore find that

$$\frac{\delta a}{R} = \frac{a - a_c}{R} \simeq \pm J \sqrt{\Delta_c - \Delta}, \quad (20)$$

with

$$J = \sqrt{\frac{2\partial_{\Delta\Delta} g_\alpha}{X_c^4 \partial_{XX} g_\alpha}}. \quad (21)$$

The symbol  $\pm$  in Eq. (20) accounts for the stable branches (+) and the unstable branches (-) in the reported diagrams (e.g., see Fig. 3). This result, which yields a critical exponent of 1/2 near the existence threshold, is in line with the Landau theory and classical saddle-node bifurcation diagrams.<sup>10,20</sup> It is important to note that the quantity  $J$  that is evaluated at the threshold is only a prefactor that depends on  $X_c$  and  $\alpha$ :

$$J = \sqrt{2} \left\{ X_c^4 \left[ (X_c^2 - 1)^{-3/2} + \alpha^3 (\alpha^2 X_c^2 - 1)^{-3/2} \right] \right\}^{-1/2}. \quad (22)$$

In other words, the exponent of the power-law in Eq. (20) is universal for all minimal surfaces studied here, the prefactor being a function of the considered surface. Figure 17 shows the variations of  $\delta a/R$  with  $\Delta_c - \Delta$  near the threshold for all surfaces.

## V. CONCLUSION

We have described both theoretically and experimentally the existence and stability of minimal surfaces of revolution materialized by soap films. Our investigations point out the significant role played by the boundary conditions on the domains of existence of these fluid structures. We take advantage of axisymmetry to obtain a set of two equations [Eqs. (17)] whose solutions predict the existence thresholds for any studied configuration. We have also illustrated that soap films can exhibit an hysteretic response due to metastability in these systems. A phenomenological two-step mechanism is introduced to account for the fact that the system is then trapped in a local minimum of energy.<sup>13</sup> Finally, we have shown that all studied minimal surfaces in the article exhibit a universal behavior near their existence threshold.

## ACKNOWLEDGMENTS

We thank B. Alstatt for preliminary experiments related to those presented in Sec. II C.

## Appendix: THE PROFILE OF A CATENOID

Here, we provide the standard demonstration of Eq. (1), which gives the profile of a catenoid made of a soap film at equilibrium. Indeed, because of symmetry this profile is entirely described by the function  $\rho(z)$ . The surface energy of the soap film reads

$$E = 2\gamma\Sigma = 2\gamma \int_{\Sigma} 2\pi \rho(z) ds, \quad (A.1)$$

where  $\gamma$  denotes the surface tension and the factor 2 accounts for the presence of two air-liquid interfaces. We write  $ds = \sqrt{d\rho^2 + dz^2} = \sqrt{1 + \rho'^2(z)} dz$  with

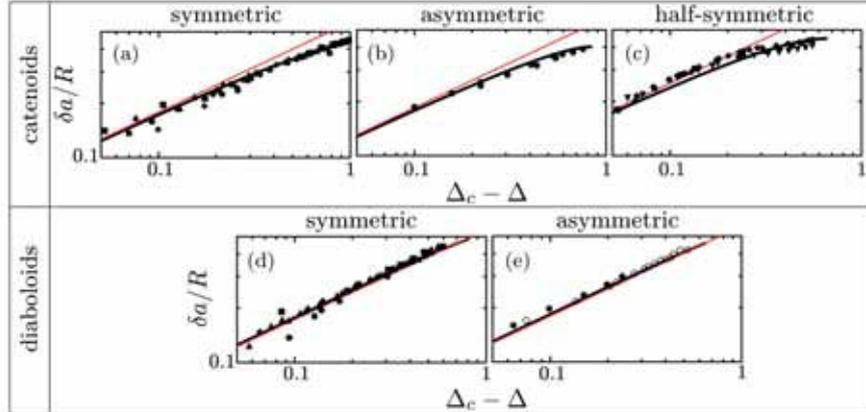


FIG. 17. (Color online) Evolution of  $\delta a/R$  with  $\Delta_c - \Delta$  in the vicinity of the threshold for: (a) symmetric catenoids, (b) an asymmetric catenoid with  $\alpha = 1.2$ , (c) half-symmetric catenoids, (d) symmetric diaboloids, and (e) an asymmetric diaboloid with  $\alpha = 1.2$ . The black and gray (red online) curves correspond, respectively, to the numerical resolution of the boundary conditions and the second-order Taylor series approximation ( $R = R_1$  for asymmetric cases).

$\rho'(z) = d\rho/dz$  in Eq. (A.1) and then minimize this surface energy. By virtue of the variational principle, the Lagrangian of the system  $\mathcal{L} = \rho(z) \sqrt{1 + \rho'^2(z)}$  will satisfy the Euler-Lagrange equation<sup>30</sup>

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \rho} = \frac{d}{dz} \left( \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \rho'} \right). \quad (\text{A.2})$$

Inspired by analytical mechanics, we define the Hamil-

tonian  $\mathcal{H}$  as a Legendre transform of  $\mathcal{L}$ :

$$\mathcal{H} = \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \rho'} \rho' - \mathcal{L}, \quad (\text{A.3})$$

$$= \frac{\rho \rho'^2}{\sqrt{1 + \rho'^2}} - \rho \sqrt{1 + \rho'^2}, \quad (\text{A.4})$$

$$= \frac{-\rho}{\sqrt{1 + \rho'^2}}. \quad (\text{A.5})$$

then yields

$$\frac{d\rho}{\sqrt{(\rho/a)^2 - 1}} = dz, \quad (\text{A.6})$$

and integrating yields the profile of the catenoid at equilibrium [Eq. (1)]:

$$\rho(z) = a \cosh \left( \frac{z}{a} + C \right). \quad (\text{A.7})$$

\* pascal.panizza@univ-rennes1.fr

<sup>1</sup> laurent.courbin@univ-rennes1.fr

<sup>1</sup> J. Plateau, *Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires* (Gauthier-Villars, 1873).

<sup>2</sup> C. Isenberg, *The Science of soap films and soap bubbles* (Dover Publications, 1992).

<sup>3</sup> P. Dutta, S. P. Khastgir, and A. Roy, "Steiner trees and spanning trees in six-pin soap films," *Am. J. Phys.* **78** (2), 215–221 (2010).

<sup>4</sup> P. M. Chaikin and T. C. Lubensky, *Principles of condensed matter physics* (Cambridge University Press, 1995).

<sup>5</sup> F. Otto and B. Rasch, *Finding Form: Towards an Archi-*

*tecture of the Minimal* (Axel Menges, 1996).

<sup>6</sup> L. Spuybroek, *Nox* (Thames & Hudson, 2004).

<sup>7</sup> J. Seiwert, M. Monloubou, B. Dollet, and I. Cantat, "Extension of a Suspended Soap Film: A Homogeneous Dilatation Followed by New Film Extraction," *Phys. Rev. Lett.* **111** (3), 094501-1–5 (2013).

<sup>8</sup> D. T. Thi and A. T. Fomenko, *Minimal Surfaces, Stratified Multivarifolds, and the Plateau Problem* (American Mathematical Society, 1991).

<sup>9</sup> L. Hauswirth and F. Pacard, "Higher genus Riemann minimal surfaces," *Invent. Math.* **169**, 569–620 (2007).

<sup>10</sup> C. Misbah, *Dynamiques complexes et morphogénèse : Introduction aux sciences non linéaires* (Springer-Verlag,

- 2011).
- <sup>11</sup> D. R. Lovett and J. Tilley, "Illustrating phase transitions with soap films," *Am. J. Phys.* **59** (5), 415–421 (1991).
  - <sup>12</sup> L. Durand, "Stability and oscillations of a soap film: an analytic treatment," *Am. J. Phys.* **49** (4), 334–343 (1981).
  - <sup>13</sup> N. Vandewalle, M. Noirhomme, J. Schockmel, E. Mersch, G. Lumay, D. Terwagne, and S. Dorbolo, "Hysteretic behavior in three-dimensional soap-film rearrangements," *Phys. Rev. E* **83** (2), 021403-1–5 (2011).
  - <sup>14</sup> M. Ito and T. Sato, "In situ observation of a soap-film catenoid—a simple educational physics experiment," *Eur. J. Phys.* **31** (2), 357–365 (2010).
  - <sup>15</sup> S. A. Cryer and P. H. Steen, "Collapse of the soap-film bridge: quasistatic description," *J. Colloid Interf. Sci.* **154** (1), 276–288 (1992).
  - <sup>16</sup> Y. J. Chen and P. H. Steen, "Dynamics of inviscid capillary breakup: collapse and pinch-off of a film bridge," *J. Fluid Mech.* **341**, 245–267 (1997).
  - <sup>17</sup> N. D. Robinson and P. H. Steen, "Observations of singularity formation during the capillary collapse and bubble pinch-off of a soap film bridge," *J. Colloid Interf. Sci.* **241** (2), 448–458 (2001).
  - <sup>18</sup> F. Müller and R. Stammarius, "Collapse of catenoid-shaped smectic film," *Europhys. Lett.* **76** (6), 1102–1108 (2006).
  - <sup>19</sup> A. Le Goff, L. Courbin, H. A. Stone, and D. Quéré, "Energy absorption in a bamboo foam," *EPL* **84** (3), 36001-1–5 (2008).
  - <sup>20</sup> L. Euler, *Opera Omnia* (Orell Füssli, 1952).
  - <sup>21</sup> H. Bouasse, *Capillarité - Phénomènes superficiels* (Librairie Delagrave, 1924).
  - <sup>22</sup> Investigations of the formation of these *interfacial* bubbles and the evolution of their size with the parameters at play will be published elsewhere.
  - <sup>23</sup> P.-G. de Gennes, F. Brochard-Wyart, and D. Quéré, *Capillarity and Wetting Phenomena: Drops, Bubbles, Pearls, Waves* (Springer, New York, 2004).
  - <sup>24</sup> More information on a diabolito can be found at, e.g., Wikipedia; <<http://en.wikipedia.org/wiki/Diabolito>>.
  - <sup>25</sup> J.-C. Géminard, A. Zywockinski, F. Caillier, and P. Oswald, "Observation of negative line tension from Plateau border regions in dry foam films," *Phil. Mag. Lett.* **84** (3), 199–204 (2004).
  - <sup>26</sup> S. Besson and G. Debrégeas, "Statics and dynamics of adhesion between two soap bubbles," *Eur. Phys. J. E* **24** (2), 109–117 (2007).
  - <sup>27</sup> A.-L. Biance, A. Delbos, and O. Pitois, "How topological rearrangements and liquid fraction control liquid foam stability," *Phys. Rev. Lett.* **106**, 068301-1–4 (2011).
  - <sup>28</sup> D. Weaire and S. Hutzler, *The Physics of Foams* (Oxford University Press, 2000).
  - <sup>29</sup> L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Statistical Physics* (Pergamon, 1980).
  - <sup>30</sup> J.-L. Lagrange, *Mécanique analytique* (Gauthier-Villars, 1889).



# Bibliographie

- [1] G. K. Batchelor. *An Introduction to Fluid Dynamics*. Cambridge University Press, 2000.
- [2] C. L. M. H. Navier. Mémoire sur les lois du mouvement des fluides. *Mémoires de l'Académie des Sciences de l'Institut de France*, 6 :375–394, 1822.
- [3] G. G. Stokes. *Report on Recent Researches in Hydrodynamics*. Cambridge University Press, 2009.
- [4] L. Euler. Principes généraux du mouvement des fluides. *Mémoires de l'Académie des Sciences de Berlin*, 11 :274–315, 1757.
- [5] D. Bernoulli. *Hydrodynamica, sive De Viribus et Motibus Fluidorum Commentarii. Opus Academicum*. Johann Reinhold Dulsseker, 1738.
- [6] T. Eisner and D. J. Aneshansley. Defense by foot adhesion in a beetle (*Hemisphaerota cyanea*). *Physical Review Letters*, 97(12) :6568–6573, 2000.
- [7] C. Isenberg. *The Science of Soap Films and Soap Bubbles*. Dover Publications, 1992.
- [8] J. A. von Segner. De figuris superficierum fluidarum. *Commentarii Societatis Regiae Scientiarum Göttingensis*, 1 :301–373, 1751.
- [9] F. Hauksbee. *Physicomechanical Experiments on Various Subjects, Containing an Account of Several Surprising « phenomena » Touching Light and Electricity, Producible on the Attrition of Bodies*. R. Brugis, 1709.
- [10] J. Jurin. An account of some experiments shown before the Royal Society ; with an enquiry into the cause of the ascent and suspension of water in capillary tubes. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 30 :739–747, 1719.
- [11] P.-G. de Gennes, F. Brochard-Wyart, and D. Quéré. *Gouttes, bulles, perles et ondes*. Belin, 2002.
- [12] E. Mezger. Loi de variation de la tension superficielle avec la température. *Journal de Physique et le Radium*, 7(10) :303–309, 1946.
- [13] D. Langevin. Micelles and microemulsions. *Annual Review of Physical Chemistry*, 43 :341–369, 1992.

- [14] D. Langevin. Dynamics of surfactant layers. *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 3(6) :600–607, 1998.
- [15] D. Langevin. Influence of interfacial rheology on foam and emulsion properties. *Advances in Colloid and Interface Science*, 88(1-2) :209–222, 2000.
- [16] I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Höhler, O. Pitois, F. Rouyer, and A. Saint-Jalmes. *Les mousses : Structure et dynamique*. Collection Échelles, Belin, 2010.
- [17] H. P. Grace. Dispersion phenomena in high viscosity immiscible fluid systems and application of static mixers as dispersion devices in such systems. *Chemical Engineering Communications*, 14(3-6) :225–277, 1982.
- [18] D. R. Link, S. L. Anna, D. A. Weitz, and H. A. Stone. Geometrically mediated breakup of drops in microfluidic devices. *Physical Review Letters*, 92(5) :054503, 2004.
- [19] M.-C. Jullien, M.-J. Tsang Mui Ching, C. Cohen, L. Ménétrier, and P. Tabeling. Droplet breakup in microfluidic T-junctions at small capillary numbers. *Physics of Fluids*, 21(7) :072001, 2009.
- [20] L. Ménétrier-Deremble and P. Tabeling. Droplet breakup in microfluidic junctions of arbitrary angles. *Physical Review E*, 74(3) :035303, 2006.
- [21] S. Protière, M. Z. Bazant, D. A. Weitz, and H. A. Stone. Droplet breakup in flow past an obstacle : A capillary instability due to permeability variations. *EPL*, 92(5) :54002, 2010.
- [22] J. Eggers and E. Villermaux. Physics of liquid jets. *Reports on Progress in Physics*, 71(3) :036601, 2008.
- [23] É. Guyon, J.-P. Hulin, and L. Petit. *Hydrodynamique physique*. EDP Sciences, 2001.
- [24] M. Van Dyke. *An Album of Fluid Motion*. Parabolic Press, 1982.
- [25] G. I. Taylor. *Low Reynolds Number Flow*. National Committee for Fluid Mechanics Films, Education Development Center, 1961.
- [26] H. Bruus. *Theoretical Microfluidics*. Oxford University Press, 2008.
- [27] J. L. M. Poiseuille. Recherches expérimentales sur le mouvement des liquides dans les tubes de très petit diamètre. *Académie des sciences française*, 9 :433–543, 1844.
- [28] P. Tabeling. *Introduction à la microfluidique*. Collection Échelles, Belin, 2003.
- [29] H. A. Stone, A. D. Stroock, and A. Ajdari. Engineering flows in small devices : Microfluidics toward a lab-on-a-chip. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 36 :381–411, 2004.

- 
- [30] T. M. Squires and S. R. Quake. Microfluidics : Fluid physics at the nanoliter scale. *Reviews of Modern Physics*, 77(3) :977–1026, 2005.
- [31] T. D. Wheeler and A. D. Stroock. The transpiration of water at negative pressures in a synthetic tree. *Nature*, 455 :208–212, 2008.
- [32] X. Noblin, N. O. Rojas, J. Westbrook, C. Llorens, M. Argentina, and J. Dumais. The fern sporangium : A unique catapult. *Science*, 335(6074) :1322, 2012.
- [33] O. Vincent, P. Marmottant, P. A. Quinto-Su, and C.-D. Ohl. Birth and growth of cavitation bubbles within water under tension confined in a simple synthetic tree. *Physical Review Letters*, 108(18) :184502, 2012.
- [34] P. Guillot, P. Panizza, J.-B. Salmon, M. Joanicot, A. Colin, C.-H. Bruneau, and T. Colin. Viscosimeter on a microfluidic chip. *Langmuir*, 22(14) :6438–6445, 2006.
- [35] W. Engl, K. Ohata, P. Guillot, A. Colin, and P. Panizza. Selection of two-phase flow patterns at a simple junction in microfluidic devices. *Physical Review Letters*, 96(13) :134505, 2006.
- [36] R. Seemann, M. Brinkmann, T. Pfohl, and S. Herminghaus. Droplet based microfluidics. *Reports on Progress in Physics*, 75(1) :016601, 2012.
- [37] T. Thorsen, R. W. Roberts, F. H. Arnold, and S. R. Quake. Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device. *Physical Review Letters*, 86(18) :4163–4166, 2001.
- [38] T. Nisisako, T. Torii, and T. Higuchi. Novel microreactors for functional polymer beads. *Chemical Engineering Journal*, 101(1-3) :23–29, 2004.
- [39] B. Zheng, J. D. Tice, and R. F. Ismagilov. Formation of droplets of alternating composition in microfluidic channels and applications to indexing of concentrations in droplet-based assays. *Analytical Chemistry*, 76(17) :4977–4982, 2004.
- [40] B. Zheng, L. S. Roach, and R. F. Ismagilov. Screening of protein crystallization conditions on a microfluidic chip using nanoliter-size droplets. *Journal of the American Chemical Society*, 125(37) :11170–11171, 2003.
- [41] P. Guillot and A. Colin. Stability of parallel flows in a microchannel after a T junction. *Physical Review E*, 72(6) :066301, 2005.
- [42] P. Garstecki, M. J. Fuerstman, H. A. Stone, and G. M. Whitesides. Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction-scaling and mechanism of break-up. *Lab on a Chip*, 6(3) :437–446, 2006.
- [43] T. Glawdel, C. Elbuken, and C. L. Ren. Droplet formation in microfluidic T-junction generators operating in the transitional regime. I. Experimental observations. *Physical Review E*, 85(1) :016322, 2012.

- [44] T. Glawdel, C. Elbuken, and C. L. Ren. Droplet formation in microfluidic T-junction generators operating in the transitional regime. II. Modeling. *Physical Review E*, 85(1) :016323, 2012.
- [45] T. Glawdel, C. Elbuken, and C. L. Ren. Droplet formation in microfluidic T-junction generators operating in the transitional regime. III. Dynamic surfactant effects. *Physical Review E*, 86(2) :026308, 2012.
- [46] P. Garstecki, I. Gitlin, W. DiLuzio, G. M. Whitesides, E. Kumacheva, and H. A. Stone. Formation of monodisperse bubbles in a microfluidic flow-focusing device. *Applied Physics Letters*, 85(13) :2649–2651, 2004.
- [47] P. Guillot, A. Colin, A. S. Utada, and A. Ajdari. Stability of a jet in confined pressure-driven biphasic flows at low Reynolds numbers. *Physical Review Letters*, 99(10) :104502, 2007.
- [48] S. L. Anna, N. Bontoux, and H. A. Stone. Formation of dispersions using « flow focusing » in microchannels. *Applied Physics Letters*, 82(3) :364–366, 2003.
- [49] R. Dreyfus, P. Tabeling, and H. Willaime. Ordered and disordered patterns in two-phase flows in microchannels. *Physical Review Letters*, 90(14) :144505, 2003.
- [50] Y. Son, N. S. Martys, J. G. Hagedorn, and K. B. Migler. Suppression of capillary instability of a polymeric thread via parallel plate confinement. *Macromolecules*, 36(15) :5825–5833, 2003.
- [51] M. P. Dupin, I. Halliday, and C. M. Care. Simulation of a microfluidic flow-focusing device. *Physical Review E*, 73(5) :055701, 2006.
- [52] L. Yobas, S. Martens, W.-L. Ong, and N. Ranganathan. High-performance flow-focusing geometry for spontaneous generation of monodispersed droplets. *Lab on a Chip*, 6(8) :1073–1079, 2006.
- [53] W. Engl. *Gestion de gouttes sur un réseau millifluidique : exemples d'analyse haut débit et de mise en forme de matériaux*. PhD thesis, Université Bordeaux 1, 2006.
- [54] P. Panizza, A. Amon, and L. Courbin. Comment circulent des gouttes dans un laboratoire sur puce? *Reflets de la Physique*, 36 :4–9, 2013.
- [55] N. Bremond, A. R. Thiam, and J. Bibette. Decompressing emulsion droplets favors coalescence. *Physical Review Letters*, 100(2) :024501, 2008.
- [56] N. Bremond and J. Bibette. Exploring emulsion science with microfluidics. *Soft Matter*, 8(41) :10549–10559, 2012.
- [57] J.-C. Baret, F. Kleinschmidt, A. El Harrak, and A. D. Griffiths. Kinetic aspects of emulsion stabilization by surfactants : A microfluidic analysis. *Langmuir*, 25(11) :6088–6093, 2009.

- [58] Y. Skhiri, P. Gruner, B. Semin, Q. Brosseau, D. Pekin, L. Mazutis, V. Goust, F. Kleinschmidt, A. El Harrak, J. B. Hutchison, E. Mayot, J.-F. Bartolo, A. D. Griffiths, V. Taly, and J.-C. Baret. Dynamics of molecular transport by surfactants in emulsions. *Soft Matter*, 8(41) :10618–10627, 2012.
- [59] S. Xu, Z. Nie, M. Seo, P. Lewis, E. Kumacheva, H. A. Stone, P. Garstecki, D. B. Weibel, I. Gitlin, and G. M. Whitesides. Generation of monodisperse particles by using microfluidics : Control over size, shape, and composition. *Angewandte Chemie*, 117(5) :734–738, 2005.
- [60] P. Panizza, W. Engl, C. Hany, and R. Backov. Controlled production of hierarchically organized large emulsions and particles using assemblies on line of co-axial flow devices. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical properties and Engineering Aspects*, 312(1) :24–31, 2008.
- [61] Z. Nie, S. Xu, M. Seo, P. C. Lewis, and E. Kumacheva. Polymer particles with various shapes and morphologies produced in continuous microfluidic reactors. *Journal of the American Chemical Society*, 127(22) :8058–8063, 2005.
- [62] D. Dendukuri, K. Tsoi, T. A. Hatton, and P. S. Doyle. Controlled synthesis of nonspherical microparticles using microfluidics. *Langmuir*, 21(6) :2113–2116, 2005.
- [63] D. Dendukuri and P. S. Doyle. The synthesis and assembly of polymeric microparticles using microfluidics. *Advanced Materials*, 21(41) :4071–4086, 2009.
- [64] G. A. Gross, C. Hamann, P. M. Günther, and J. M. Köhler. Formation of polymer and nanoparticle doped polymer minirods by use of the microsegmented flow principle. *Chemical Engineering & Technology*, 30 :341–346, 2007.
- [65] W. Engl, M. Tachibana, P. Panizza, and R. Backov. Millifluidic as a versatile reactor to tune size and aspect ratio of large polymerized objects. *International Journal of Multiphase Flow*, 33(8) :897–903, 2007.
- [66] D. Pluchon. *Conception de micro-résonateurs 2D et 3D en photonique intégrée sur polymère : de l'approche théorique à la caractérisation optique*. PhD thesis, Université de Rennes 1, 2012.
- [67] A. S. Utada, É. Lorenceau, D. R. Link, P. D. Kaplan, H. A. Stone, and D. A. Weitz. Monodisperse double emulsions generated from a microcapillary device. *Science*, 308(5721) :537–541, 2005.
- [68] Z. Nie, W. Li, M. Seo, S. Xu, and E. Kumacheva. Janus and ternary particles generated by microfluidic synthesis : Design, synthesis, and self-assembly. *Journal of the American Chemical Society*, 128(29) :9408–9412, 2006.
- [69] C.-H. Chen, R. K. Shah, A. R. Abate, and D. A. Weitz. Janus particles templated from double emulsion droplets generated using microfluidics. *Langmuir*, 25(8) :4320–4323, 2009.

- [70] A. Fernández-Nieves, G. Cristobal, V. Garcés-Chávez, G. C. Spalding, K. Dhoklaka, and D. A. Weitz. Optically anisotropic colloids of controllable shape. *Advanced Materials*, 17(6) :680–684, 2005.
- [71] L.-Y. Chu, A. S. Utada, R. K. Shah, J.-W. Kim, and D. A. Weitz. Controllable monodisperse multiple emulsions. *Angewandte Chemie*, 46(47) :8970–8974, 2007.
- [72] J. Wan, A. Bick, M. Sullivan, and H. A. Stone. Controllable microfluidic production of microbubbles in water-in-oil emulsions and the formation of porous microparticles. *Advanced Materials*, 20(17) :3314–3318, 2008.
- [73] S. Okushima, T. Nisisako, T. Torii, and T. Higuchi. Controlled production of monodisperse double emulsions by two-step droplet breakup in microfluidic devices. *Langmuir*, 20(23) :9905–9908, 2004.
- [74] M. Abkarian, M. Faivre, and H. A. Stone. High-speed microfluidic differential manometer for cellular-scale hydrodynamics. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 103(3) :538–542, 2005.
- [75] S. D. Hudson, J. T. Cabral, W. J. Goodrum, K. L. Beers, and E. J. Amis. Microfluidic interfacial tensiometry. *Applied Physics Letters*, 87(8) :081905, 2005.
- [76] J. T. Cabral and S. D. Hudson. Microfluidic approach for rapid multicomponent interfacial tensiometry. *Lab on a Chip*, 6(3) :427–436, 2006.
- [77] H. A. Stone. Dynamics of drop deformation and breakup in viscous fluids. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 26(1) :65–102, 1994.
- [78] W. Engl, M. Tachibana, A. Colin, and P. Panizza. A droplet-based high-throughput tubular platform to extract rate constants of slow chemical reactions. *Chemical Engineering Science*, 63(6) :1692–1695, 2008.
- [79] M. Joanicot and A. Ajdari. Droplet control for microfluidics. *Science*, 309(5736) :887–888, 2005.
- [80] H. Song, J. D. Tice, and R. F. Ismagilov. A microfluidic system for controlling reaction networks in time. *Angewandte Chemie International Edition*, 42(7) :768–772, 2003.
- [81] H. Lhuissier. *Nappes, trous, ligaments et gouttes*. PhD thesis, Université de Provence - Aix Marseille 1, 2011.
- [82] D. R. Link, E. Grasland-Mongrain, A. Duri, F. Sarrazin, Z. Cheng, G. Cristobal, M. Marquez, and D. A. Weitz. Electric control of droplets in microfluidic devices. *Angewandte Chemie International Edition*, 45(16) :2556–2560, 2006.
- [83] T. H. Ting, Y. F. Yap, N.-T. Nguyen, T. N. Wong, J. C. K. Chai, and L. Yobas. Thermally mediated breakup of drops in microchannels. *Applied Physics Letters*, 89(23) :234101, 2006.

- 
- [84] J.-P. Delville, A. Casner, R. Wunenburger, and I. Brevik. *Optical Deformability of Fluid Interfaces*. Nova Science Publishers, 2009.
- [85] B. Issenmann. *Déformations d'interfaces fluides par la pression de radiation acoustique*. PhD thesis, Université Bordeaux 1, 2007.
- [86] M. Samie, A. Salari, and M. B. Shafii. Breakup of microdroplets in asymmetric T junctions. *Physical Review E*, 87(5) :053003, 2013.
- [87] D. A. Sessoms, M. Belloul, W. Engl, M. Roché, L. Courbin, and P. Panizza. Droplet motion in microfluidic networks : Hydrodynamic interactions and pressure-drop measurements. *Physical Review E*, 80(1) :016317, 2009.
- [88] M. Belloul, W. Engl, A. Colin, P. Panizza, and A. Ajdari. Competition between local collisions and collective hydrodynamic feedback controls traffic flows in microfluidic networks. *Physical Review Letters*, 102(19) :194502, 2009.
- [89] D. A. Sessoms, A. Amon, L. Courbin, and P. Panizza. Complex dynamics of droplet traffic in a bifurcating microfluidic channel : Periodicity, multistability, and selection rules. *Physical Review Letters*, 105(15) :154501, 2010.
- [90] T. Glawdel, C. Elbuken, and C. L. Ren. Passive droplet trafficking at microfluidic junctions under geometric and flow asymmetries. *Lab on a Chip*, 11(22) :3774–3784, 2011.
- [91] M. J. Madou. *Fundamentals of Microfabrication and Nanotechnology, Third Edition, Three-Volume Set*. CRC Press, 2011.
- [92] J. C. McDonald, D. C. Duffy, J. R. Anderson, D. T. Chiu, H. Wu, O. J. A. Schueller, and G. M. Whitesides. Fabrication of microfluidic systems in poly(dimethylsiloxane). *Electrophoresis*, 21(1) :27–40, 2000.
- [93] W. Engl, M. Roché, A. Colin, P. Panizza, and A. Ajdari. Droplet traffic at a simple junction at low capillary numbers. *Physical Review Letters*, 95(20) :208304, 2005.
- [94] T. Cubaud. Deformation and breakup of high-viscosity droplets with symmetric microfluidic cross flows. *Physical Review E*, 80(2) :026307, 2009.
- [95] V. Labrot, M. Schindler, P. Guillot, A. Colin, and M. Joanicot. Extracting the hydrodynamic resistance of droplets from their behavior in microchannel networks. *Biomicrofluidics*, 3(1) :012804, 2009.
- [96] S. Jakiela, P. M. Korczyk, S. Makulska, O. Cybulski, and P. Garstecki. Discontinuous transition in a laminar fluid flow : A change of flow topology inside a droplet moving in a micron-size channel. *Physical Review Letters*, 108(13) :134501, 2012.
- [97] A. M. Jimenez, M. Roché, M. Pinot, P. Panizza, L. Courbin, and Z. Gueroui. Towards high throughput production of artificial egg oocytes using microfluidics. *Lab on a Chip*, 11(3) :429–434, 2011.

- [98] L. Salkin, L. Courbin, and P. Panizza. Microfluidic breakups of confined droplets against a linear obstacle : The importance of the viscosity contrast. *Physical Review E*, 86(3) :036317, 2012.
- [99] P.-S. de Laplace. *Mécanique céleste*. Imprimerie Royale, 1846.
- [100] L. Landau and B. Levich. Dragging of a liquid by a moving plate. *Acta Physicochimica (USSR)*, 17 :42–54, 1942.
- [101] F. P. Bretherton. The motion of long bubbles in tubes. *Journal of Fluid Mechanics*, 10(2) :166–188, 1961.
- [102] P. G. Saffman and G. I. Taylor. The penetration of a fluid into a porous medium or Hele-Shaw cell containing a more viscous liquid. *Proceedings of the Royal Society A*, 245(1242) :312–329, 1958.
- [103] A. R. Abate and D. A. Weitz. Single-layer membrane valves for elastomeric microfluidic devices. *Applied Physics Letters*, 92(24) :243509, 2008.
- [104] A. Vananroye, P. Van Puyvelde, and P. Moldenaers. Effect of confinement on droplet breakup in sheared emulsions. *Langmuir*, 22(9) :3972–3974, 2006.
- [105] L. Salkin, A. Schmit, L. Courbin, and P. Panizza. Passive breakups of isolated drops and one-dimensional assemblies of drops in microfluidic geometries : Experiments and models. *Lab on a Chip*, 13(15) :3022–3032, 2013.
- [106] A. Schmit, L. Salkin, L. Courbin, and P. Panizza. Complex breakup dynamics induced by drop-to-drop interactions in flows of droplet trains against micro-obstacles. *En cours de soumission*, 2014.
- [107] T. Beatus, T. Tlusty, and R. Bar-Ziv. Phonons in a one-dimensional microfluidic crystal. *Nature Physics*, 2 :743–748, 2006.
- [108] T. Beatus, R. Bar-Ziv, and T. Tlusty. Anomalous microfluidic phonons induced by the interplay of hydrodynamic screening and incompressibility. *Physical Review Letters*, 99(12) :124502, 2007.
- [109] T. Beatus, R. H. Bar-Ziv, and T. Tlusty. The physics of 2D microfluidic droplet ensembles. *Physics Reports*, 516(3) :103–145, 2012.
- [110] J.-B. Fleury, U. D. Schiller, S. Thutupalli, G. Gompper, and R. Seemann. Mode coupling of phonons in a dense one-dimensional microfluidic crystal. *arXiv (Soft Condensed Matter)*, 2013.
- [111] A. Amon, A. Schmit, L. Salkin, L. Courbin, and P. Panizza. Path selection rules for droplet trains in single-lane microfluidic networks. *Physical Review E*, 88(1) :013012, 2013.
- [112] F. Behroozi. Soap bubbles in paintings : Art and science. *American Journal of Physics*, 76(12) :1087–1091, 2008.
- [113] D. Erasmus. *Erasmi Roterodami Adagiorum Chiliades tres, ac centuriae fere totidem*. Ludwig Hornken, 1514.

- 
- [114] J. Cats. *Alle de Wercken van Jacob Cats : Houwelcyk*. De Erven J.J. Tijl, 1862.
- [115] C. V. Boys. *Soap bubbles, their colors and forces which mold them*. Dover Publications, 1959.
- [116] H. Bouasse. *Capillarité - Phénomènes superficiels*. Librairie Delagrave, 1924.
- [117] L. Duchemin. *Quelques problèmes fortement non-linéaires de surface libre et leur résolution numérique*. PhD thesis, Université d’Aix-Marseille II, 2001.
- [118] F. Seychelles, Y. Amarouchène, M. Bessafi, and H. Kellay. Thermal convection and emergence of isolated vortices in soap bubbles. *Physical Review Letters*, 100(14) :144501, 2008.
- [119] J. C. Bird, R. de Ruiter, L. Courbin, and H. A. Stone. Daughter bubble cascades produced by folding of ruptured thin films. *Nature*, 465(7299) :759–762, 2010.
- [120] F. Pigeonneau, D. Martin, and O. Mario. Shrinkage of oxygen bubble rising in a molten glass. *Chemical Engineering Science*, 65(10) :3158–3168, 2010.
- [121] G. Pianet, S. Vincent, J. Leboi, J.-P. Caltagirone, and M. Anderhuber. Simulating compressible gas bubbles with a smooth volume tracking 1-fluid method. *International Journal of Multiphase Flow*, 36(4) :273–283, 2010.
- [122] M. A. Rutgers, X. L. Wu, and W. B. Daniel. Conducting fluid dynamics experiments with vertically falling soap films. *Review of Scientific Instruments*, 72(7) :3025–3037, 2001.
- [123] L. Euler. *Opera Omnia*. Orell Füssli, 1952.
- [124] J.-L. Lagrange. *Mécanique analytique*. Gauthier-Villars, 1889.
- [125] D. T. Thi and A. T. Fomenko. *Minimal Surfaces, Stratified Multivarifolds, and the Plateau Problem*. Volume 84, Translations of Mathematical Monographs, American Mathematical Society, 1991.
- [126] L. Hauswirth and F. Pacard. Embedded minimal surfaces with finite genus and two limits ends. *Inventiones Mathematicae*, 169(3) :569–620, 2007.
- [127] J.-C. Géminard, A. Zywockinski, F. Caillier, and P. Oswald. Observation of negative line tension from Plateau borders regions in dry soap films. *Philosophical Magazine Letters*, 84(3) :199–204, 2004.
- [128] J. Seiwert, M. Monloubou, B. Dollet, and I. Cantat. Extension of a suspended soap film : A homogeneous dilatation followed by new film extraction. *Physical Review Letters*, 111(9) :094501, 2013.
- [129] P. M. Chaikin and T. C. Lubensky. *Principles of condensed matter physics*. Cambridge University Press, 1995.
- [130] M. Nio and L. Spuybroek. X and Y and Z ? a manual. *Archis*, 1995.

- [131] F. Otto and B. Rasch. *Finding Form : Towards an Architecture of the Minimal*. Axel Menges, 1996.
- [132] L. Spuybroek. *Nox*. Thames & Hudson, 2005.
- [133] P. Dutta, S. P. Khastgir, and A. Roy. Steiner trees and spanning trees in six-pin soap films. *American Journal of Physics*, 78(2) :215–221, 2010.
- [134] D. R. Lovett and J. Tilley. Illustrating phase transitions with soap films. *American Journal of Physics*, 59(5) :415–421, 1991.
- [135] M. Ito and T. Sato. In-situ observation of a soap film catenoid - a simple educational physics experiment. *European Journal of Physics*, 31(2) :357–365, 2010.
- [136] A. Le Goff, L. Courbin, H. A. Stone, and D. Quéré. Energy absorption in a bamboo foam. *EPL*, 84(3) :36001, 2008.
- [137] J.-M. Allain and M. Ben Amar. Des membranes qui bullent. *Bulletin de la SFP*, 151 :15–18, 2005.
- [138] L. Durand. Stability and oscillations of a soap film : An analytic treatment. *American Journal of Physics*, 49(4) :334–343, 1981.
- [139] S. A. Cryer and P. H. Steen. Collapse of the soap-film bridge : Quasistatic description. *Journal of Colloid and Interface Science*, 154(1) :276–288, 1992.
- [140] J. Plateau. *Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires*. Gauthier-Villars, 1873.
- [141] P. L. du Noüy. An interfacial tensiometer for universal use. *The Journal of General Physiology*, 7(5) :625–631, 1925.
- [142] K. Lunkenheimer and K.-D. Wantke. Determination of the surface tension of surfactant solutions applying the method of Lecomte du Noüy (ring tensiometer). *Colloid and Polymer Science*, 259(3) :354–366, 1981.
- [143] S. Besson and G. Debrégeas. Statics and dynamics of adhesion between two soap bubbles. *European Physical Journal E*, 24(2) :109–117, 2007.
- [144] A.-L. Biance, A. Delbos, and O. Pitois. How topological rearrangements and liquid fraction control liquid foam stability. *Physical Review Letters*, 106(6) :068301, 2011.
- [145] D. Weaire and S. Hutzler. *The Physics of Foams*. Oxford University Press, 2000.
- [146] L. Salkin, A. Schmit, L. Courbin, and P. Panizza. Influence of boundary conditions on the existence and stability of minimal surfaces of revolution made with soap films. *American Journal of Physics*, à paraître, 2014.

- [147] N. Vandewalle, M. Noirhomme, J. Schockmel, E. Mersch, G. Lumay, D. Terwagne, and S. Dorbolo. Hysteretic behavior in three-dimensional soap film rearrangements. *Physical Review E*, 83(2) :021403, 2011.
- [148] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Statistical Physics*. Pergamon, 1980.
- [149] C. Misbah. *Dynamiques complexes et morphogénèse : Introduction aux sciences non linéaires*. Springer, 2011.
- [150] S. Hutzler, M. Saadatfar, A. van der Net, D. Weaire, and S. J. Cox. The dynamics of a topological change in a system of soap films. *Colloids and Surfaces A*, 323(1-3) :123–131, 2008.
- [151] S. C. Xu, L. W. Chang, and Lan Xu. Analysis of instability of a cylindrical soap film of finite dimensions. *Langmuir*, 14(2) :533–535, 1998.
- [152] D. E. Moulton and J. A. Pelesko. Theory and experiment for soap-film bridge in an electric field. *Journal of Colloid and Interface Science*, 322(1) :252–262, 2008.
- [153] Y. J. Chen and P. H. Steen. Dynamics of inviscid capillary breakup : Collapse and pinchoff of a film bridge. *Journal of Fluid Mechanics*, 341 :245–267, 1997.
- [154] N. D. Robinson and P. H. Steen. Observations of singularity formation during the capillary collapse and bubble pinch-off of a soap film bridge. *Journal of Colloid and Interface Science*, 241(2) :448–458, 2001.
- [155] F. Müller and R. Stannarius. Collapse of catenoid-shaped smectic films. *Europhysics Letters*, 76(6) :1102–1108, 2006.
- [156] C. Clasen, J. Bico, V. M. Entov, and G. H. McKinley. « Gobbling drops » : The jetting-dripping transition in flows of polymer solutions. *Journal of Fluid Mechanics*, 636 :5–40, 2009.
- [157] G. Debrégeas, P. Martin, and F. Brochard-Wyart. Viscous bursting of suspended films. *Physical Review Letters*, 75(21) :3886–3889, 1995.
- [158] G. Debrégeas, P.-G. de Gennes, and F. Brochard-Wyart. The life and death of « bare » viscous bubbles. *Science*, 279(5357) :1704–1707, 1998.
- [159] M. Le Merrer, J. Seiwert, D. Quéré, and C. Clanet. Shapes of hanging viscous filaments. *EPL*, 84(5) :56004, 2008.
- [160] J. Seiwert. *Entraînements visqueux*. PhD thesis, École Polytechnique, 2010.
- [161] É. Raphaël and P.-G. de Gennes. Capillary gravity waves caused by a moving disturbance : Wave resistance. *Physical Review E*, 53(4) :3448–3455, 1996.
- [162] G. I. Taylor. The dynamics of thin sheets of fluid. II. Waves on fluid sheets. *Proceedings of the Royal Society A*, 253(1274) :296–312, 1959.
- [163] A. Boudaoud. *Membranes élastiques et capillaires : instabilités, singularités et auto-adaptation*. PhD thesis, Université Paris VI, 2001.

- [164] Y. Couder, J.-M. Chomaz, and M. Rabaud. On the hydrodynamics of soap films. *Physica D*, 37(1-3) :384–405, 1989.
- [165] V. O. Afenchenko, A. B. Ezersky, S. V. Kiyashko, M. I. Rabinovich, and P. D. Weidman. The generation of two-dimensional vortices by transverse oscillation of a soap film. *Physics of Fluids*, 10(2) :390–399, 1998.
- [166] B. Derjaguin. Thickness of liquid layer adhering to walls of vessels on their emptying and the theory of photo- and motion picture film coating. *Doklady of the Academy of Sciences of the USSR*, 39 :13–19, 1943.
- [167] K. J. Mysels, K. Shinoda, and S. Frankel. *Soap films : Study of Their Thinning and a Bibliography*. Pergamon, 1959.
- [168] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Fluid Mechanics*. Pergamon, 1959.
- [169] I. B. Ivanov and D. S. Dimitrov. *Thin Liquid Films*. Marcel Dekker, 1988.
- [170] A. A. Sonin, A. Bonfillon, and D. Langevin. Role of surface elasticity in the drainage of soap films. *Physical Review Letters*, 71(14) :2342–2345, 1993.
- [171] H. N. Oguz, A. Prosperetti, and A. R. Kolaini. Air entrapment by a falling water mass. *Journal of Fluid Mechanics*, 294 :181–207, 1995.
- [172] S. T. Thoroddsen, T. G. Etoh, K. Takehara, N. Ootsuka, and Y. Hatsuki. The air bubble entrapped under a drop impacting on a solid surface. *Journal of Fluid Mechanics*, 545 :203–212, 2005.
- [173] W. Bouwhuis, R. C. A. van der Veen, T. Tran, D. L. Keij, K. G. Winkels, I. R. Peters, D. van der Meer, C. Sun, J. H. Snoeijer, and D. Lohse. Maximal air bubble entrainment at liquid-drop impact. *Physical Review Letters*, 109(26) :264501, 2012.
- [174] L. Xu, W. W. Zhang, and S. R. Nagel. Drop splashing on a dry smooth surface. *Physical Review Letters*, 94(18) :184505, 2005.
- [175] L. Xu, L. Barcos, and S. R. Nagel. Splashing of liquids : Interplay of surface roughness with surrounding gas. *Physical Review E*, 76(6) :066311, 2007.
- [176] S. Mandre, M. Mani, and M. P. Brenner. Precursors to splashing of liquid droplets on a solid surface. *Physical Review Letters*, 102(13) :134502, 2009.
- [177] M. Mani, S. Mandre, and M. P. Brenner. Events before droplet splashing on a solid surface. *Journal of Fluid Mechanics*, 647 :163–185, 2010.
- [178] S. Mandre and M. P. Brenner. The mechanism of a splash on a dry solid surface. *Journal of Fluid Mechanics*, 690 :148–172, 2012.
- [179] J. Eggers. Air entrainment through free-surface cusps. *Physical Review Letters*, 86(19) :4290–4293, 2001.
- [180] É. Lorenceau, D. Quéré, and J. Eggers. Air entrainment by a viscous jet plunging into a bath. *Physical Review Letters*, 93(25) :254501, 2004.

- 
- [181] A. Marchand, T. S. Chan, J. H. Snoeijer, and B. Andreotti. Air entrainment by contact lines of a solid plate plunged into a viscous fluid. *Physical Review Letters*, 108(20) :204501, 2012.
- [182] D. Y. C. Chan, E. Klaseboer, and R. Manica. Theory of non-equilibrium force measurements involving deformable drops and bubbles. *Advances in Colloid and Interface Science*, 165(2) :70–90, 2011.
- [183] R. F. Tabor, R. Manica, D. Y. C. Chan, F. Grieser, and R. R. Dagastine. Repulsive van der Waals forces in soft matter : Why bubbles do not stick to walls. *Physical Review Letters*, 106(6) :064501, 2011.
- [184] R. F. Tabor, C. Wu, H. Lockie, R. Manica, D. Y. C. Chan, F. Grieser, and R. R. Dagastine. Homo- and hetero-interactions between air bubbles and oil droplets measured by atomic force microscopy. *Soft Matter*, 7(19) :8977–8983, 2011.
- [185] Y. Couder, E. Fort, C.-H. Gautier, and A. Boudaoud. From bouncing to floating : Noncoalescence of drops on a fluid bath. *Physical Review Letters*, 94(17) :177801, 2005.
- [186] J. Froissart. *L’Espinette amoureuse*. Librairie Klincksieck, 1962.
- [187] M. A. Rutgers, X.-L. Wu, R. Bhagavatula, A. A. Petersen, and W. I. Goldburg. Two-dimensional velocity profiles and laminar boundary layers in flowing soap films. *Physics of Fluids*, 8(11) :2847–2854, 1996.
- [188] Y. Amarouchène and H. Kellay. Conformation statistics of a deformable material line in two-dimensional turbulence. *Physical Review Letters*, 95(5) :054501, 2005.
- [189] I. Kim and X. L. Wu. Tunneling of micron-sized droplets through soap films. *Physical Review E*, 82(2) :026313, 2010.
- [190] A. S. Utada, A. Fernandez-Nieves, J. M. Gordillo, and D. A. Weitz. Absolute instability of a liquid jet in a coflowing stream. *Physical Review Letters*, 100(1) :014502, 2008.
- [191] J. M. Kendall. Experiments on annular liquid jet instability and on the formation of liquid shells. *Physics of Fluids*, 29(7) :2086–2094, 1986.
- [192] A. S. Utada, A. Fernandez-Nieves, H. A. Stone, and D. A. Weitz. Dripping to jetting transitions in coflowing liquid streams. *Physical Review Letters*, 99(9) :094502, 2007.
- [193] G. Horn and M. W. Thring. Angle of spread of free jets. *Nature*, 178(4526) :205–206, 1956.
- [194] S. B. Pope. *Turbulent Flows*. Cambridge University Press, 2000.

- [195] O. Reynolds. *An Experimental Investigation of the Circumstances Which Determine Whether the Motion of Water in Parallel Channels Shall Be Direct or Sinuous and of the Law of Resistance in Parallel Channels*. Philosophical Transactions of the Royal Society of London, 1883.
- [196] T. Young. *Outlines of Experiments and Inquiries Respecting Sound and Light*. Philosophical Transactions of the Royal Society of London, 1800.
- [197] I. Cohen, P. M. Brenner, J. Eggers, and S. R. Nagel. Two fluid drop snap-off problem : Experiments and theory. *Physical Review Letters*, 83(6) :1147–1150, 1999.
- [198] I. Cohen and S. R. Nagel. Testing for scaling behavior dependence on geometrical and fluid parameters in the two fluid drop snap-off problem. *Physics of Fluids*, 13(12) :3533–3541, 2001.
- [199] D. Bonn, J. Eggers, J. Indekeu, J. Meunier, and É. Rolley. Wetting and spreading. *Reviews of Modern Physics*, 81(2) :739–805, 2009.
- [200] J. Lopez, C. A. Miller, and E. Ruckenstein. Spreading kinetics of liquid drops on solids. *Journal of Colloid and Interface Science*, 56(3) :460–468, 1976.
- [201] L. H. Tanner. The spreading of silicone oil drops on horizontal surfaces. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 12(9) :1473, 1979.
- [202] H. E. Huppert. The propagation of two-dimensional and axisymmetric viscous gravity currents over a rigid horizontal surface. *Journal of Fluid Mechanics*, 121 :43–58, 1982.
- [203] P.-G. de Gennes. Wetting : Statics and dynamics. *Reviews of Modern Physics*, 57(3) :827–863, 1985.
- [204] A.-M. Cazabat and M. A. Cohen Stuart. Dynamics of wetting : Effects of surface roughness. *The Journal of Physical Chemistry*, 90(22) :5845–5849, 1986.
- [205] A.-L. Biance, C. Clanet, and D. Quéré. First steps in the spreading of a liquid droplet. *Physical Review E*, 69(1) :016301, 2004.
- [206] J. C. Bird, S. Mandre, and H. A. Stone. Short-time dynamics of partial wetting. *Physical Review Letters*, 100(23) :234501, 2008.
- [207] K. G. Winkels, J. H. Weijs, A. Eddi, and J. H. Snoeijer. Initial spreading of low-viscosity drops on partially wetting surfaces. *Physical Review E*, 85(5) :055301, 2012.
- [208] L. Courbin, É. Denieul, É. Dressaire, M. Roper, A. Ajdari, and H. A. Stone. Imbibition by polygonal spreading on microdecorated surfaces. *Nature Materials*, 6 :661–664, 2007.
- [209] D. Quéré. Wetting and roughness. *Annual Review of Materials Research*, 38 :71–99, 2008.

- 
- [210] A. Eddi, K. G. Winkels, and J. H. Snoeijer. Short time dynamics of viscous drop spreading. *Physics of Fluids*, 25(1) :013102, 2013.
- [211] S. Douezan, K. Guevorkian, R. Naouar, S. Dufour, D. Cuvelier, and F. Brochard-Wyart. Spreading dynamics and wetting transition of cellular aggregates. *Physical Review E*, 108(18) :7315–7320, 2011.
- [212] G. I. Taylor. The formation of a blast wave by a very intense explosion. *Proceedings of the Royal Society of London*, 201(1065) :159–186, 1950.
- [213] S. Arscott. Wetting of soap bubbles on hydrophilic, hydrophobic, and superhydrophobic surfaces. *Applied Physics Letters*, 102(25) :254103, 2013.
- [214] O. V. Voinov. Hydrodynamics of wetting. *Fluid Dynamics*, 11(5) :714–721, 1976.
- [215] R. G. Cox. The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. Part 1. Viscous flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 168 :169–194, 1986.
- [216] M. Faraday. On the forms and states assumed by fluids in contact with vibrating elastic surfaces. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 121 :319–340, 1831.
- [217] T. B. Benjamin and F. Ursell. The stability of the plane free surface of a liquid in vertical periodic motion. *Proceedings of the Royal Society A*, 225(1163) :505–515, 1954.
- [218] X. Noblin. *Mouillage et dé mouillage inertiels : triplons, flaques vibrées, ondes de chocs*. PhD thesis, Université Paris VI, 2004.
- [219] K. D. Nguyem Thu Lam and H. Caps. Effect of a capillary meniscus on the Faraday instability threshold. *The European Physical Journal E*, 34(112), 2011.
- [220] G. Couarraze and J.-L. Grossiord. *Initiation à la rhéologie*. Lavoisier - Tec & Doc, 1991.