Dynamique de bulles dans des fluides rhéologiquement complexes

Denis Funfschilling

▶ **To cite this version:**

Denis Funfschilling. Dynamique de bulles dans des fluides rhéologiquement complexes. Physique [physics]. Institut National Polytechnique de Lorraine, 1999. Français. NNT : 1999INPL084N . tel-01749911

HAL Id: tel-01749911
https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749911

Submitted on 29 Mar 2018

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.

UNIVERSITÉ DE LORRAINE

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

136019 4129

98INPL084N

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE
Ecole Nationale Supérieure des Industries Chimiques

CM 1999 FUNFSCHILLING, D.

Dynamique de bulles dans des fluides rhéologiquement complexes

Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois

Thèse présentée en vue de l'obtention du titre de
Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine

par Denis Funfschilling

Soutenue publiquement le 30 septembre 1999 devant la commission d'examen :

MM.	**M. Lance**	Rapporteur
	C. Gourdon	Rapporteur
	L. Choplin	Président du jury - Directeur de thèse
	H.-Z. Li	Examinateur - Co-directeur de thèse
	N. Midoux	Examinateur - Co-directeur de thèse
	O. Scrivener	Examinateur

Remerciements

Les travaux qui font l'objet de cette thèse ont été réalisés au Centre de Génie Chimique de Milieux Rhéologiquement Complexes (GEMICO), et je remercie Monsieur le professeur Lionel Choplin de m'avoir accueilli au sein de son laboratoire.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Monsieur Huai Zhi Li, chargé de recherches au CNRS, qui a encadré ce travail avec rigueur et patience, et m'a fait bénéficier de ses compétences, de ses conseils ainsi que de son enthousiasme pour le sujet. Je tiens également à le remercier pour la disponibilité dont il a fait preuve tout au long de ce travail.

Je remercie vivement Monsieur le professeur Noël Midoux pour ses très utiles conseils ainsi que pour l'intérêt constant qu'il a porté au sujet.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Monsieur le professeur Michel Lance de l'Ecole Centrale Lyon, ainsi qu'à Monsieur le professeur Christophe Gourdon de l'ENSIGC de Toulouse qui m'ont fait l'honneur d'être les rapporteurs de cette thèse malgré leurs emplois du temps très chargés.

Je remercie également vivement Monsieur Olivier Scrivener, directeur de recherches à l'Institut de Mécanique des Fluides de Strasbourg, d'avoir accepté de faire partie du jury.

Je remercie Monsieur René Lorrain et toute son équipe de l'atelier mécanique pour la réalisation du montage, pour leurs nombreux conseils ainsi que pour l'accueil chaleureux dont ils ont toujours fait preuve.

Je ne saurais assez remercier Monsieur Claude Grandjean pour son aide inestimable lors de la réalisation des systèmes d'acquisition ainsi que pour la constance de sa bonne humeur et de sa gentillesse.

Je remercie Josiane Moras pour sa disponibilité et sa bonne humeur.

Je remercie Monsieur Christophe Courtois pour son aide au début de ma thèse.

Enfin et surtout, je remercie infiniment mes amis de thèse qui ont su rendre ces années agréables en entretenant un climat de confiance et d'entre aide ; Stéphanie, Anne, Bernadette, Edgar, Catherine, Christelle, Marcel, Eric, Louis, Abdel, Walter, Mayo, Didier, Carole, Sandrine, et tous ceux qui furent présents pour une plus courte durée.

Sommaire

Introduction 1

Chapitre I : Etude bibliographique

Introduction 3
I.1 Rappels : comportement d'une sphère ou d'une bulle isolée dans un fluide newtonien 4
I.1.1 Sphère sédimentant dans un fluide newtonien 4
I.1.2 Bulle en ascension dans un fluide newtonien 8
I.1.2.1 Vitesse ascensionnelle 8
I.1.2.2 Forme des bulles 10
I.1.2.3 Champ de vitesses autour d'une bulle 12
I.2 Comportement des bulles et des sphères dans des fluides non-newtonien 14
I.2.1 Sédimentation de sphères en fluide non-newtonien 14
I.2.1.1 Chute d'une sphère en régime transitoire 15
I.2.1.2 Chute d'une sphère dans des fluides élastiques en régime permanent 17
I.2.2 Ascension des bulles en fluide non-newtonien 18
I.2.2.1 Vitesse ascensionnelle 18
I.2.2.2 Forme des bulles 21
I.2.2.3 Champ de vitesses autour d'une bulle 23
I.2.3 Effets des surfactants 25
I.3. Interactions hydrodynamiques entre bulles et entre sphères 25
I.3.1 Interactions entre particules rigides 26
I.3.2 Interactions entre bulles 26
I.3.2.1 Le phénomène de coalescence 27
I.3.2.2 Interactions entre bulles dans un fluide newtonien 29
I.3.2.3 Interactions entre bulles dans un fluide non-newtonien 31
I.3.2.4 Cas particulier des fluides viscoélastiques : influence de la période d'injection . 32
I.4 Définition des objectifs de ce travail 35

Chapitre II : Matériel, méthode, et conditions de fonctionnement

II.1 Colonnes à bulles 37
II.1.1 La petite colonne 37
II.1.2 La grande colonne 38
II.2 Système de détection et d'acquisition des données 40
II.3 Système d'acquisition et d'analyse d'image 42
II.4 Préparation des solutions 43
II.5 Fonctionnement de la colonne à bulles 44
II.5.1 L'orifice 44
II.5.2 Estimation des pertes de charge à travers l'orifice 45
II.5.3 Mode de formation des bulles 45
II.5.4 Régime d'écoulement 46
II.5.5 Volume des bulles formées et fréquence de formation des bulles 47
II.6 Le phénomène de coalescence 48

Chapitre III : Rhéologie des fluides

Introduction 51
III.1 Propriétés physico-chimiques des solutions de Glycérol, CMC et PAA 51
III.1.1 Le glycérol 51
III.1.2 La CMC 52
Propriétés physico-chimiques 52
Propriétés des solutions aqueuses de CMC 52
III.1.3 Le PAAm 53
Propriétés physico-chimiques 53
Propriétés des solutions aqueuses de PAAm 53
III.2. Viscosité en régime permanent 54
III.3. Viscosité en régime transitoire 57
III.4. Elasticité des solutions 59
III.4.1 Modules élastiques et visqueux 60
III.4.2 Contraintes normales 62
III.5 Modèle de Maxwell généralisé 64
III.5.1 Introduction 64
III.5.2 Modélisation du module de relaxation G(t) 65
III.5.3 Détermination de quelques grandeurs 65
III.6 Temps de relaxation 66
III.7 Tableau récapitulatif 68

Chapitre IV : Influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle et la forme des bulles

Introduction 69
IV.1 Conditions expérimentales 69
IV.2 Influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle 71
IV.3 Coefficient de traînée d'une bulle en ascension 77
IV.4 Influence de la période d'injection sur la forme des bulles 81
IV.5 Conclusion 89

Chapitre V : Ascension de bulles dans un train

Introduction 91
V.1 Interactions entre bulles dans un train 91
V.1.1 Le phénomène de coalescence 91
V.1.2 Evolution du nombre de bulles avec la distance à l'orifice 92
V.1.3 Evolution de la distribution de taille des bulles avec la distance à l'orifice 95
V.1.4 Comportement chaotique de la coalescence de bulles en lignes 98
V.1.5 Conclusion partielle 100
V.2 Interactions entre trains de bulles 100
V.2.1 Débit de 0,1 à $2x10^{-6}$ m^3/s 100
V.2.2 Débit de $4x10^{-6}$ m^3/s 102
V.3 Interprétation des résultats 103
V.4 Perspectives 109

Chapitre VI : Champ de vitesses autour de bulles isolées

Introduction 110
VI.1 Montage expérimental de la P. I. V. 111
VI.1.1 Principe de la P.I.V. 111
VI.1.2 Description du montage 111
VI.1.3 Réglage des différents paramètres 113
VI.1.4 Plan des expériences effectuées et des paramètres étudiés 114
VI.2 Champ de vitesses autour d'une bulle isolée en ascension dans du glycérol 114
VI.3 Champ de vitesses autour d'une bulle isolée en ascension dans 2% CMC 117
VI.4 Champ de vitesses autour d'une bulle isolée en ascension dans une solution de PAAm 119
VI.4.1 Solution de PAAm 0,25% 119
VI.4.2 Solution de PAAm 0,5% 121
VI.4.3 Solution de PAAm 0,75% 123
VI.5 Interprétation des résultats 125
VI.5.1 Forme générique du champ de vitesses autour des bulles 125
Cas d'un fluide newtonien 125
Cas d'un fluide rhéofluidifiant 126
Cas d'un fluide viscoélastique rhéofluidifiant 127
VI.5.2 Influence du milieu infini ou non infini sur la forme du champ de vitesses 130
VI.5.3 Evolution de la forme du champ de vitesses avec la période d'injection 130
VI.5.4 Relation forme des bulles - forme du champ de vitesses 131
VI.6 Conclusion 132

Chapitre VII : Biréfringence d'écoulement autour de bulles isolées et dans un train

Introduction 133
VII.1 Notions de biréfringence d'écoulement 133
VII.1.1 Définition de la biréfringence 133
VII.1.2 Principe d'un montage de biréfringence 134
VII.1.3 Domaines d'application 135
VII.2 Montage expérimental et techniques de mesure 135
VII.2.1 Montage expérimental 135
VII.2.2 Mesure ponctuelle de la biréfringence par laser-diode 137
VII.2.3 Solution biréfringente 138
VII.3 Champs de contraintes et de vitesses autour d'une bulle isolée 138
VII.3.1 Biréfringence d'écoulement autour d'une bulle isolée 138
VII.3.2 Champ de vitesses autour d'une bulle isolée déterminé par P.I.V 142
VII.3.3 Mesure ponctuelle de l'intensité lumineuse par laser-diode 143
VII.3.4 Conclusion 148
VII.4 Champ de contraintes et de vitesses autour d'un train de bulle 148
VII.4.1 Biréfringence d'écoulement autour d'un train de bulles 148
VII.4.2 Champ de vitesses autour d'un train de bulles 149
VII.4.3 Discussion 155
VII.5 Conclusions et perspectives 155

Chapitre VIII : Champ de vitesses autour de bulles en interactions

Introduction 157
VIII.1 Evolution du champ de vitesses lors de l'approche de deux bulles 157
VIII.1.1 Observations expérimentales 157
VIII.1.2 Discussion 164
VIII.2 Champ de vitesses autour d'un train de bulles 166
VIII.2.1 Conditions expérimentales 166
VIII.2.2 Champs de vitesses autour d'un train de bulles 167
VIII.2.3 Interprétation des résultats 173
VIII.2.3.1 Comparaison fluide newtonien ou rhéofluidifiant/fluide viscoélastique 173
VIII.2.3.2 Comparaison bulles isolées/bulles dans un train de bulles 173
VIII.2.3.3 Influence de la rhéologie des solutions sur les recirculations 174
VIII.2.4 Conclusion 177
VIII.3 Que se passe-t-il à fort débit ? 178

Conclusion 180

Nomenclature 183

Références bibliographiques 185

Annexe chapitre II

Annexe II.A : Estimation des pertes de charge à travers les buses 192

Annexes chapitre III

Annexe III.A : Propriétés des solutions de CMC et PAAm 196

Annexe III.B : Thixotropie des solutions 202

Annexe III.C : Modèle de Maxwell généralisé appliqué aux solutions de PAAm 210

Annexes chapitre VI

Annexe VI.A : Influence d'un milieu plus étendu sur le champ de vitesses 216

Annexe VI.B : Influence de la période d'injection sur le champ de vitesses 219

Annexe VI.C : Superposition du contour des bulles et du champ de vitesses 226

Annexe chapitre VII

Annexe VII.A : Rappels d'électromagnétisme - biréfringence d'écoulement 232

Annexe VII.B : Propriétés rhéologiques d'une solution d'Hydroxy Propyl Cellulose 238

Annexe chapitre VIII

Annexe VIII.A : Superposition du contour des bulles et du champ de vitesses lors d'une coalescence....242

Annexe VIII.B : Superposition du contour des bulles et du champ de vitesses pour différents débits de gaz....249

Annexe VIII.C : Influence de très faibles périodes d'injection sur la vitesse ascensionnelle des bulles....255

Introduction

Introduction

Dans l'industrie, l'opération unitaire de mise en contact d'une phase liquide et d'une phase gazeuse peut s'effectuer à l'aide de colonnes à bulles. Elles permettent un transfert de matière du gaz vers le liquide ou inversement du liquide vers le gaz. Ce transfert de matière est accompagné le plus souvent de réactions chimiques.

La phase continue de la colonne à bulles peut être newtonienne comme dans le cas de l'eau, ou non-newtonienne comme souvent dans le cas des fluides alimentaires. Dans ce dernier cas, la rhéologie du fluide est dite complexe, c'est à dire qu'elle peut dépendre de facteurs comme la vitesse de cisaillement (cas des fluides rhéofluidifiants), ou encore du temps, à travers l'histoire du cisaillement qu'a subie le fluide (cas de fluides viscoélastiques).

L'utilisation de fluides rhéologiquement complexes dans les colonnes à bulles est souvent rencontrée dans l'industrie. Les réacteurs biologiques comme les fermenteurs, la digestion des boues des stations d'épuration ou la fabrication d'agents texturants comme le xanthane en sont quelques illustrations. D'autres procédés industriels, sans utiliser directement des colonnes à bulles, font intervenir la dynamique des bulles en fluides visqueux non-newtoniens. Ces procédés sont par exemple la dévolatilisation des polymères, le dégazage des graisses ou encore le crackage du pétrole. Des phénomènes naturels comme l'éruption des volcans font intervenir de grandes poches de gaz. Ces poches de gaz sont assimilables à de très grosses bulles en ascension dans un fluide non-newtonien très visqueux qu'est la lave en fusion.

Dans les exemples cités précédemment, l'objectif recherché n'est pas toujours le même. Dans les réacteurs biologiques, on recherche un apport en oxygène, une élimination du CO_2 en excès, et parfois un mélangeage faiblement cisaillant du milieu réactionnel pour ne pas endommager les cellules. L'aire interfaciale conditionne les échanges de matière et évolue au gré des coalescences - décoalescences. Comme les coalescences diminuent l'aire interfaciale, dans les réacteurs biologiques, on cherchera à les éviter.
Dans la dévolatilisation des polymères par contre, on s'attachera à promouvoir la coalescence, car celle-ci permet d'augmenter la taille des bulles, et de ce fait d'augmenter leur vitesse ascensionnelle, ce qui accélère la dévolatilisation.

Ainsi, le comportement des bulles dans des fluides rhéologiquement complexes, que ce soient des bulles isolées ou dans un train, apparaît comme un problème essentiel. Une meilleure compréhension de la dynamique des bulles dans ces milieux permettrait de prévoir leur comportement à partir de données comme par exemple la rhéologie des fluides. Mieux connaître la dynamique des bulles est l'objectif que nous nous sommes fixés dans cette étude.

Ce travail comporte huit chapitres. Ces chapitres peuvent être rassemblés en trois grandes parties.

La première partie comporte trois chapitres préliminaires mais néanmoins indispensables. L'état des connaissances sur la dynamique des bulles et des sphères en fluide newtonien et non-newtonien est effectué dans un premier chapitre. Ce chapitre se termine par la définition des objectifs de ce travail en le situant par rapport aux travaux déjà effectués dans ce domaine. Une étude approfondie de la rhéologie des solutions utilisées est réalisée dans le deuxième chapitre. Cette partie se termine par un chapitre consacré à la description du montage expérimental ainsi que des conditions opératoires.

Dans la deuxième partie, l'étude est centrée sur les bulles. En effet, dans un premier chapitre, on étudie l'influence de facteurs comme la période d'injection, le volume des bulles ou la rhéologie des fluides sur la forme et la vitesse ascensionnelle de bulles isolées. Un deuxième chapitre est consacré aux interactions entre bulles dans un train ou entre trains de bulles.

Enfin, la troisième partie est consacrée à l'étude du fluide dans le voisinage immédiat des bulles. Deux outils sont utilisés pour cela : la biréfringence d'écoulement pour déterminer le champ de contraintes, et la Vélocimétrie par Images de Particules (P.I.V.) pour la détermination du champ de vitesses. Ainsi, un premier chapitre est consacré au champ de vitesses autour de bulles isolées, un deuxième au champ de contraintes, et un dernier au champ de vitesses autour du train de bulles.

Chapitre I : Etude bibliographique

Introduction

Dans la littérature, les études du comportement des colonnes à bulles ont été abordées par deux voies différentes. La première voie est celle généralement utilisée par la communauté Génie Chimique. L'étude est globale : on considère le coefficient de transfert global, la surface d'échange dans toute la colonne, le taux de rétention, sans considérer l'individualité des bulles ni tenir compte de tous les mécanismes physiques successifs qui ont lieu. La deuxième voie, au contraire, considère une bulle individuelle, parfois dans un milieu infini pour s'affranchir des conditions limites. Dans cette voie, on décompose toutes les étapes successives que connaît la bulle, de sa formation à son ascension en régime permanent. Le niveau intermédiaire où les bulles ne sont plus uniques mais interagissent en un ou deux trains n'a été que peu étudié. Notre étude se situant à ce niveau intermédiaire, nous allons, dans cette étude bibliographique, partir du plus simple, c'est-à-dire des éléments gouvernant le comportement individuel des bulles, pour aller à un niveau de complexité supérieure : celui concernant l'interaction des bulles dans un train.

Dans cette étude bibliographique, nous présenterons conjointement le cas des sphères et des bulles. La présentation du comportement des sphères dans une étude consacrée à l'hydrodynamique des bulles peut sembler étonnante. Mais le fait que de très petites bulles aient un comportement très proche de celui des sphères, et que, pour de plus grosses bulles, de nombreuses similarités soient encore présentes, nous a semblé justifier la démarche.
De plus, en fluide non-newtonien, la chute de sphères a été bien plus étudiée que l'ascension de bulles. Ceci permettra de transposer des éléments observés sur la chute de sphères au cas de l'ascension des bulles.

Dans une première partie, nous ferons quelques rappels sur les écoulements autour des sphères et des bulles en milieu newtonien. Ces rappels seront l'occasion de présenter des notions importantes pour la suite, comme les régimes d'écoulement rencontrés ainsi que les nombres adimensionnels caractérisant la vitesse des bulles, leur déformation et leur déformabilité.

Une deuxième partie sera consacrée à l'étude du comportement des bulles et des sphères dans des fluides non-newtoniens. La chute d'une sphère sera présentée en régime permanent ainsi qu'en régime transitoire. Dans le cas d'une bulle, nous verrons les différences apportées par le caractère non-newtonien du fluide sur la vitesse ascensionnelle des bulles, sur leur forme et sur le champ de vitesses autour de la bulle.

Une troisième partie, sera consacrée aux interactions existant entre sphères et entre bulles dans des fluides newtoniens et non-newtoniens. Nous nous intéresserons particulièrement aux interactions latérales entre deux trains ou « en ligne » dans un même train de bulles.

Enfin, les objectifs de ce travail seront présentés dans une dernière partie.

I.1 Rappels : comportement d'une sphère ou d'une bulle isolée dans un fluide newtonien

Dans tout ce paragraphe, ainsi que les suivants le milieu fluide est considéré comme infini.

I.1.1 Sphère sédimentant dans un fluide newtonien

Le cas de la chute d'une sphère dans un fluide newtonien a été probablement l'un des tous premiers problèmes hydrodynamiques à avoir été étudié. Dans les cas simples, il peut être entièrement résolu analytiquement. Pour classifier la chute des sphères, on utilise un nombre adimensionnel : le nombre de Reynolds de particules. Il se définit par :

$$Re = \frac{\text{forces d'inertie}}{\text{forces visqueuses}} = \frac{\rho U^2}{\mu \frac{U}{D}} = \frac{\rho U D}{\mu} \qquad \text{I.1}$$

ρ, U, D et μ étant respectivement la masse volumique, la vitesse, le diamètre de la sphère et la viscosité du milieu continu. Cette première partie rappelle les différentes expressions de la vitesse de chute des sphères en fonction de ce nombre adimensionnel. Puis, dans une deuxième partie, le champ de vitesses autour d'une sphère est donné dans le cas d'un faible nombre de Reynolds.

Vitesse de chute d'une sphère en fluide newtonien

Soit l'écoulement en régime permanent d'un fluide newtonien de masse volumique ρ_l autour d'un objet solide submergé fixe possédant soit un axe soit un plan de symétrie parallèle à la vitesse du fluide approchant. On note U la vitesse du fluide.

Les différentes forces exercées sur l'objet sont :

- la force de gravité $F_{gravité}$
- les forces exercées par le fluide. Ces forces se composent de :
  - $F_{Archimède}$
  - $F_{traînée}$ force associée au comportement cinétique du fluide (s'exerce dans le sens vitesse du fluide)

Le bilan des forces s'exerçant sur l'objet solide en régime permanent est :

$$\sum \vec{F}orces = \vec{0} \qquad \text{I.2}$$

Sa projection sur l'axe vertical, conduit à :

$$F_{traînée} + F_{Archimède} - F_{gravité} = 0 \qquad I.3$$

La force de traînée, $F_{traînée}$ s'exprime arbitrairement comme le produit d'une aire caractéristique A (A est généralement l'aire obtenue par projection de l'objet solide sur un plan perpendiculaire à la vitesse d'approche du fluide), d'une énergie cinétique par unité de volume caractéristique K, et d'un coefficient de frottement f (parfois appelé coefficient de traînée C_d).

$$F_{traînée} = A.K.f \qquad I.4$$

f est un facteur adimensionnel dont la valeur dépend du nombre de Reynolds.

Pour une sphère de rayon R :

$$F_{traînée} = \left(\pi R^2\right)\left(\frac{1}{2}\rho_l U^2\right) f \qquad I.5$$

Pour les faibles nombres de Reynolds, la force de traînée peut être calculé analytiquement (Bird et al. 1987). Elle a pour expression :

$$F_{traînée} = 6\pi\mu RU \qquad I.6$$

Cette expression est connue sous le nom de loi de Stokes. Elle conduit à l'expression suivante du coefficient de frottement :

$$f = \frac{F_{trainée}}{\left(\pi R^2\right)\left(\frac{1}{2}\rho_l U^2\right)} = \frac{6\pi\mu RU}{\left(\pi R^2\right)\left(\frac{1}{2}\rho_l U^2\right)} = \frac{24\mu}{\rho_l UD} = \frac{24}{Re} \qquad I.7$$

Cette expression du coefficient de frottement est valable en écoulement rampant, c'est-à-dire pour un nombre de Reynolds inférieur à 0,1. Par extension, cette zone de Reynolds est très souvent appelée régime de Stokes.

En écoulement rampant, la vitesse terminale de chute est alors :

$$F_{traînée} + F_{Archimède} - F_{gravité} = 0 = 6\pi\mu RU + \frac{4}{3}\pi R^3\rho_l g - \frac{4}{3}\pi R^3\rho_{sphère} g \qquad I.8$$

D'où :

$$U_{Stokes} = \frac{2}{9}\frac{(\rho_{sphère} - \rho_l)gR^2}{\mu} \qquad I.9$$

En augmentant le nombre de Reynolds, on observe expérimentalement (Bird et al. 1987) :

- la formation d'un tourbillon à l'arrière de la sphère pour Re > 24
- une oscillation de ce tourbillon ainsi que de la traînée pour Re > 130

L'écoulement reste laminaire en deçà de Re = 200 environ, mais devient graduellement turbulent au-delà.

Ces changements dans l'écoulement se traduisent par différentes expressions du coefficient de frottement. Les différentes expressions du facteur de frottement ainsi que leur domaine d'application sont données sur le graphique I.1 :

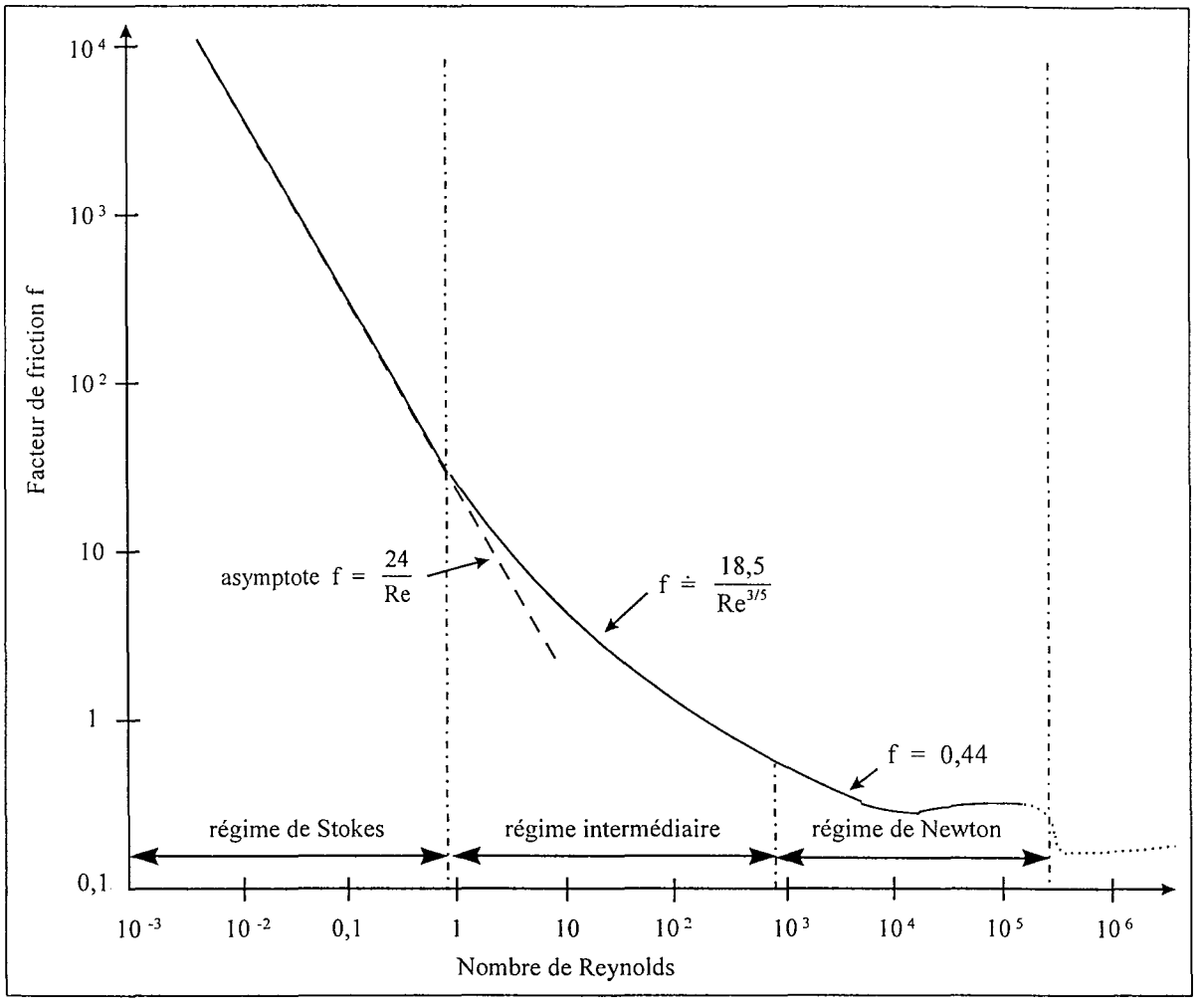


Figure I.1 : Coefficient de frottement en fonction du nombre de Reynolds d'après Bird et al. (1960)

Champ de vitesses autour d'une sphère en écoulement rampant

En écoulement rampant, le champ de vitesses autour d'une sphère en sédimentation présente un axe de symétrie vertical ainsi qu'un plan de symétrie horizontal passant par le centre de la sphère. Les lignes de courant autour d'une sphère fixe dans un fluide en écoulement uniforme à l'infini, sont représentées sur la figure I.2.

Ces lignes de courant résultent d'un calcul analytique. La fonction courant est donnée par :

$$\Psi = Ur^2(\sin\theta)^2\left[\frac{1}{2} - \frac{3R}{4r} + \frac{R^3}{4r^3}\right] \qquad \text{I.10}$$

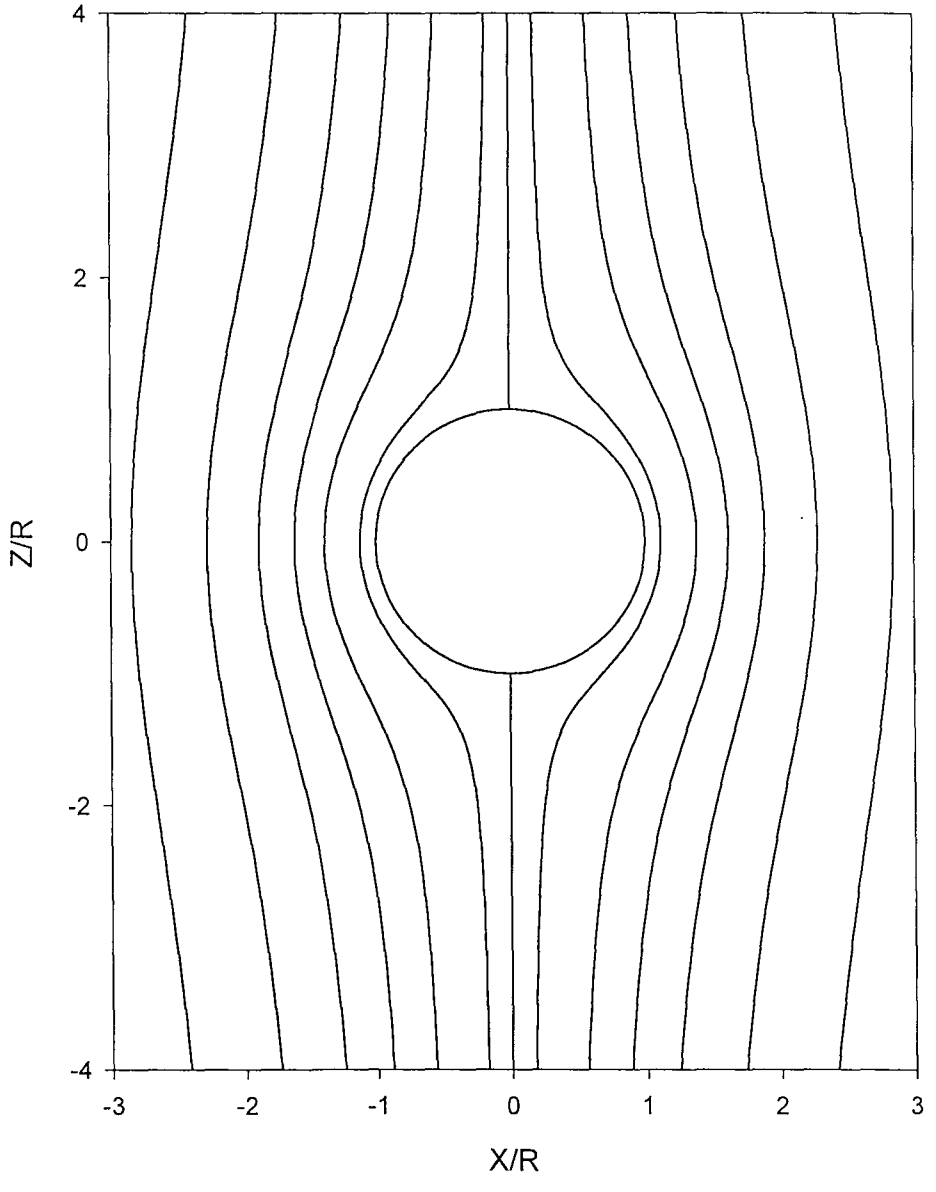


Figure I.2 : Lignes de courant autour d'une sphère rigide fixe dans un écoulement uniforme pour un fluide newtonien en régime de Stokes

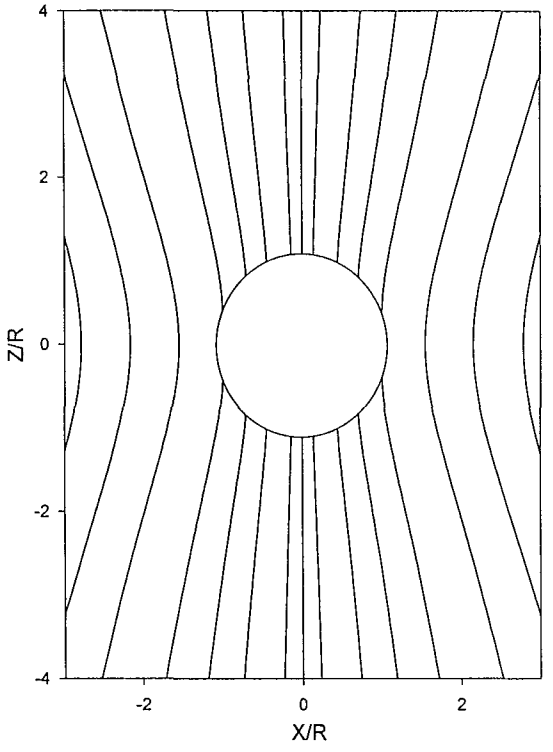


Figure I.3 : Lignes de courant autour d'une sphère rigide en sédimentation pour un fluide newtonien en régime de Stokes

I.1.2 Bulle en ascension dans un fluide newtonien

I.1.2.1 Vitesse ascensionnelle

Toute bulle suffisamment petite est parfaitement sphérique et se comporte comme une sphère rigide, donc comme un objet indéformable dont l'interface est rigide. Il est évident que dans ce cas, la bulle suit la loi de Stokes.

Pour des bulles un peu plus grandes, on passe par un état intermédiaire où les bulles sont encore sphériques mais ont une interface libre (pas de contrainte à la surface de la bulle). Ce régime d'écoulement est appelé régime d'Hadamard-Rybczynski. En écoulement rampant, le bilan de forces en régime permanent, en négligeant la masse volumique du gaz dans la bulle devant la masse volumique du liquide, s'écrit (Bird et al. 1987) :

$$F_{\text{traînée}} + F_{\text{Archimède}} = -4\pi\mu RU + \frac{4}{3}\pi R^3\rho_l g = 0 \qquad \text{I.11}$$

La vitesse terminale ascensionnelle est alors :

$$U_{Hadamard} = \frac{1}{3} \frac{\rho_l g R^2}{\mu} \qquad I.12$$

Le coefficient de frottement est alors :

$$f = \frac{16}{Re} \qquad I.13$$

Ascension de bulles dans l'eau

Les petites bulles en ascension dans de l'eau ont une trajectoire rectiligne et une forme figée. A partir d'une certaine taille, les bulles, non seulement présentent des oscillations de forme, mais encore montent selon une trajectoire en forme de spirale ou en zig-zag. (Par exemple, Ellingsen (1998) a démontré expérimentalement que des bulles de rayon équivalent R = $1{,}25 \times 10^{-3}$ m ont une trajectoire en zig-zag).

Elligsen (1998) distingue trois domaines pour l'ascension de bulles dans de l'eau distillée :

R < 0,5 mm	les bulles sont sphériques et montent suivant une trajectoire rectiligne
0,5 < R < 0,7 mm	les bulles se déforment tout en montant encore suivant une trajectoire rectiligne
R > 0,7 mm	la trajectoire n'est plus rectiligne

Mendelson (1967) effectue une classification un peu différente :

R < 0,35 mm	bulles sphériques - interface rigide - la vitesse ascensionnelle des bulles suit la loi de Stokes
0,35 < R < 0,7 mm	recirculation interne, interface libre, vitesse ascensionnelle plus faible que celle prévue par la loi de Stokes
0,7 < R < 3 mm	mouvement hélicoïdal des bulles
R > 3 mm	les bulles prennent la forme d'une calotte sphérique

Dans les fluides visqueux, du fait d'une viscosité plus importante, les bulles même de taille importante n'oscillent pas ou très peu. Leur forme reste figée et leur ascension est presque toujours rectiligne. Ce n'est que pour des bulles bien plus grosses que des oscillations dans la trajectoire apparaissent.

Effet des surfactants sur la vitesse ascensionnelle

La présence d'impuretés ou de surfactants influe sur la vitesse ascensionnelle des bulles. Pour des bulles dans de l'eau, Nguyen (1998) constate que les impuretés, même en faible quantité, augmentent la résistance à la recirculation dans la bulle, et diminuent leur vitesse ascensionnelle en augmentant significativement la traînée. Nguyen (1998) estime que dans le cas de l'eau, le nombre de Reynolds

critique du passage d'une interface rigide à une interface libre est de 40 dans l'eau pure et de 130 en présence de surfactants.

I.1.2.2 Forme des bulles

Les bulles présentent une étonnante variété de formes suivant leur volume, la tension interfaciale et les propriétés rhéologiques du fluide environnant (viscosité, élasticité, caractère non-newtonien). Cette variété de formes dépend en particulier de critères comme le volume, le diamètre équivalent, le nombre de Reynolds, les nombres de Bond ou de Weber.

Il convient donc d'introduire ici ces différents nombres adimensionnels.

Nom du nombre adimensionnel	**Définition**	**Rapport**	
Nombre de Bond (Eötvös)	$Bo = \frac{\rho\, d^2\, g}{\sigma}$	$\frac{\text{poussée d'Archimède}}{\text{force superficielle}} = \frac{\rho\, d^3\, g}{\sigma\, d}$	I.14
Nombre de Weber	$We = \frac{\rho\, d\, U^2}{\sigma}$	$\frac{\text{force d'inertie}}{\text{force superficielle}} = \frac{\rho\, d^2\, U^2}{\sigma\, d}$	I.15
Nombre de Morton	$Mo = \frac{g\, \mu^4}{\rho\, \sigma^3}$		I.16
Nombre de capillarité	$ca = \frac{\mu\, U}{\sigma}$	$\frac{\text{force visqueuse}}{\text{force superficielle}} = \frac{\mu\, Ud}{\sigma\, d}$	I.17

Les petits nombres de Bond correspondent à des bulles sphériques. Leur déformabilité augmente avec le nombre de Bond.

A faible nombre de capillarité, les forces de tension de surface dominent. Un nombre de capillarité nul correspond à une déformation nulle d'une bulle sphérique.

L'évolution de la forme des bulles avec leur volume dépend du degrés de viscosité. Ainsi, pour caractériser les différentes formes des bulles, on effectuera une distinction entre l'eau et les fluides newtoniens peu visqueux d'une part, et les fluides newtoniens visqueux d'autre part. Le cas de la forme des bulles en milieu non-newtonien sera présentée dans la partie I.2.2.2.

L'eau et les fluides peu visqueux

Dans ces fluides, les petites bulles sont parfaitement sphériques. Ceci est dû à l'importance relative de la tension de surface qui tend à maintenir les bulles sphériques. En augmentant la taille des bulles, elles se déforment, et présentent au cours de leur ascension des oscillations de forme. Dans l'eau, les oscillations de forme des bulles prennent naissance dès que leur diamètre équivalent dépasse $1{,}4 \times 10^{-3}$ m (Mendelson 1967). Lorsque le fluide est plus visqueux, ces oscillations ne naissent que pour des volumes de bulles plus grands. Tomiyama et al (1993) peuvent prédirent numériquement la forme de bulles même lorsqu'elles oscillent. Leurs prédictions sont en accord avec la cartographie de forme des bulles donnée par Grace et al (1976).

Les fluides newtoniens visqueux

Dans les fluides newtoniens visqueux, les bulles passent par des formes bien connues : forme sphérique, ellipsoïde de révolution écrasée verticalement, aplatissement de la partie arrière de la bulle jusqu'à obtenir pour de plus grands volumes une forme de casque sphérique. Ce casque ou calotte sphérique s'aplatit lorsque le volume de la bulle augmente (Miyahara et Yamanaka 1993). En fluide newtonien, quelle que soit leur taille, les bulles ne possèdent pas de queue, mais présentent, à partir d'un certain volume une forme de parachute (voire figure I.4) comme une dépression à l'arrière de la bulle (Chhabra 1988).

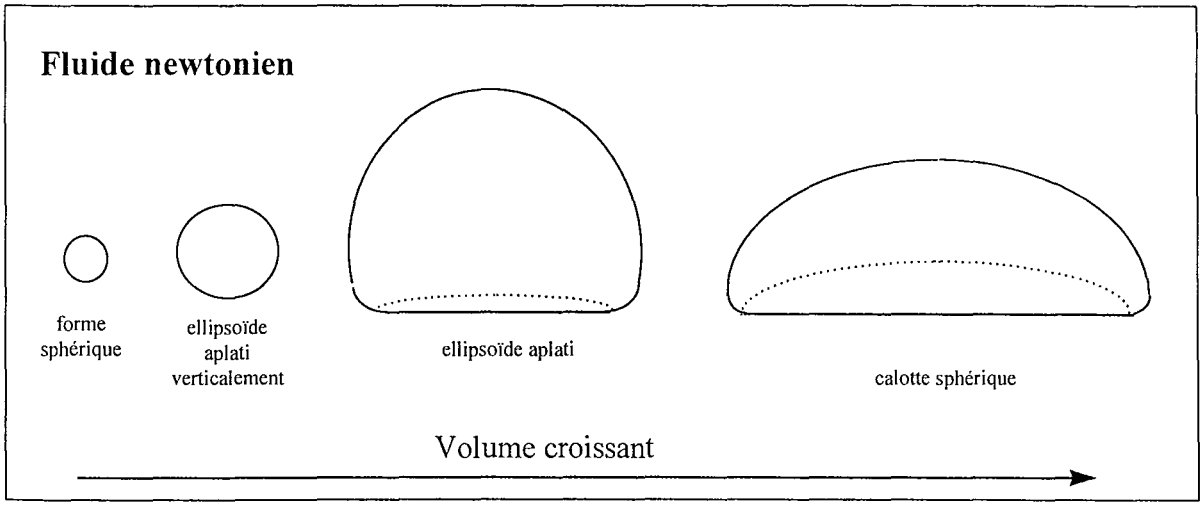


Figure I.4 : Forme générique des bulles dans un fluide newtonien

Bhaga et Weber (1981) ont effectué une étude de la forme des bulles dans des solutions de glucose de différentes concentrations. Ils ont établi une cartographie de la forme des bulles en fonction des nombres de Bond et de Reynolds (figure I.5). Une cartographie un peu plus simplifiée, mais se différenciant peu de cette dernière a été donnée par Grace et al (1976).

D'autres auteurs, (Miyahara et Yamanaka 1993) se sont intéressés à la détermination expérimentale de l'excentricité des bulles (rapport entre la largeur et la hauteur des bulles) en solutions de glycérol.

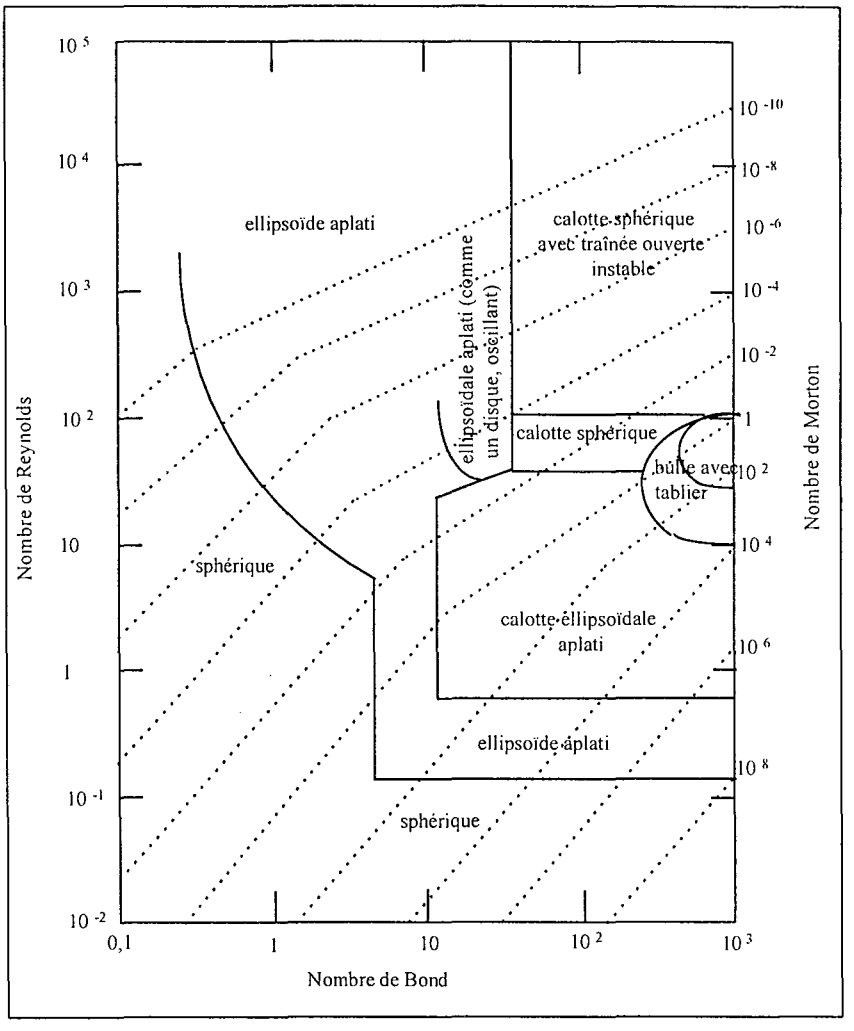


Figure I.5 : Cartographie de la forme des bulles en fluide newtonien d'après Bhaga et Weber (1981)

I.1.2.3 Champ de vitesses autour d'une bulle

Pour de petites bulles, en régime de Stokes, nous avons vu (I.1.2.1) que le champ de vitesses se calcule analytiquement. Pour des bulles plus grosses, les bulles se déforment et ces changements de forme s'accompagnent de modifications du champ de vitesses. Nous allons dans cette partie présenter quelques résultats expérimentaux et numériques concernant l'évolution de ce champ de vitesses avec le nombre de Reynolds.

Détermination expérimentale du champ de vitesses

Bhaga et Weber (1981) ont étudié expérimentalement le champ de vitesses dans des fluides newtoniens (solutions aqueuses de glucose de diverses concentrations) pour des nombres de Reynolds de 1 à 150. Le champ de vitesses a été déterminé en utilisant : un traçage des lignes de courant par des microbulles d'hydrogène obtenues électrolytiquement, un éclairage par une fente lumineuse et un enregistrement par une caméra se déplaçant à la vitesse de la bulle.

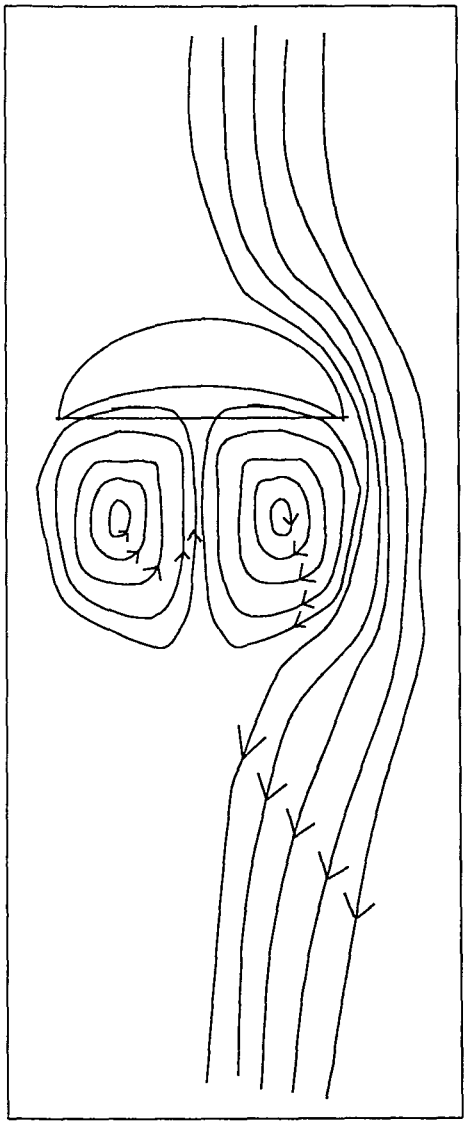


Figure I.6 : Lignes de courant autour d'une bulle de forme de calotte sphérique en ascension dans un fluide newtonien (mélange eau-glucose). Bulle de 9,3x10^{-6} m^3, Re = 42 et Mo = 0,103 Bhaga et Weber (1981)

Tant que Re < 5, la traînée est plus large que la bulle.

Pour des bulles de taille moyenne et pour Re < 110, la bulle a une forme de calotte sphérique et est suivie d'un sillage toroïdal.

Les auteurs ont remarqué que le fluide dans le sillage toroïdal n'était pas renouvelé.

Pour Re > 110 le sillage toroïdal est ouvert et instable.

Pour des faibles nombres de Reynolds, les bulles sont sphériques et ne présentent pas de sillages toroïdaux, mais le nombre de Reynolds d'apparition de ce vortex toroïdal n'est pas précisé.

Narayanan et al (1974) classifient le champ de vitesses autour d'une bulle dans une solution de glycérol en cinq catégories :

- Re < 2, bulle sphérique, écoulement rampant, faible traînée
- 2 < Re < 7, bulle en forme de sphéroïde aplati, écoulement rampant, faible traînée, C_d = 24/Re ou 16/Re
- 7 < Re < 80, forme de calotte sphérique, vortex toroïdal stable
- 80 < Re < ~300, forme de calotte sphérique, oscillations de la bulle et du vortex, écoulement potentiel
- ~300 < Re, forme irrégulière, traînée irrégulière

Détermination numérique du champ de vitesses

Ryskin et Leal (1983 et 1984 a, b et c) ont calculé numériquement le champ de vitesses autour d'une bulle. Ils ont employé des coordonnées curvilinéaires orthogonales appropriées et utilisé une résolution par lignes de courant - vorticité.

A faible nombre de Reynolds, la forme des bulles calculée numériquement est conforme aux observations expérimentales. Deux nombres adimensionnels interviennent dans la forme des bulles et le champ de vitesses environnant : les nombres de Reynolds et de Weber. Pour un même nombre Reynolds, la taille du vortex toroïdal croît avec le nombre de Weber. De même, pour un même nombre de Weber, le vortex croît avec le nombre de Reynolds, comme observé expérimentalement.
Par contre, pour de grands nombres de Reynolds, (Re proche de 200), selon leurs calculs, les bulles prendraient la forme de calottes sphériques de concavité vers le haut, ce qui expérimentalement n'a jamais été observé.

Très récemment, Tomiyama et al (1993) et McLaughlin (1996) ont résolu numériquement le champ de vitesses autour de bulles déformables respectivement dans le cas d'un fluide newtonien peu visqueux et de l'eau distillée. Leur résolution met en évidence une grande richesse de forme des bulles et de champ de vitesses possibles. Ils ont résolu numériquement le champ de vitesses et la trajectoire des bulles même dans le cas où elles oscillent.

I.2 Comportement des bulles et des sphères dans des fluides non-newtoniens

Pour des fluides non-newtoniens, la viscosité, rapport entre la contrainte et la vitesse de cisaillement, n'est plus une constante mais est une fonction de la vitesse de cisaillement. Dans certains cas, il est possible d'exprimer cette fonction par une loi dite « loi de puissance », $\eta = K\dot{\gamma}^{n-1}$
k et n étant respectivement l'indice de consistance et l'indice d'écoulement
Dans ce cas, il est judicieux d'utiliser un nombre de Reynolds modifié appelé nombre de Reynolds généralisé :

$$Re = \frac{\rho U^{2-n} d^n}{K} \qquad I.18$$

I.2.1 Sédimentation de sphères en fluide non-newtonien

La chute d'une sphère diffère de l'ascension d'une bulle par la déformabilité de la bulle et une condition à l'interface différente. Dans un fluide élastique, la chute d'une sphère peut apparaître comme une simplification du problème de l'ascension d'une bulle.

Pour caractériser la chute d'une sphère en fluide viscoélastique, la plupart des auteurs ont recours à deux nombres adimensionnels : le nombre de Déborah et le nombre de Weissenberg. Ces deux nombres adimensionnels sont utilisés presque indifféremment, sans que l'on ne fasse, en général, de distinction entre eux.

Dans ce travail, nous utiliserons le nombre de Deborah défini par :

$$De = \frac{\lambda}{t_{flow}} \qquad I.19$$

t_{flow} étant le temps caractéristique de l'écoulement

Pour la sédimentation d'une sphère ou l'ascension d'une bulle, le temps caractéristique de l'écoulement est pris comme $t_{flow} = \frac{R}{U}$, U étant la vitesse de la sphère et R son rayon.

λ étant le temps caractéristique du fluide. Il sera défini plus en détail au chapitre III. Dès à présent, nous pouvons dire qu'il est lié à l'élasticité du fluide.

Lorsque De est petit, le caractère visqueux prédomine tandis que lorsque De est grand, le caractère élastique prédomine.

I.2.1.1 Chute d'une sphère en régime transitoire

King et Waters (1972) furent les premiers à remarquer par un calcul analytique que la vitesse de chute d'une sphère dans un fluide élastique passe par un maximum au cours du temps. Becker et al (1994) constatent aussi bien expérimentalement que numériquement qu'il existe un « overshoot » dans la vitesse de la sphère. Cet « overshoot » est présent dans les fluides viscoélastiques, mais inexistant pour les fluides newtoniens. Arigo et McKinley (1997) ont étudié le régime transitoire de la chute d'une sphère en fluide élastique (solution de PAAm 2% dans un mélange eau - glycérol 50/50), dans une colonne cylindrique. Ils ont observé non seulement un « overshoot » de vitesse mais aussi un « undershoot » suivi d'oscillations d'amplitude décroissante (figure I.7). Le régime transitoire de la vitesse de la sphère est en tout point analogue à un régime d'oscillations amorties tendant vers la vitesse terminale de chute de la sphère.

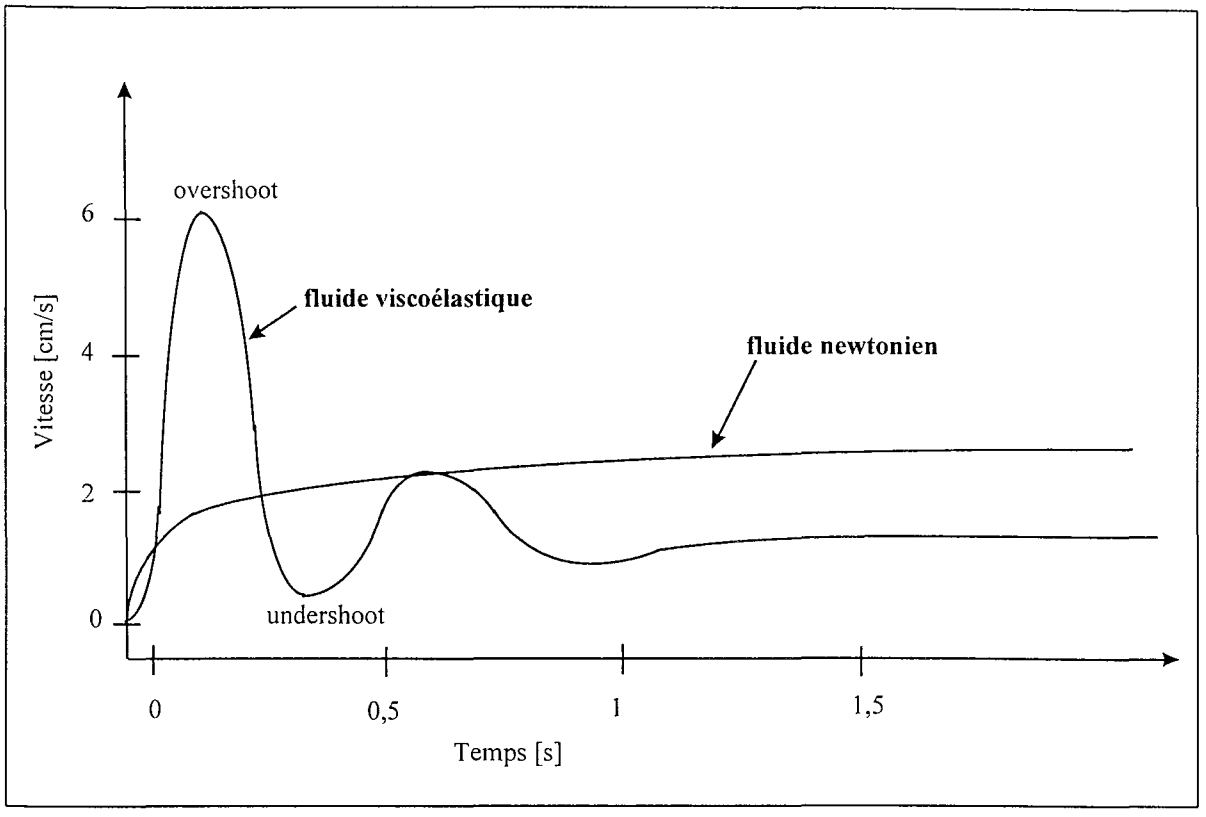


Figure I.7 : Vitesse de chute d'une sphère dans un fluide viscoélastique en régime transitoire

Suite à ces observations, ces derniers analysent l'influence de certains paramètres sur :

- la fréquence des oscillations : elle augmente avec le rapport (diamètre sphère)/(diamètre colonne) et diminue avec le temps de relaxation
- l'amplitude des oscillations : elle augmente avec le rapport (masse volumique sphère)/(masse volumique fluide)
- le temps total nécessaire pour amortir ces oscillations transitoires : il diminue avec le rapport (diamètre sphère)/(diamètre colonne)

Dans certains cas, l' «undershoot » est tellement important que la vitesse va jusqu'à s'inverser.

Des simulations numériques effectuées par Bodart et Crochet (1994) ou Zhen et Phan-Thien (1992) sur la chute d'une sphère en régime transitoire pour un fluide élastique donnent des résultats presque toujours conformes aux observations précédentes comme l' « overshoot » de vitesse, les oscillations qui suivent, l'influence de la densité des sphères.... D'autres simulations numériques effectuées par Rajagopalan et al (1996) ou par Feng et al (1996), ont confirmé ces résultats. Zhen et al (1992) par leurs simulations numériques, observent qu'une augmentation du nombre de Deborah entraîne une augmentation de l'overshoot et du temps d'établissement du régime permanent ainsi qu'une diminution de la fréquence des oscillations.

I.2.1.2 Chute d'une sphère dans des fluides élastiques en régime permanent

Modification des lignes de courant

A notre connaissance, il n'existe pas en général de solution analytique pour le champ de vitesses autour d'une sphère en régime permanent dans un fluide non-newtonien. Les travaux théoriques sont limités à de faibles déviations du comportement newtonien (Leal 1979).

Arigo et al (1995) ont étudié expérimentalement et numériquement la chute de sphères en fluides viscoélastiques. Ils observent qu'à faible nombre de Deborah, le champ de vitesses est symétrique en amont et en aval de la sphère. En augmentant le nombre de Deborah cette symétrie disparaît et un sillage dont la vitesse axiale décroît lentement se développe. Comme le confirme Bush et al (1993), par comparaison avec le cas d'un fluide newtonien, les lignes de courant ne sont guère modifiées par l'élasticité en amont de la sphère mais le sont surtout en aval de la sphère. En aval de la sphère, les lignes de courant semblent être rejetées loin de la sphère lorsque l'élasticité augmente.

Contrairement à Bisgaard (1983), ils n'observent pas de fluctuations dans la traînée de la sphère ni de sillage négative aussi bien expérimentalement que numériquement.

Le champ de vitesses ainsi que les différentes composantes du tenseur des contraintes autour de l'écoulement de la bulle sont donnés par Arigo et al (1995). Plus on se rapproche du cas du milieu infini i.e. plus le rapport (diamètre de la sphère)/(diamètre de la colonne) est petit, plus le sillage est long en aval de la sphère.

Présence d'un sillage négatif

Par sillage négatif, on entend la présence dans le sillage de la sphère d'un champ de vitesses de sens opposé au sens de déplacement de la sphère.

Expérimentalement, Sigli et Coutanceau (1977) ont déterminé le champ de vitesses et les lignes de courant au moyen de particules traçantes et d'une caméra fixe ou se déplaçant à la même vitesse que la sphère. Ils confirment la perte de symétrie entre l'amont et l'aval de la sphère en présence d'élasticité. Par photographie, ils déterminent la zone de traînée négative ainsi que le point d'arrêt (point où la vitesse est nulle) en aval de la sphère.

De nombreux travaux de simulation numérique se sont attachés à calculer le champ de vitesses autour d'une sphère en régime permanent dans un fluide viscoélastique en testant différents modèles rhéologiques. A notre connaissance, Satrape et Crochet (1994) sont les seuls à avoir mis en évidence la présence d'un sillage négatif en aval de la sphère par simulation numérique.

Influence de la période d'injection

Dans un fluide viscoélastique, la période d'injection (intervalle de temps entre deux lâchés successifs de billes, ou d'injection successive de bulle) a une influence aussi bien sur la vitesse de chute d'une

sphère que sur la vitesse ascensionnelle des bulles. Cho et al (1984) ou Bisgaard (1983) observent une diminution de la vitesse de chute d'une sphère avec une augmentation de la période d'injection pour un temps d'injection allant jusqu'à 30 minutes pour une solution de PAAm. Ces résultats ont été confirmés par Ambeskar et Mashelkar (1990).

I.2.2 Ascension des bulles en fluide non-newtonien

Comme nous l'avons fait précédemment pour l'ascension de bulles dans des fluides newtoniens, nous allons voir successivement l'influence du comportement non-newtonien du fluide sur la vitesse ascensionnelle, sur la forme des bulles ainsi que sur le champ de vitesses environnant.

I.2.2.1 Vitesse ascensionnelle

Discontinuité dans la vitesse ascensionnelle

La vitesse ascensionnelle des bulles en fonction de leur volume a été étudiée par de nombreux auteurs. Astarita et Appuzzo (1965) ont constaté la présence d'une étonnante discontinuité dans l'évolution de la vitesse ascensionnelle des bulles en fonction de leur volume dans des solutions non - newtoniennes (voir figure I.8). Cette discontinuité, a été et est encore l'objet d'un important débat.

Cette discontinuité a lieu pour des bulles d'environ $3x10^{-3}$ m de rayon (Zana et Leal 1978) ou des volumes de bulles de 10 à $100x10^{-9}$ m^3 (Astarita et Apuzzo 1965, Haque et al. 1988) et pour des vitesses ascensionnelles de 0,5-$10x10^{-2}$ m/s (Haque et al 1988) ou 1-$10x10^{-2}$ m/s (Acharya et al 1977).

Certains auteurs comme Acharya et al (1977) ont déterminé un rayon critique pour lequel cette discontinuité a lieu :

$$R_{critique} = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho g}} \qquad \text{I.20}$$

Ce rayon critique correspondrait aussi au passage du régime de Stokes au régime d'Hadamard.

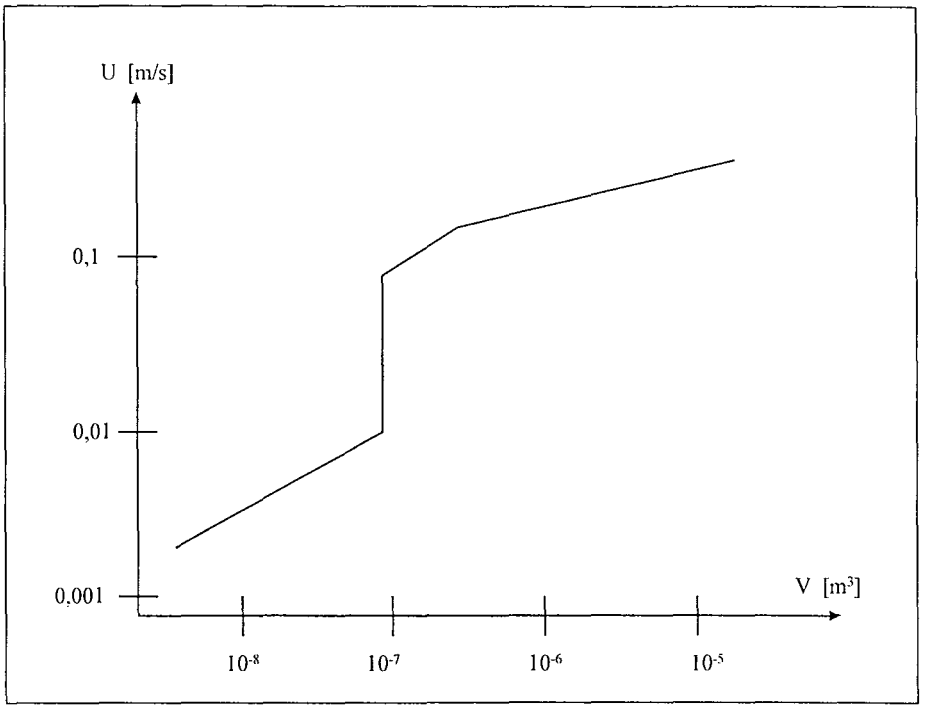


Figure I.8 : Discontinuité de la vitesse ascensionnelle observé dans une solution aqueuse de J-100 (additif commercial) de 0,25% d'après Astarita et Apuzzo (1965)

Cette discontinuité est importante pour des fluides rhéofluidifiants (solutions de CMC), mais l'est plus encore pour des fluides viscoélastiques (solutions de PAAm, Polyox...). A titre d'exemple, ce « saut » de vitesse ascensionnelle atteint des valeurs de 5 à 10 pour Leal et al (1971).

La première explication avancée pour expliquer cette discontinuité a été d'attribuer cette discontinuité à un changement dans l'interface de la bulle, notamment au passage d'un régime d'écoulement à interface rigide (régime de Stokes), à un régime d'écoulement à interface libre (régime d'Hadamard-Rybczynski).

Deux arguments expérimentaux ont plaidés en faveur de cette explication :

- La vitesse ascensionnelle de gouttes dans des fluides non-newtoniens présente aussi une discontinuité, celle-ci étant toutefois moins abrupte (Kawase et Ulbrecht 1981).
- La chute de sphères dans ces mêmes fluides ne présente aucune discontinuité (Zana et Leal 1978).

Mais comme le remarquent Zana et Leal (1978) ou Leal et al. (1971), pour un fluide newtonien, le saut théorique de vitesses lors de ce changement de régime devrait être de 3/2. La discontinuité de 5 à 7 observée pour des fluides non-newtoniens dépasse largement cette valeur et ne pourrait donc s'expliquer uniquement par cette transition d'après Acharya et al. (1977).

Pour trouver l'origine de cette discontinuité, au lieu d'utiliser un gaz inerte, Zana et Leal (1978) ont utilisé du CO_2 , (gaz absorbé par la phase continue). En présence d'absorption de gaz, il n'existe pas de discontinuité de la vitesse ascensionnelle. En effet, du fait de l'absorption de CO_2, la capacité de la

surface à soutenir les contraintes tangentielles change, et ainsi la transition d'une interface rigide à une interface libre s'effectue plus doucement. Ceci apporte une preuve indirecte à l'explication de cette discontinuité par un phénomène interfacial. Il faut cependant noter que Calderbank (1970) en employant aussi du CO_2 n'a pas observé la disparition de cette discontinuité.

Suite à leurs expériences sur la discontinuité de la vitesse ascensionnelle, Zana et Leal (1978) présentent deux modèles explicatifs :

- le modèle du film : dans ce modèle une troisième phase comme une membrane dans laquelle les molécules de polymères sont très enchevêtrées se formerait autour des petites bulles. Ce film posséderait une certaine élasticité à la rupture. La transition abrupte résulterait de la rupture de ce film sous l'effet des contraintes de cisaillement appliquées à la surfaces de la bulle.
- le modèle dit « des surfactants » : dans ce modèle les polymères agissent à la surface de la bulle comme des surfactants. Le gradient de surfactants (donc aussi de tension interfaciale) induit par l'écoulement à la surface de la bulle entraînerait une condition de non-glissement à cette surface. La discontinuité observée pour les fluides viscoélastiques viendrait donc de la disparition brutale de ce recouvrement de surfactants pour des bulles plus grosses.

Toujours suivant ces auteurs, seul le second modèle est compatible avec l'absence de discontinuité lors de l'utilisation du CO_2, gaz absorbé par le milieu continu.

Mais malgré les nombreuses recherches effectuées sur le sujet, cette discontinuité n'est pas observée par certains auteurs (De Kee 1986, Chan Man Fong 1994, Miyahara et Yamanaka 1993, Mouline 1996), ce qui remet en question toutes les tentatives d'explications proposées.

Pour essayer de donner une explication unique à des observations qui peuvent apparaître comme contradictoires, Rodrigue et al (1996), ont regardé l'influence de la présence de surfactants sur la vitesse ascensionnelle des bulles en fonction de leur volume pour des milieux newtoniens et non-newtoniens.

D'après leurs observations :

- Pour les fluides newtoniens, aucune discontinuité n'est observée, avec ou sans surfactants.
- Pour les fluides non-newtoniens :
  - à faible concentration en polymère (< 0,10%), et en absence de surfactants aucune discontinuité n'a lieu
  - en présence de surfactants la discontinuité a lieu
  - en absence de surfactants et pour des concentrations importantes de polymère (> 0,10%), il y a discontinuité

Comme le soulignent Rodrigue et al (1996), le fait que les polymères agissent comme des surfactants permettrait de mieux comprendre les résultats. La discontinuité résulterait, selon cette hypothèse, du rapport entre forces de tension de surface et forces élastiques :

- à faible concentration en polymères : absence de surfactants et faible force élastique, le rapport (force élastique)/(force de tension de surface) conduit à une transition Stokes-Hadamard graduelle
- à plus forte concentration en polymères : absence de surfactants et force élastique plus importante, le rapport (force élastique)/(force de tension de surface) augmente ce qui crée une discontinuité
- à plus forte concentration en surfactants, la tension de surface diminue ce qui entraîne une augmentation du rapport (force élastique)/(force de tension de surface) et induit une discontinuité

I.2.2.2 Forme des bulles

Description qualitative de la forme des bulles

Dans les fluides rhéofluidifiants ou viscoélastiques, les bulles, sphériques quand elles sont petites, passent par une forme d'ellipsoïde allongé, puis très vite, prennent la forme de goutte d'eau renversée (ou forme de poire), puis la forme de calotte sphérique tout en conservant leur queue (Astarita et Apuzzo 1965, De Kee 1986) (figure I.9).

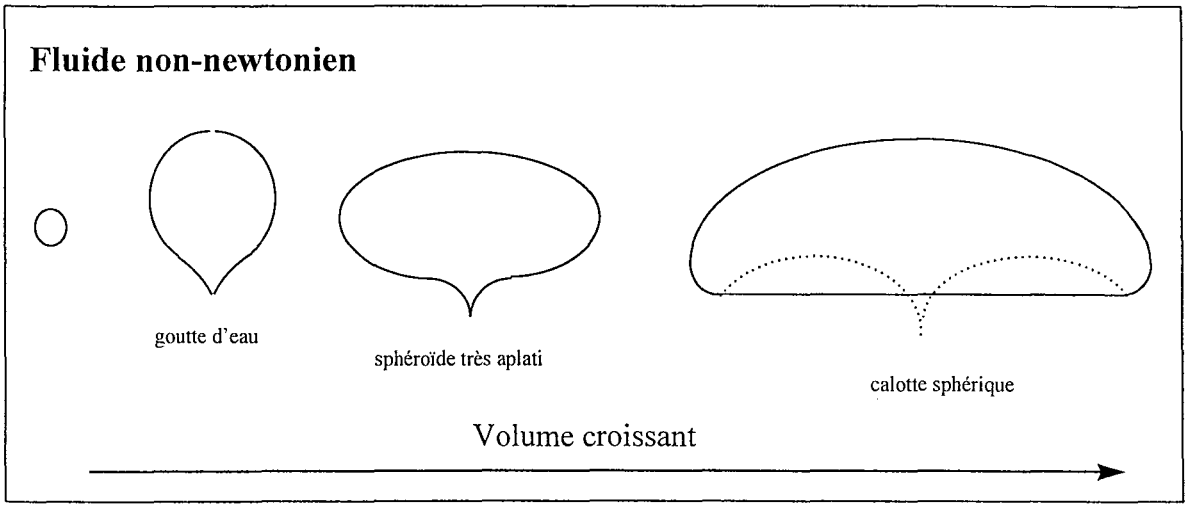


Figure I.9 : forme générique des bulles dans un fluide non-newtonien

Tsukada (1990) donne une cartographie très simplifiée de la forme des bulles pour une solution de CMC. Cette cartographie a été obtenue par simulation numérique pour un fluide suivant la loi de puissance dont l'indice de rhéofluidifiance est de 0,7. En dehors de cet essai de cartographie effectué dans des conditions bien précises, contrairement aux fluides newtoniens, aucune cartographie générale de la forme des bulles n'existe dans la littérature.

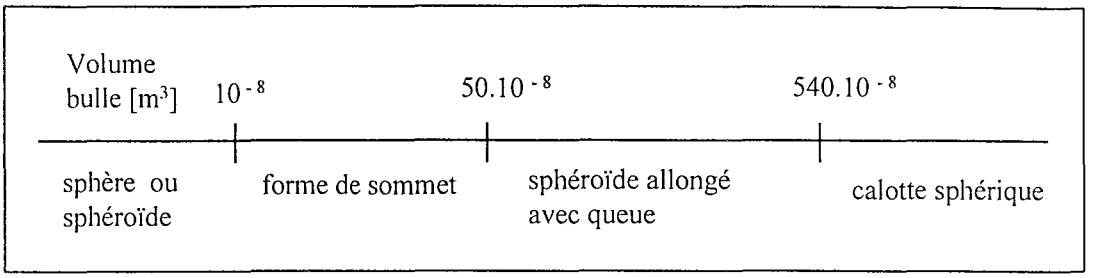


Figure I.10 : Evolution de la forme des bulles pour une solution de 1% de Polyox (Calderbank et al. 1970)

La présence d'une queue est une particularité des bulles et des gouttes en fluides non-newtoniens (Calderbank et al 1970). Les auteurs tentent d'expliquer ce phénomène par l'incapacité du fluide déplacé par la bulle à recouvrir suffisamment rapidement la place laissée libre, d'où la présence "d'un trou" à l'arrière de la bulle. Ceci entraînerait une dépression et la formation d'un sillage (De Kee et al 1990).

Suite à leurs expérimentations dans 0,5 - 1 et 1,5% de PAAm, ces mêmes auteurs, comme Zana et Leal (1978) observent que les transitions d'une forme de bulle à une autre se font pour des volumes de bulles plus grands lorsque la concentration en polymère augmente.

forme de bulles	sphère	goutte d'eau	sphéroïde très aplati	calotte sphérique
0,5% PAAm	$4.10^{-8} < V$	$4.10^{-8} < V < 15.10^{-8}$	$15.10^{-8} < V < 250.10^{-8}$	$250.10^{-8} < V$
1% PAAm	$5.10^{-8} < V$	$5.10^{-8} < V < 50.10^{-8}$	$50.10^{-8} < V < 750.10^{-8}$	$750.10^{-8} < V$
1,5% PAAm	$7.10^{-8} < V$	$7.10^{-8} < V < 20.10^{-8}$	$20.10^{-8} < V < 1100.10^{-8}$	$1100.10^{-8} < V$

Tableau I.1 : Evolution de la transition de forme des bulles avec la concentration en polymère volumes donnés en m^3 (De Kee et al. 1990)

Description quantitative de la forme des bulles

L'excentricité de la bulle, rapport entre sa largeur et sa hauteur, est utilisée pour donner une description quantitative de la forme des bulles. Acharya et al. (1976) ont corrélé cette excentricité aux caractéristiques du fluide viscoélastique.

Pour $e < 1$

$$e = 0.616\, G_1^{-0.168} \qquad I.21$$

G_1 mesure le rapport entre contrainte élastique et contrainte de tension de surface $G_1 = \dfrac{A(U/R)^b}{\sigma/R}$, A et b proviennent d'une expression de la première différence des contraintes normales $\tau_{11} - \tau_{22} = A\dot{\gamma}^b$

$\dot{\gamma} \approx U/R$ est un cisaillement caractéristique autour de la bulle

Pour e > 1

$$e = 1 + 0.00083\, G_2^{-0.87} \qquad \text{I.22}$$

où $G_2 = \dfrac{\text{(contraintes élastiques).(contrainte de tension se surface)}}{\text{(contrainte inertielle)}^2} = \dfrac{A(U/R)^b(\sigma/R)}{\left(\rho U^2\right)^2}$

D'autres corrélations donnant l'excentricité des bulles dans des solutions de CMC ont été données par Miyahara et Yamanaka (1993) ou Zana et Leal (1978).

Forme bidimensionnelle de la queue de la bulle

Hassager (1979) fait remarquer que dans le cas de fluides très visqueux et élastiques, la forme de la bulle peut ne pas être axisymétrique. Dans le cas d'une solution de 1% de PAAm dans du glycérol, les bulles même petites ont une queue pouvant se terminer comme une lame de couteau dans une direction tout en se terminant en pointe suivant la direction perpendiculaire. A leur suite, Liu et al (1995), ont effectué une étude expérimentale très complète de cette queue (ou corne) bidimensionnelle présente dans les fluides viscoélastiques pour un nombre de capillarité au delà de l'unité. Ils constatent une grande variété de formes de ces queues bidimensionnelles, passant de la forme de bêche, d'axe, de flèche à celle de guillotine. L'orientation de cette queue bidimensionnelle n'est pas aléatoire.

Dans un réservoir rectangulaire, à faible vitesse, la partie large est parallèle à la paroi la plus proche, alors qu'à vitesse importante, elle est perpendiculaire à cette paroi. A vitesse modérée, la direction de la queue de la bulle connaît une rotation au cours de l'ascension.

Dans une colonne cylindrique, cette queue bidimensionnelle n'a pas d'orientation préférentielle.

I.2.2.3 Champ de vitesses autour d'une bulle

Le champ de vitesses autour d'une bulle apparaît comme une information capitale pour qui veut étudier l'hydrodynamique des bulles. Ces dernières années, bien que de nombreux progrès aient été faits aussi bien sur la visualisation des écoulements que sur leurs résolutions numériques, l'écoulement autour des bulles en fluide non-newtonien reste bien méconnu. Expérimentalement, la visualisation d'un écoulement non stationnaire n'est pas chose facile. Numériquement la déformation des bulles sous l'effet de l'inertie du fluide environnant et l'élasticité du fluide en régime transitoire sont deux sources de difficultés majeures.

Etude expérimentale

Coutanceau et Hajjam (1982), ont étudié expérimentalement l'ascension d'une bulle pour un fluide viscoélastique (Polyox 3,5%) dans une géométrie cylindrique. Bien que l'image du champ de vitesses ne soit pas extrêmement parlante, leurs remarques sont intéressantes.

Ils constatent que contrairement aux fluides newtoniens, pour les fluides viscoélastiques, la symétrie entre l'amont et l'aval de la bulle n'existe plus (figure I.11 et I.12). Ils constatent aussi la présence « d'un flux négatif » ou sillage négatif prenant naissance juste après la bulle. Cette perte de symétrie et la présence d'un sillage négatif sont communes aux bulles et aux sphères. L'existence de ce sillage négatif a été mentionnée pour la première fois par Hassager (1979).

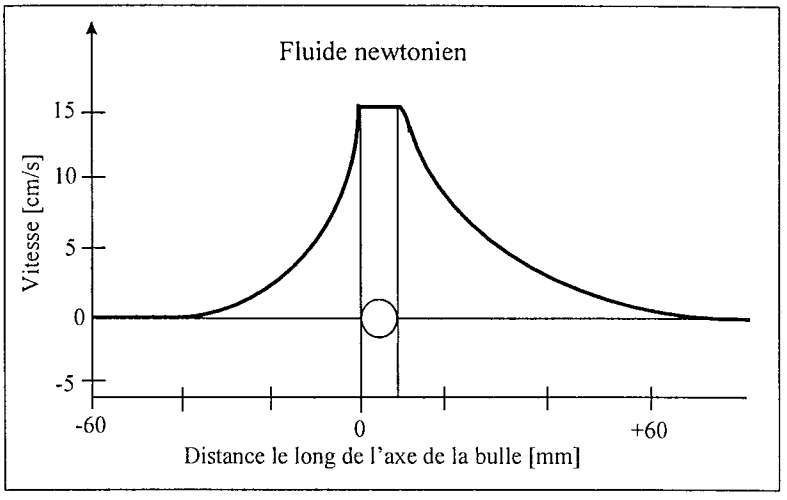


Figure I.11 : Vitesse du fluide sur l'axe de symétrie de la bulle pour un fluide newtonien (Hassager et al 1979)

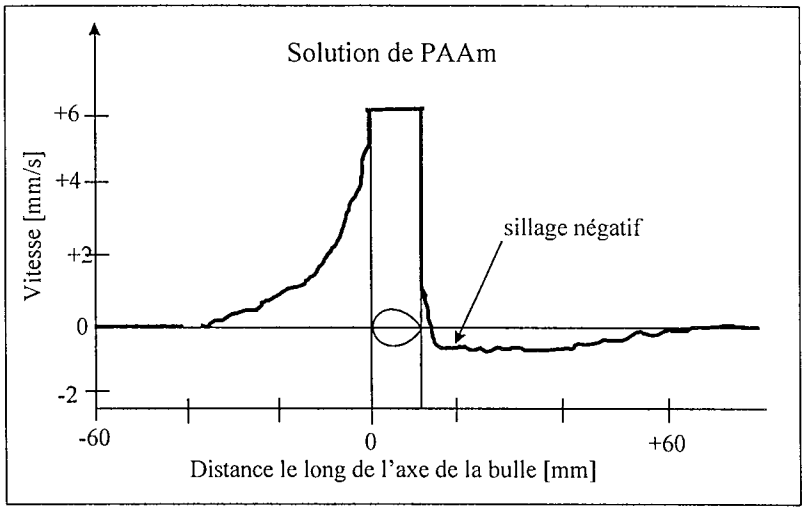


Figure I.12 : Vitesse du fluide sur l'axe de symétrie de la bulle pour un fluide viscoélastique (Hassager et al 1979)

Bisgaard (1983) a quantifié la portée et l'intensité de ce sillage négatif en mesurant par un anénomètre laser doppler la vitesse du fluide sur l'axe de symétrie de la bulle ainsi qu'à une certaine distance de cet axe pour une solution de PAAm. D'après ses résultats, ce sillage négatif ou traînée négative serait bien développé mais ne commencerait qu'à une certaine distance de la bulle. De plus, il serait bien plus important pour les bulles que pour les sphères de taille équivalente. Pour Liu et al (1995), l'existence d'une traînée négative tend à montrer que les forces extensionnelles, qui tendent à arracher la queue, l'emportent sur les effets modérateurs de la tension interfaciale. Nous aurons

l'occasion de revenir plus tard (au paragraphe I.3.2.4) sur l'importance de l'élasticité sur la chute d'une sphère ou l'ascension d'une bulle.

Etudes numériques

Certains auteurs comme Kawase et Ulbrecht (1982), Leal et al. (1972) ou Chhabra et Dhingra (1986), pour tenir compte de la rhéofluidifiance ou de l'élasticité du fluide dans le calcul du coefficient de traînée, se sont intéressés à la résolution du champ de vitesses autour d'une bulle sphérique en effectuant quelques approximations ou en utilisant le principe variationnel.

L'absence de simulations numériques faisant apparaître le sillage négatif après la bulle ou calculant la forme des bulles avec la très caractéristique queue, montre la difficulté de ce problème.

I.2.3 Effets des surfactants

Effet sur la vitesse ascensionnelle

La présence d'impuretés ou de surfactants influe sur l'ascension des bulles. Pour des fluides non-newtoniens, Rodrigue et al (1997) constatent une diminution de la vitesse ascensionnelle par ajout de surfactants, mais cette influence n'existerait qu'en dessous d'un volume critique situé entre 10 et 100×10^{-9} m^3. Au delà, l'effet de ces impuretés devient négligeable.

Cette diminution de la vitesse ascensionnelle par ajout d'agents tensioactifs a été calculée analytiquement par Kawase et Ulbrecht (1982) dans le cas d'une sphère fluide (liquide ou gaz) pour un fluide non-newtonien en écoulement rampant. Ils ont tenu compte de la modification de la condition limite à l'interface (sphère fluide)/(phase continue) par ajout de surfactants.

Effet sur la forme des bulles

Comme pour les fluides newtoniens, en présence de surfactants, le changement de forme des bulles se fait pour des bulles de volume plus important. Pour des solutions de polymères viscoélastiques, De Kee et Carreau (1993) observent que l'ajout de surfactants influe sur la forme des bulles, mais n'a d'après eux, qu'une influence négligeable sur la vitesse ascensionnelle.

I.3. Interactions hydrodynamiques entre bulles et entre sphères

Jusqu'à présent, nous nous sommes intéressés au comportement de sphères ou de bulles isolées, dans un fluide newtonien ou non-newtonien, dans un milieu considéré le plus souvent comme infini. Pour se rapprocher du cas d'une colonne à bulles, les sphères et les bulles ne sont plus considérées à présent comme uniques et isolées, mais en interaction. Comme précédemment, le cas des sphères et des bulles seront considérés successivement.

I.3.1 Interactions entre particules rigides

Une littérature abondante décrit les interactions entre particules rigides. Seuls quelques éléments sont présentés ici.

Feng et al. (1996) ont simulé numériquement l'interaction entre une sphère et une paroi, entre deux sphères l'une à la verticale de l'autre, ainsi qu'entre deux sphères côte à côte dans un fluide viscoélastique.

Pour une particule qui sédimente dans fluide viscoélastique à proximité d'une paroi, il existe une distance d'équilibre : au delà de cette distance, la particule est attirée par la paroi, en deçà, elle est repoussée.

Pour un fluide élastique, deux particules alignées verticalement vont se rencontrer si leur séparation est inférieure à 8 fois leurs diamètres. Pour une distance plus grande, comme pour un fluide newtonien d'ailleurs, il n'y a pas de rattrapage. Tout en étant extrêmement prudent sur les conclusions, Riddle et al (1977) ont vu qu'il existait une distance critique entre divergence et convergence que l'on pouvait corréler aux paramètres rhéologiques du fluide.

En fluide viscoélastique, deux particules côte à côte vont s'attirer si elles sont assez proches. Si elles sont trop éloignées, elles n'interagiront pas. Mais les particules en se rapprochant vont modifier leurs positions respectives de sorte qu'à la fin de l'approche elles vont se retrouver alignées verticalement. Joseph et al. (1994) confirment par des résultats expérimentaux cette capacité des sphères à former des chaînes dans des fluides viscoélastiques.

Pour eux, ce chaînage des particules peut avoir deux origines :

- soit un rapport (première différence des contraintes normales N_1)/(contrainte tangentielle τ) important. Ce rapport engendrerait des forces inter-particulaires, une attraction des particules et un chaînage.
- soit un fluide conservant la mémoire de la rhéofluidification, ce qui crée des corridors de viscosité réduite.

D'après la simulation numérique de Feng et al. (1996), la répartition de la pression autour des particules, plus que tout autre effet de l'élasticité, serait responsable des interactions entre particules.

I.3.2 Interactions entre bulles

Dans cette partie, les interactions entre bulles sont prises en compte. Ces interactions peuvent mener au phénomène de coalescence, phénomène parfois recherché mais que l'on souhaite le plus souvent éviter. Après avoir fait ressortir les traits les plus marquants du phénomène de coalescence, dans une deuxième et troisième partie, nous nous intéresserons plus aux interactions entre bulles qui mènent à la coalescence pour les fluides newtoniens et non-newtoniens respectivement. Dans une dernière

partie, nous verrons plus précisément une particularité des fluides élastiques : l'influence de la période d'injection sur la forme et la vitesse ascensionnelle des bulles.

I.3.2.1 Le phénomène de coalescence

Les grandes lignes du phénomène de coalescence ne diffèrent guère pour un fluide newtonien ou pour un fluide non-newtonien. La coalescence dans ces deux milieux sera présentée conjointement en mentionnant les différences s'il y a lieu.

Physique du phénomène de coalescence

Les auteurs s'intéressant à la coalescence des bulles (Acharya et Ulbrecht 1978, Narayanan et al 1974, De Kee et al. 1990) distinguent trois étapes :

- la « bulle qui suit » entre dans le sillage de la « bulle en tête »
- dans le sillage de la bulle précédente, la bulle qui suit rencontre bien moins de résistance à l'avancement et s'approche ainsi rapidement de la bulle en tête jusqu'à ce qu'elles entrent en collision. Les deux bulles ne sont alors séparées que par un fin film liquide.
- si les forces extérieures serrent les deux bulles l'une contre l'autre suffisamment longtemps, le film liquide entre les deux bulles s'amincit par drainage du fluide jusqu'à se rompre. Acharya et Ulbrecht (1978) et Chaudhari et Hofmann (1994) estiment que ce film se rompt lorsque son épaisseur atteint 30×10^{-9} m et 10×10^{-9} m respectivement.

Marrucci (1969) a étudié sous l'angle théorique la dernière étape du phénomène de coalescence : le processus d'amincissement du film menant à sa rupture. Il distingue deux étapes :

- le premier stade est un amincissement extrêmement rapide du film par suite de l'étirement du film liquide séparant les deux bulles. On atteint un film en état de quasi équilibre d'épaisseur h_0. L'épaisseur h_0 du film est fonction de la tension interfaciale et du rayon de courbure.
- le deuxième stade est l'amincissement et la rupture de ce film en quasi équilibre. La durée de cette étape, qui est aussi le temps de coalescence, est fonction du coefficient de diffusion, du rayon de courbure et de l'épaisseur du film diffusif.

Ce temps de coalescence a été étudié expérimentalement dans des milieux eau - alcool par Ueyama et al (1993). Leur temps de coalescence va de quelque ms à 200ms environ. Ils ont constaté qu'il augmentait avec l'âge de la bulle, ce qui montre que la saturation de la surface nouvellement créée nécessite des temps plutôt longs (de 10 à 300s environ).

Dans leurs expériences, Acharya et Ulbrecht (1978) ont mesuré le temps entre le lâché de deux bulles à la verticale l'une de l'autre éloignées de quelques centimètres et leur coalescence, dans une solution rhéofluidifiante de CMC et une solution viscoélastique de PAAm. Dans leurs expériences, pour des bulles initialement distantes de quelques centimètres, ce temps était de l'ordre de la seconde. Ils ont

constaté que ce temps était plus long dans la solution de PAAm par suite d'une étape d'amincissement du film plus lente. Ils ont interprété cela comme une résistance à l'étirement des fluides viscoélastiques lors du drainage du film liquide. Cette résistance à l'étirement supplémentaire est propre aux fluides viscoélastiques.

Une étude récente (Mouline 1996) a été faite sur le système dynamique dissipatif que constitue un train de bulles en fluides non-newtonien et où des coalescences en ligne ont lieu. Par utilisation des outils de la physique du chaos, ils ont démontré que la coalescence en ligne des bulles dans un train de bulles en fluide viscoélastique est un phénomène chaotique et de surcroît déterministe, c'est à dire à petit nombre de degrés de liberté. A sa suite, Li et al (1997), ont montré l'existence de contraintes résiduelles dans la traînée des bulles. Ces contraintes s'accumulent, et sont, à leur avis, le phénomène physique qui gouverne la coalescence.

Paramètres influençant le nombre coalescence

Effet de la viscosité

Le nombre de coalescence augmenterait avec la viscosité (De Kee 86 repris de DeNevers, Crabtree, Narayanan...).

Effet de la pression sur la coalescence

Gera et Gautam (1995) notent qu'à haute pression, les fluctuations de vitesses engendrent des fluctuations relatives plus importantes de la force de traînée. Ainsi la tendance pour la bulle qui suit de se rapprocher et de coalescer avec la bulle précédente est augmentée.

Influence des surfactants

La présence de surfactants ralentit voire inhibe la coalescence (Ueyama et al 1992, De Kee et al 1990, Chaudhari et Hoffmann 1994). Selon ces derniers, les surfactants inhiberaient la coalescence des bulles par une augmentation de la viscosité interfaciale et une diminution de la tension interfaciale. Ces deux facteurs agiraient de concert pour diminuer la vitesse de drainage du film liquide. Par une action proche de celle des surfactants, la présence d'électrolytes inhiberait aussi le drainage du film et donc la coalescence.

Influence du champ sonore

Pour des bulles de petite taille ($0,5 < R < 2$ mm), dans l'eau, la coalescence est inhibée par la présence d'un champ sonore proche de la fréquence de résonance des bulles d'intensité suffisante (Duineveld 1996). L'expérience montre que cette inhibition provient d'une vitesse d'approche de la surface des deux bulles trop importante.

I.3.2.2 Interactions entre bulles dans un fluide newtonien

Dans cette partie comme dans la suivante, l'étude est centrée sur la première étape du phénomène de coalescence : l'étape du rapprochement des deux bulles.

Interactions en ligne entre deux bulles

Historiquement, Crabtree et Bridgwater (1971) furent les premiers à noter que dans des fluides visqueux newtoniens (mélange saccharose - eau 67%), pour de grosses bulles (volumes de 10 à $40x10^{-6}$ m^3), et pour des nombres de Reynolds de 40 à 80, deux bulles de même taille, l'une située à la verticale de l'autre, se rejoignaient. Ce phénomène de capture qui mène à la coalescence avait lieu même lorsque la distance initiale séparant deux bulles atteignait 0,7 m.

Lors de leurs expériences, ils ont comparé la vitesse ascensionnelle des deux bulles qui se suivent avec celle d'une bulle isolée. Ils ont vu que la bulle en tête ne modifiait pas sa vitesse ascensionnelle, mais que par contre, la bulle dans le sillage augmentait sa vitesse jusqu'à rejoindre la bulle précédente. L'action de capture commençant bien plus en aval que le vortex toroïdal de la bulle en tête, ces derniers ont expliqué l'accélération de la bulle dans le sillage par une vitesse additionnelle due précisément au mouvement ascendant de ce sillage. Crabtree et Bridgwater (1971) ont construit ainsi un petit modèle théorique pour expliquer ce phénomène.

Suite au passage d'une bulle se déplaçant à la vitesse w, en un point à grande distance situé à une distance x verticale et r de l'axe vertical passant par le centre de la bulle, la vitesse du fluide dans le sillage est donnée par (Batchelor 1967) :

$$w = \frac{V\rho g}{4\pi \mu x} \exp\left[\frac{-Ur^2\rho}{4\mu x}\right] \qquad \text{I.23}$$

D'après ce modèle, en notant $U_{tête}$ et $U_{suivant}$ les vitesses respectives de la bulle en tête et de la bulle qui suit : $\frac{dx}{dt} = U_{suivant} - U_{tete} + w$ I.24

Par intégration, on peut calculer le temps théorique au bout duquel les deux bulles auront coalescé. Malheureusement, ce modèle trop simplifié ne donne pas des résultats très proches de l'expérience. Narayanan et al (1974), expliquent la mauvaise cohérence de ce modèle par une expression de la traînée donnée en régime de Stokes, alors que les nombres de Reynolds de bulles vont de 40 à 90. Pour de faibles nombres de Reynolds ($Re < 7$), Narayanan et al (1974) donnent une expression un peu modifiée du rapport des deux bulles. Pour $7 < Re < 80$, ils tiennent compte de deux contributions de vitesses additionnelles, l'une provenant de la vitesse du vortex toroïdal, l'autre d'une vitesse instable dans la traînée. Leur modèle semble donner de meilleurs résultats.

Un modèle plus complet mais partant du même principe de vitesse additionnelle dû aux interactions a été présenté par Bhaga et Weber (1980) ou Gera et Gautam (1995).

Yuan et Prosperetti (1994) ont effectué une simulation numérique de l'ascension de deux bulles sphériques qui se suivent. D'après leurs simulations numériques, les deux bulles initialement séparées d'une distance quelconque se stabiliseraient à une distance d'équilibre dépendant du nombre de Reynolds. Mais ils reconnaissent non sans humour, que ce cas n'a jamais été observé expérimentalement, et eux de conclure que le doute sur la possibilité de simuler simplement la dynamique des bulles est renforcé.

Interactions en ligne dans un train de bulles

Par bulles en ligne, nous entendons des bulles situées les unes à la verticale des autres. Des bulles situées à la verticales les unes des autres et injectées régulièrement en continue à un orifice, forment un train de bulles.

De Nevers et Wu (1971) ont étudié les interactions au sein d'un train de bulles : bulles de $1x10^{-2}$ à $2x10^{-2}$ m de diamètre distantes de $3x10^{-2}$ - $4x10^{-2}$ m dans un fluide newtonien eau ou glycérol. Ils ont constaté que si les bulles étaient suffisamment rapprochées, une bulle pouvait soudain accélérer et rattraper la précédente. Par un modèle simple basé sur des considérations géométriques de la forme de la traînée dans l'espace (forme de triangle ou d'exponentielle décroissante) on cherche à tenir compte des interactions entre bulles. L'ajustement d'un paramètre permet à ce modèle très simple de bien corréler les résultats expérimentaux. Dans leur étude, ils constatent étonnement qu'avant de coalescer, non seulement la bulle qui suit, mais aussi la bulle en tête augmente sa vitesse ascensionnelle.

La coalescence en ligne pour un fluide newtonien est aussi observée par Terasaka et Tsuge (1991) à partir d'un certain débit.

Acharya et Ulbrecht (1978) notent comme Narayanan, que la viscosité du milieu continu augmente le nombre de coalescences. Ceci s'interprète selon eux par un sillage bien plus étendu dans les fluides visqueux. Ainsi, la particule qui suit est prise dans le sillage de la particule en tête à des distances bien plus grandes.

Pour être complet dans le domaine du comportement de trains de bulle, il faut mentionner le travail d'Omran et Foster (1977). Pour des solutions visqueuses eau - glycérol, l'ascension de la « chaîne » de bulles donne au fluide une vitesse ascendante dans l'axe de la chaîne. Ainsi, de par ce mouvement ascendant du fluide induit par le train de bulles, la vitesse ascensionnelle des bulles va diminuer avec une augmentation de leur espacement pour atteindre asymptotiquement la vitesse d'une bulle isolée. Le train de bulle va donc être à l'origine d'une recirculation dans la colonne par un mouvement ascendant dans l'axe du train et descendant dans un anneau entourant ce train à proximité des parois. Précédemment, Crabtree et Bridgwater (1969), partant des mêmes observations, avaient très simplement modélisé ce macromélange induit par une chaîne de bulles en milieu newtonien visqueux par une ligne de force empruntant le chemin des bulles et entraînant le fluide dans son ascension. Une comparaison entre les résultats de leur modèle et les expériences montre la cohérence de ce modèle.

Interactions latérales

Terasaka et Tsuge (1991) ont étudié les coalescences latérales entre deux trains de bulles. Pour une solution eau - glycérol 68% et eau - glycérol 88%, il n'y avait pas de coalescence entre trains de bulles si leur espacement dépassait $5x10^{-3}$ et $14x10^{-3}$ m respectivement.

Manga et Stone (1993) ont donné une séquence très significative des interactions latérales qui peuvent exister. On voit comment une petite bulle placée en amont d'une bulle plus grosse et sur sa trajectoire, contourne celle-ci pour finalement être littéralement aspirée par l'arrière de cette grosse bulle et coalescer. Dans ce cas, le pouvoir de coalescer est lié à la capacité de la petite bulle à se déformer lorsqu'elle est aspirée par la grosse. Par la suite, ces interactions avec déformations et changements de trajectoire, sont modélisés par ces auteurs. Stewart et al. (1995) ont étudié les interactions entre bulles dans des fluides peu visqueux. Ils ont constaté que les coalescences n'ont pas lieu pendant la collision, ni même après n'importe quelle collision. Elles ont lieu principalement après un phénomène de « collision après entrée dans le sillage », i.e. après une collision qui fait suite à un processus d'approche par entrée d'une bulle dans le sillage de la précédente.

Remarque : De Nevers et Wu (1971) Narayana et al (1974), Bhaga et Weber (1980) ont noté une modification de la forme des bulles peu avant la collision. La bulle dans le sillage devient plus allongée, tandis que la bulle placée en tête s'élargit au fur et à mesure de l'approche. A leur suite, (Manga et Stone 1993) ont étudié et modélisé plus précisément la dernière phase du rapprochement entre deux bulles dans une solution newtonienne de glucose. Ils ont notamment regardé la déformabilité et la déformation des bulles pour différents nombres de Bond. Ces importantes déformations montrent l'existence de fortes interactions entre les bulles au cours de leur phase de rapprochement.

I.3.2.3 Interactions entre bulles dans un fluide non-newtonien

Les interactions entre bulles dans un fluide non-newtonien n'ont fait l'objet que de peu d'études.
Pour les interactions en ligne, Acharya et Ulbrecht (1978) notent que la taille du vortex toroïdal diminue avec l'élasticité, d'où d'après eux, une approche plus lente de la particule qui suit dans le cas de fluides viscoélastiques.

De Kee et al. (1986) se sont intéressés aux coalescences latérales entre des bulles injectées simultanément à une même hauteur séparées d'une distance Λ dans des solutions de PAAm et de CMC :

- plus la séparation initiale est importante, plus les bulles doivent être importantes pour coalescer
- dans ces deux fluides viscoélastiques, des bulles peuvent se heurter puis se séparer sans coalescer, surtout lorsque les bulles sont de taille équivalente

- l'élasticité réduit notablement la coalescence
- on favorise la coalescence entre deux bulles injectées simultanément à même hauteur en les injectant à une cadence élevée (moins de un hertz)
- une séquence photographique montre très nettement que la coalescence débute par un réarrangement spatial : une bulle prend la tête, puis la bulle qui suit entre dans la traînée de la bulle en tête.

Ils constatent aussi que trois bulles injectées simultanément se repoussent jusqu'à ce que la bulle centrale prenne la tête.

I.3.2.4 Cas particulier des fluides viscoélastiques : influence de la période d'injection

Dans les fluides viscoélastiques, le comportement des bulles dans un train ou leurs comportements suite à leurs introductions à une fréquence donnée, diverge très nettement de ce qui se passe dans des fluides newtoniens ou dans des fluides rhéofluidifiants. Nous avons mentionné précédemment l'existence d'un sillage négatif suite au passage d'une bulle dans un fluide viscoélastique. D'autres particularités comme l'influence de la période d'injection (temps séparant l'injection de deux bulles successives) sur la vitesse ascensionnelle de la bulle ou sur sa forme, nous montre que le passage d'une bulle influe sur la suivante même à des temps très longs (Bisgaard 1983), comme si le fluide gardait la mémoire de son passage. Nous allons voir au travers de la littérature l'importance de ces deux particularités et les hypothèses explicatives avancées.

Influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle

Le premier article s'intéressant à l'influence de la période d'injection des bulles sur la vitesse ascensionnelle est celui de Carreau et al (1974). Dans une solution viscoélastique (PAAm séparan 0,5% dans un mélange eau/glycérol 20% / 80%), la vitesse ascensionnelle des bulles dépend fortement de la période d'injection même pour des temps d'injection de 5000s. L'influence de la période d'injection est loin d'être monotone. Ainsi, pour de grosses bulles de 8 et $10x10^{-6}$ m^3, la vitesse ascensionnelle passe par un minimum pour τ = 30 et 140s respectivement.

A leur suite, Bisgaard (1983) étudia l'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle de bulles ou la vitesse de sédimentation de sphères pour une solution de 1% de PAAm dans du glycérol. Sur un montage où une grande attention fut portée pour éviter toutes sources de perturbations extérieures (montage mis entièrement sur coussins gonflables pour éviter des vibrations parasites venant du sol, double enveloppe thermostatée à $\pm$ 0,5°C), en injectant régulièrement des sphères toutes les 10 minutes, ils ont observé que la vitesse de sédimentation de ces dernières s'établit après quelques sphères à 30% au-dessus de la vitesse de sédimentation de la première sphère. Pour une période d'injection de 1 heure, la différence de vitesse est encore de 9%. Par anénomètrie laser doppler, il a mesuré la vitesse et la taille de la traînée négative. Il a constaté que la traînée négative était bien plus importante dans le cas des bulles que pour les sphères, et qu'elle commençait à une

plus grande distance de la sphère que de la bulle. Le fait que la traînée négative ne commence qu'à une certaine distance de la sphère pourrait expliquer que suivant la distance les séparant initialement, deux sphères se rejoignent si elles sont assez proches et s'éloignent au delà d'une certaine distance. Aussi, cet important sillage négatif qui commence juste derrière la bulle doit d'après Bisgaard (1983) avoir une influence sur la coalescence.
Lors de la mesure de la vitesse dans la traînée par anénomètrie laser doppler, il a pu voir d'importantes fluctuations de vitesses en fluides viscoélastiques, alors qu'en fluide newtonien, de telles fluctuations étaient absentes.

De Kee et al. (1986) ont effectué des expériences identiques à Carreau et al. (1974), en utilisant toutefois un PAAm plus hydrolysé et de moindre masse moléculaire ($4x10^6$ contre $5x10^5$) et n'ont pas observé de grande influence de la période d'injection. Ils ont expliqué que dans le cas des fluides utilisés par Carreau et al (1974), l'influence de la période d'injection ne pouvait être attribuée aux propriétés élastiques de la solution étant donné que temps de relaxation de celle-ci était de l'ordre de la seconde. Par contre, une forte orientation des chaînes de macromolécules due au mouvement de la bulle serait responsable de ce phénomène.

Influence de la période d'injection sur la forme des bulles

De même que Carreau et al. (1974) furent les premiers à observer l'influence de la période d'injection sur la vitesse des bulles, ils furent aussi les premiers à voir une influence importante de la période d'injection sur la forme des bulles. A même volume de bulles, de petites ou moyennes bulles prennent une forme plus étroite et plus allongée avec une augmentation de la période d'injection. Les grosses bulles passent même d'une forme de calotte sphérique à une forme lentille (ou sphéroïde aplati avec queue). Ainsi, en augmentant la période d'injection, des bulles de même volume peuvent passer de la forme d'une calotte sphérique à une forme de sphéroïde aplati avec queue jusqu'à une forme de goutte d'eau.

Hypothèses explicatives de l'influence de la période d'injection

Bien que la littérature concernant l'influence de la période d'injection sur la chute de sphères ou l'ascension des bulles soit abondante, et que les solutions utilisées soient à base de PAAm ou de polyox, fluides très utilisés en rhéologie, jusqu'à présent aucune hypothèse explicative ne s'est vraiment imposée.
Bisgaard (1983) par exemple, ne donne pas d'explication suite à ces observations. Pour lui, la dissipation visqueuse peut expliquer une baisse de viscosité, mais peut difficilement être responsable d'une augmentation de la vitesse de 30%.

Principalement deux sortes d'arguments ont été données : soit une migration des polymères donnant une hétérogénéité du milieu, soit une orientation des chaînes.

Cho et al. (1984) observent une influence de la période d'injection pour un temps allant jusqu'à 30 min pour une solution de PAAm. D'après eux, la chute d'une sphère ouvrirait ou détruirait localement la matrice du réseau polymère de haute masse moléculaire. L'espace laissé libre après la sphère serait occupé préférentiellement par le solvant, d'où une moindre résistance à l'avancement rencontrée par la bulle qui suit dans ce milieu perturbé.

Pour Carreau et al. (1974), si pour des périodes très courtes (de l'ordre de 2s), la forme et la vitesse de la bulle sont influencées par le mouvement résiduel dans le fluide par suite de l'ascension de la bulle précédente, pour des périodes plus longues, l'influence observée ne peut être causée que par des effets de « mémoire » du fluide. Comme mentionné précédemment, De Kee et al. (1986) en utilisant du PAAm de plus petite masse moléculaire n'ont pas observé d'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle ou sur la forme des bulles. Mais suite aux observations de Carreau et al. (1974), pour leur système, De Kee et al. (1986) ont avancé l'hypothèse d'une orientation des chaînes moléculaires suite à l'écoulement dû au passage de la bulle. Le PAAm de grande masse moléculaire et hydrolysé doit avoir en solution aqueuse une structure hautement développée. Ainsi, les chaînes de polymère peuvent être facilement orientées et offrent de ce fait une moindre résistance à l'avancement des bulles suivantes. Le retour à la configuration isotrope initiale ne sera possible par diffusion moléculaire que si le temps entre deux injections le permet. D'après ces mêmes auteurs, l'observation visuelle d'effets réfringents semble confirmer cette hypothèse.

A leur suite, Ambeskar et Mashelkar (1990) ont essayé de clarifier la situation en reprenant certaines hypothèses émises.

- Une analyse de la concentration avant la chute des sphères et après ne montre pas de modification de la concentration. Deux objections peuvent être faites à cette expérience. La première, que l'analyse ne soit pas assez précise pour voir la différence de concentration. Or, un petit calcul de migration de polymère sous cisaillement dans une couche limite aux alentours de la sphère donne un ordre de grandeur bien plus grand que la précision de la mesure. La deuxième objection serait que la chute des sphères induirait une recirculation suffisante pour homogénéiser à nouveau le milieu. Un calcul de recirculation permet d'après eux d'écarter facilement cette hypothèse. Ainsi, l'hypothèse d'une migration du polymère émise par Cho (1984) peut être écartée d'après eux.
- La capacité des chaînes de PAAm à former des liaisons hydrogènes intramoléculaires est souvent invoquée comme possible responsable. Mais des expériences faites dans du formamide ou de l'éthylène glycol, (milieux où les liaisons hydrogènes sont détruites), montrent une influence encore plus grande de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle. Les liaisons hydrogènes ne peuvent donc expliquer ce phénomène.
- La dernière hypothèse avancée serait le temps de récupération caractéristique. Expérimentalement, il est de 9 à 10 min pour une solution de 0,78% de PAAm alors que le temps de relaxation est de l'ordre de 20 s, ce qui fait rejeter cette hypothèse.

Pour conclure. Ambeskar et Mashelkar (1990) ne rejettent pas l'hypothèse d'effets d'orientation importants pour des structures moléculaires hautement développées dans des solutions de polyélectrolytes. Ainsi, il est probable que les polymères soient « structurés » et que ces « structures » soient détruites sous l'effet du cisaillement. Mais ce ne sont que des spéculations qui nécessiteraient d'autres confirmations.

Enfin, il faut mentionner le travail original appelé simulation rhéologique effectué dans ce domaine par Mouline (1996). Le cisaillement occasionné par les passages successifs des bulles dans un train de bulles a été simulé sur un rhéomètre. Ainsi, l'existence de contraintes résiduelles non relaxées a pu être mise en évidence. Cette accumulation de contraintes est à relier à l'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle.

I.4 Définition des objectifs de ce travail

Comme cela a déjà été mentionné, le comportement d'une colonne à bulle pour des fluides rhéologiquement complexes reste encore largement méconnu. Face à cette lacune, le GEMICO a décidé d'initier un travail approfondi dans ce domaine. Ce travail s'inscrit donc dans le cadre d'une thématique développée il y a déjà quelques temps maintenant au laboratoire. Il en conserve la démarche scientifique de décomposer et simplifier le plus possible le système étudié pour pouvoir observer, interpréter et comprendre les mécanismes existants.

Cette thèse fait suite à la thèse de Y. Mouline sur les colonnes à bulles en milieu non newtonien. Dans son travail, Y. Mouline a orienté ses recherches suivant trois axes principaux :

- l'étude de la vitesse ascensionnelle de bulles isolées et dans un train, dans divers fluides, en développant une simulation rhéologique permettant de traduire l'histoire du cisaillement que connaît le fluide par passage d'un train de bulles
- la modélisation de la formation d'une bulle à un orifice en milieu non newtonien
- l'étude du comportement d'un train de bulles en milieu non newtonien vu sous l'angle de la physique du chaos

La présente étude s'inscrit dans le prolongement de cette thématique. Un accent tout particulier a été mis sur le comportement en ascension des bulles, aussi bien pour des bulles isolées que pour un train de bulles.

Un premier objectif de ce travail est de distinguer les différents paramètres influençant l'ascension des bulles, le comportement d'un train de bulles ou de deux trains de bulles en interaction en insistant sur le phénomène de coalescence.

Un second objectif vise à une meilleur compréhension de la dynamique du fluide autour des bulles en ascension. Pour cela, nous avons été amené à effectuer des observations expérimentales spécifiques. Ces observations expérimentales permettrons de confirmer et d'expliquer quelques résultats obtenus sur l'ascension de bulles et sur le comportement d'un train de bulle.

Une partie importante de ce travail a été consacré à la caractérisation rhéologiques de fluides aux propriétés rhéologiques très différentes. Ceci était une étape nécessaire pour dégager l'influence des différents paramètres rhéologiques : élasticité, contraintes normales, rhéofluidification... sur l'ascension des bulles et sur la dynamique du fluide autour des bulles.

Nous avons choisi de mener deux études expérimentales tout à fait complémentaires. La première partie de l'étude est située au niveau de l'entité bulle : mesure de la vitesse d'une bulle isolée, étude de sa forme, quantification de la coalescence en fonction de divers paramètres comme la hauteur, le débit ou la viscosité du fluide. La deuxième partie de l'étude se situe dans le fluide, juste de l'autre coté de l'interface fluide - bulle. On y détermine comment s'organise le mouvement du fluide autour des bulles en mesurant les champs de vitesses et de contraintes. Cet éclairage nouveau donné par ces mesures de champ de vitesses et de contraintes nous a conduit à reconsidérer l'interprétation de certains résultats obtenus au niveau des bulles.

Ce mémoire est composé de huit chapitres que l'on peut regrouper en trois grandes parties.
La première partie est consacrée à :

- une étude bibliographique
- la description du montage et des conditions de fonctionnement
- la caractérisation rhéologique des fluides

Une deuxième partie est centrée sur le comportement ascensionnelle des bulles, individuelles ou en interaction dans un train de bulles.

La troisième et dernière partie s'attache à l'étude détaillée du champ de vitesses et de contraintes autour d'une bulle, toujours dans deux situations : isolées et dans un train de bulles, à l'aide des techniques de P.I.V. (Vélocimétrie par Images de Particules) et de biréfringence d'écoulement.

Chapitre II : Matériel, méthode et conditions de fonctionnement

II.1 Colonnes à bulles

Deux colonnes à bulles ont été utilisées dans ce travail :
- La première colonne a été construite par mon prédécesseur. Comme sa hauteur n'est que de 0,5 m, elle est appelée « petite colonne ».
- Une deuxième colonne de 1,6 m de haut a été construite dans le cadre de ce travail pour pouvoir étudier le comportement d'un train de bulles sur une plus grande hauteur. Cette colonne est appelée « grande colonne ». Dans cette colonne, un dispositif permet de faire varier graduellement l'écartement des buses d'injection. Ceci rend possible l'étude des interactions entre plusieurs trains de bulles en faisant varier la distance entre trains.

Une géométrie cylindrique a été choisie pour ne pas trop s'éloigner du cas industriel. La colonne à bulle proprement dite est un cylindre en plexiglas de diamètre intérieur de 0,29 et 0,24 m pour la petite et la grande colonne respectivement. Pour avoir un système parfaitement axisymétrique, lorsqu'un seul orifice est utilisé, il s'agit de l'orifice central. Lorsque deux ou plusieurs orifices sont utilisés, ils sont alignés suivant un diamètre. Cette colonne cylindrique est entourée d'une double enveloppe carrée remplie du même fluide pour éviter toute distorsion optique lors de la détermination de la taille et de la forme des bulles par analyse d'image.

Ces deux colonnes, peuvent être utilisées suivant deux configurations :
- soit un bullage « libre » ou continu. Dans cette configuration, seul le débit de gaz est contrôlé. Le volume et la fréquence de formation des bulles sont déterminés par les conditions opératoires : débits, orifice et fluide.
- soit un bullage commandé par électrovanne. Dans ce cas, le temps entre deux bulles injectées successivement ainsi que le volume de la bulle peuvent être choisis indépendamment.

II.1.1 La petite colonne

Sur la figure II.1, la petite colonne est représentée dans le cas d'un bullage libre.

Pour le besoin de certaines expériences, un capteur de pression de précision (Capteur de pression Lukas gamme 0 - 0,35 bar, précision de 0,1% de la pleine échelle), est mis sur la jonction vanne à aiguille - buse. Il permet de connaître les variations de pression entraînées par la formation des bulles juste sous l'orifice.

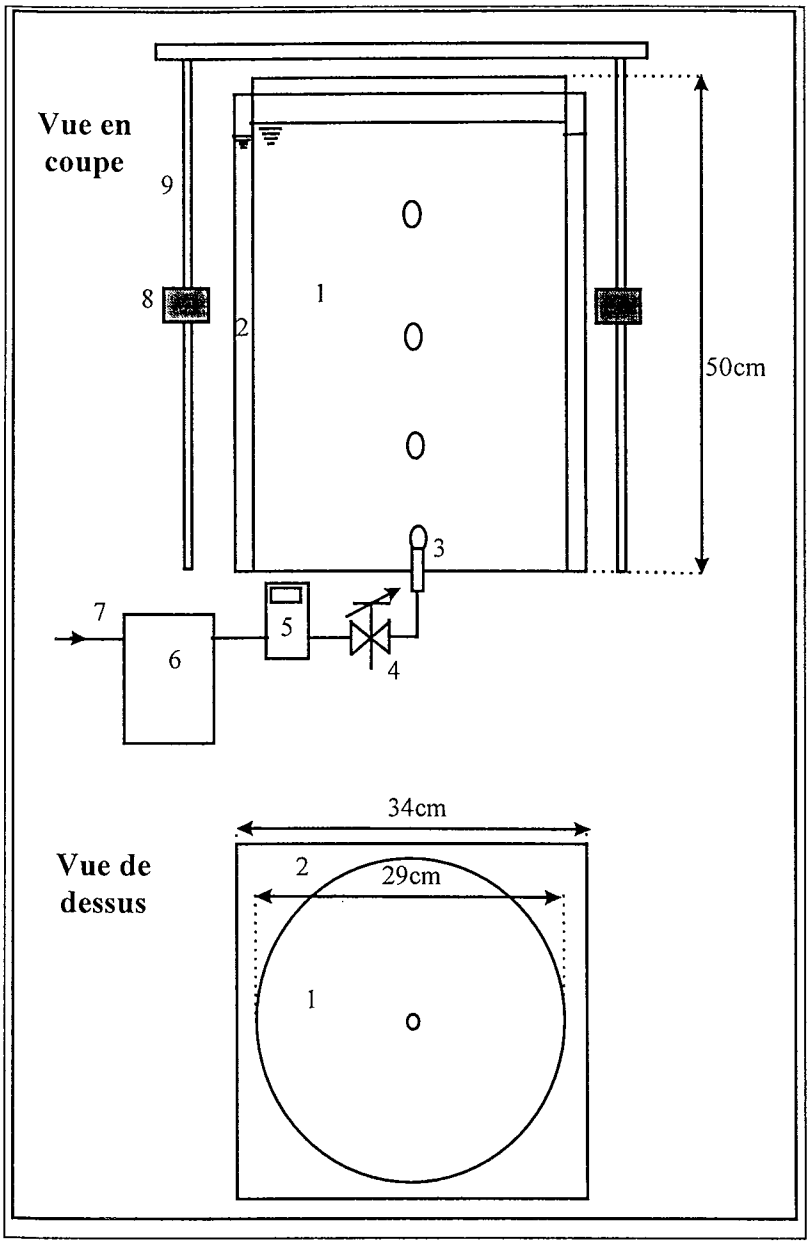


Figure II.1 : Montage de la petite colonne en bullage libre

1 cuve cylindrique
2 double enveloppe carrée
3 buse d'injection : buse en PVC, orifice de diamètre 10^{-3} m
4 vanne à aiguille
5 débitmètre massique
6 réservoir tampon de volume 4l
7 flux d'azote
8 système optique de détection du passage des bulles
9 portique permettant des mesures à différentes hauteurs

II.1.2 La grande colonne

Sur la figure II.2, la grande colonne est représentée dans le cas d'une injection utilisant l'électrovanne.

Un programme sur le logiciel d'acquisition contrôle commande TestPoint 3.0 (Capital Equipment Corporation) permet de transférer les ordres (temps de fermeture, temps d'ouverture de l'électrovanne) à un micro-contrôleur qui se charge de commander l'électrovanne par l'intermédiaire d'un relais statique. Lors des premiers essais, nous avions essayé de commander directement le relais statique par Testpoint, mais l'horloge de Windows n'étant pas assez précise, les bulles formées n'étaient pas suffisamment reproductibles. Le micro-contrôleur utilisé a une précision d'horloge de $1x10^{-6}$ s.

Ce dispositif permet de faire varier le temps d'injection sur une très large gamme. Pour nos expériences, nous l'avons fait varier entre 0,1 et 60s. Le temps d'ouverture de l'électrovanne est de $10x10^{-3}$ s en général.

Plutôt que de changer le temps d'ouverture de l'électrovanne qui ne peut varier que de façon discrète, pour pouvoir contrôler le volume des bulles le plus précisément possible, nous avons fait varier la pression dans le réservoir tampon. Pour un temps d'ouverture fixe de l'électrovanne de $10x10^{-3}$ s, une augmentation de la pression dans le réservoir tampon permet le passage d'une plus grande quantité de gaz, donc de former des bulles plus grosses. Cette pression dans le réservoir tampon est mesurée par un capteur de pression (capteur Lukas, gamme 0 - 0,35 bar, précision de 0,1% de la pleine échelle). Les volumes de bulles ainsi formées s'échelonnent entre $20x10^{-9}$ m^3 et un peu plus de 1 - $2x10^{-6}$ m^3.

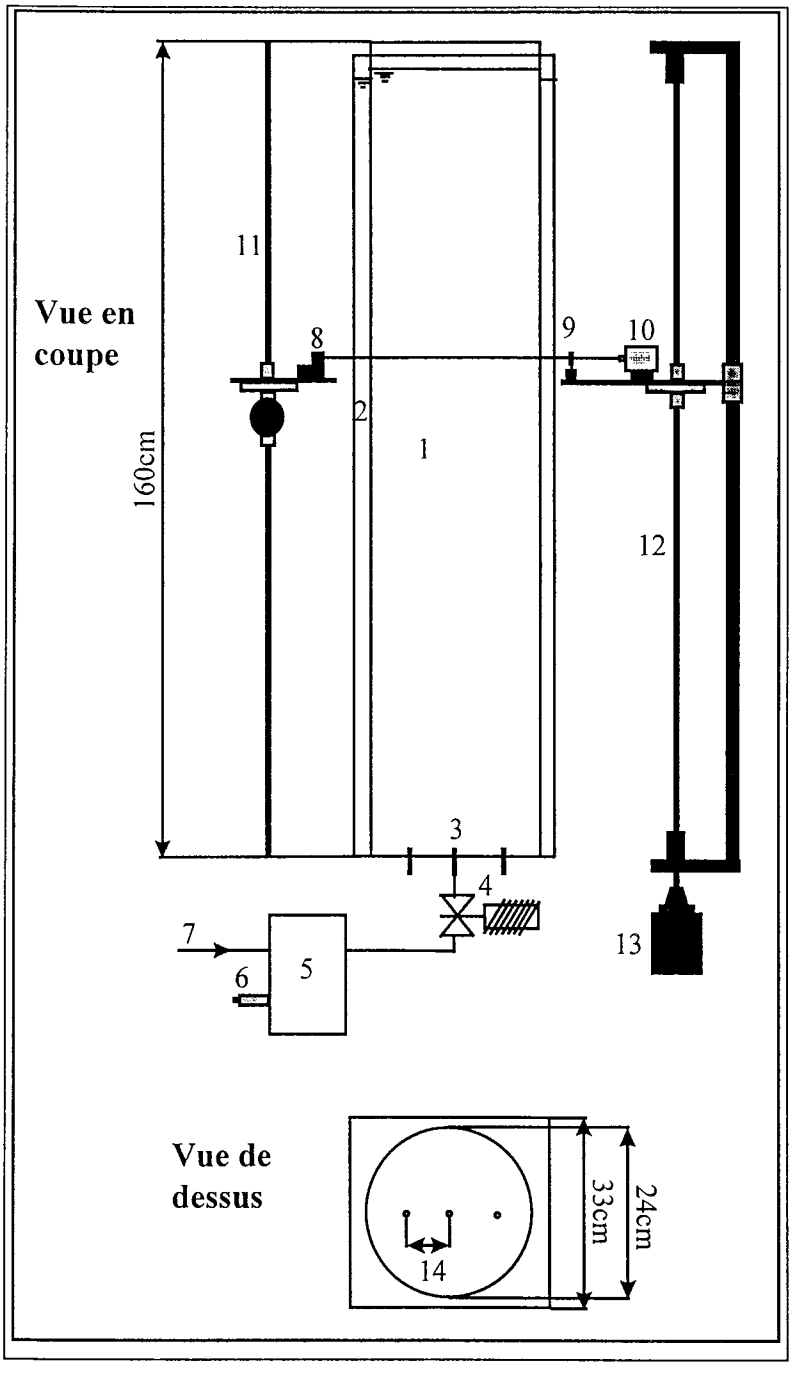


Figure II.2 : Montage de la grande colonne en bullage commandé par électrovanne

1 cuve cylindrique
2 double enveloppe carrée
3 buse d'injection : buse en inox, orifice de diamètre 10^{-3} m
4 électrovanne
5 réservoir tampon
6 capteur de pression
7 flux d'azote
8 laser-diode
9 lentille
10 diode et carte amplifiant le signal
11 crémaillère
12 crémaillère et axe de guidage
13 moteur actionnant la crémaillère
14 distance variable entre buses

Ce montage permet de faire varier la période d'injection et la taille des bulles indépendamment. Ainsi nous avons pu étudier l'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle des bulles ainsi que sur leurs formes.

II.2 Système de détection et d'acquisition des données

Lors de la thèse de Y. Mouline (1996), un dispositif de détection du passage des bulles utilisant une fente lumineuse fine et une barrette de diodes était utilisé. La différence d'indices entre le milieu continu et la bulle de gaz (indice de réfraction 1,33 et 1 respectivement), entraîne une réflexion presque totale de la lumière sur la surface de la bulle, d'où une extinction lumineuse importante sur la

diode placée en vis-à-vis. Ce système optique permet de détecter le passage des bulles. Comme le passage des grosses bulles donne une extinction lumineuse plus importante que celui des petites bulles, la hauteur des pics du signal donne une information qualitative sur la taille de la bulle qui traverse. Ce système a le désavantage de ne pas avoir de ligne de base très stable, toute fluctuation de la lumière ambiante étant détectée par la diode.

Pour améliorer ce système, nous avons remplacé la fente lumineuse par des petits lasers rubis (Lasermax Inc, longueur d'onde 670 nm, puissance 3 mW). La réflexion du laser sur la surface de la bulle étant quasiment totale, l'utilisation simple de ces lasers ne donnait malheureusement qu'une information tout ou rien. Pour conserver l'information sur la taille des bulles, nous avons élargi le faisceau afin d'avoir une nappe laser fine (figure II.3). Cette nappe laser horizontale est traversée par le train de bulles. De l'autre coté de la colonne, une lentille convergente (ϕ 22,4 mm, distance focale 200 mm, Melles Griot), fait converger le faisceau laser sur une diode. Un dispositif électronique mis au point par le service électronique du laboratoire LSGC permet d'amplifier le signal et de déplacer la ligne de base pour avoir un signal de grande taille donc plus précis pour l'acquisition, compris entre - 5 et + 5 V. Ce signal est acquis sur une carte d'acquisition Keithley DAS 1202 d'une résolution de 12 bits.

Pour connaître l'évolution du nombre de bulles avec la hauteur, le signal est acquis sur une durée assez longue à différentes hauteurs (typiquement 131072 points à une fréquence d'acquisition de 100Hz, soit environ 22 minutes, le nombre de bulles détecté varie de plusieurs centaines à quelques milliers). Un programme Fortran permet de connaître le moment du passage d'une bulle à travers le faisceau laser ainsi que le nombre total de bulles qui ont traversé le faisceau lumineux pendant le temps d'acquisition.

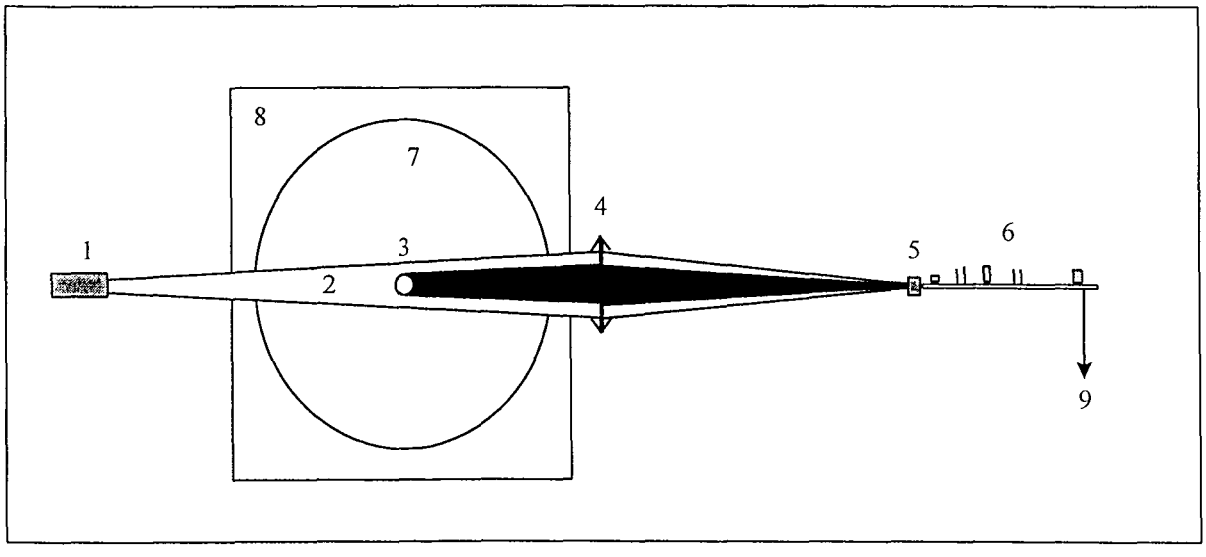


Figure II.3 : Dispositif de détection des bulles : 1 laser - 2 faisceau laser - 3 bulle - 4 lentille convergente - 5 diode - 6 carte amplification du signal - 7 colonne cylindrique - 8 double enveloppe - 9 acquisition sur PC

Pour connaître la vitesse des bulles, on utilise deux systèmes détection laser - diode situés sur le même axe vertical à 0,1 m de distance. Le temps de passage des bulles entre les deux nappes lasers permet de calculer très rapidement la vitesse ascensionnelle des bulles.

II.3 Système d'acquisition et d'analyse d'image

Pour connaître la taille des bulles, leur forme, l'évolution de leur forme ainsi que leur vitesse ascensionnelle, l'analyse d'image vidéo est le moyen le plus fréquemment utilisé. Dans nos expériences une caméra CCD (COHU 768*574 pixels), munie d'un zoom 18-108 mm est utilisée.
Un bon contraste entre la bulle et le fluide environnant est nécessaire pour une bonne exploitation ultérieure des images. Pour ce faire, une lampe de 100 W a été mise en vis à vis de la caméra (figure II.4). Ainsi, du fait de la grande différence d'indice entre l'air et l'eau et de l'éclairage par le fond, la lumière est réfléchie à la surface de la bulle et la bulle apparaît alors en noir sur fond blanc. Un temps d'obturation très faible (de 1/10000 à 1/4000 s) donne une bonne netteté du contour.
Les images sont enregistrées sur un magnétoscope Sony de haute résolution. Ce magnétoscope permet une avance pas à pas ainsi qu'un arrêt sur image de bonne qualité. Les images sont acquises via une carte d'acquisition d'images Oculus PCX/MX sur un ordinateur. De là, le logiciel de traitement d'images Visilog 4.1.3 permet de traiter l'image digitalisée et d'imposer un seuillage de l'image pour obtenir une image binaire sur laquelle le contour des bulles apparaîtra nettement. Par la suite, un programme permet de calculer le diamètre, la hauteur, l'excentricité, la surface et le volume de la bulle. Le déplacement d'une bulle sur deux images successives permet de déterminer une vitesse ascensionnelle instantanée.

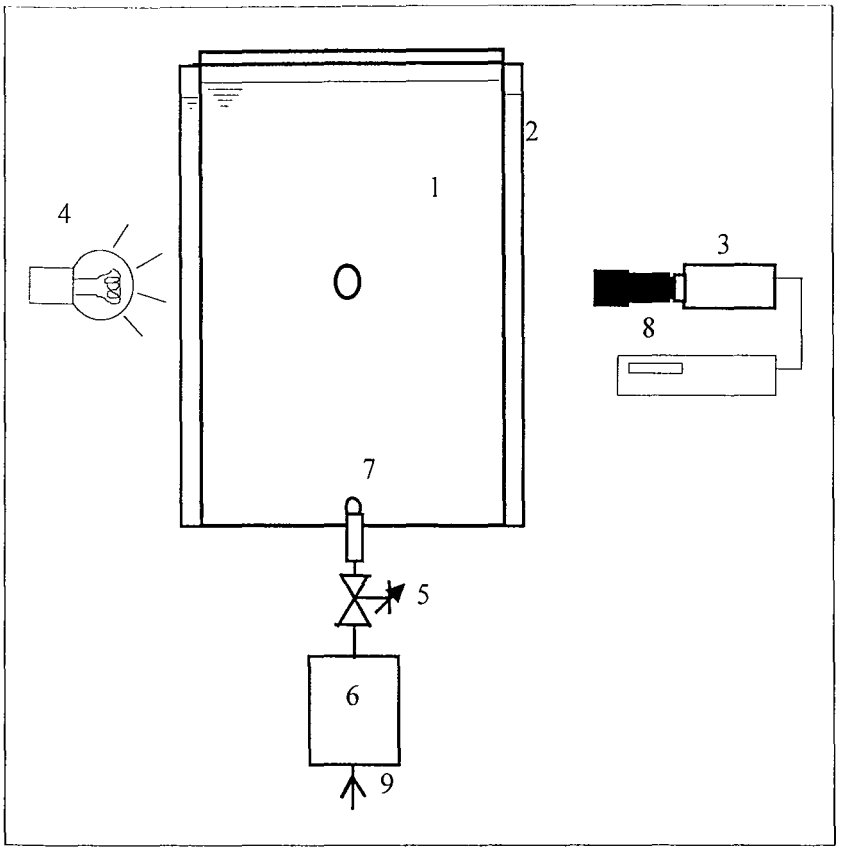


Figure II.4 : Montage expérimental
1 cuve cylindrique
2 double enveloppe carrée
3 caméra CCD
4 lampe de 100W
5 électrovanne
6 réservoir tampon
7 orifice $\phi = 10^{-3}$ m
8 magnétoscope
9 flux de gaz

II.4 Préparation des solutions

Les solutions de polymères sont préparées à partir d'eau déminéralisée et de polymères sous forme pulvérulente (CMC, HPC ou PAAm).

Dans une cuve de 20 ou $30x10^{-3}$ m^3, agitée par un ruban hélicoïdal double de dimensionnement recommandé par Nagata (1975), le polymère est ajouté progressivement en veillant à ne pas former de grumeaux. Le ruban hélicoïdal a été choisi car le faible cisaillement induit ne risque pas d'endommager les chaînes de polymères. Ce mobile d'agitation est très approprié pour mélanger des fluides visqueux.

Par suite du gonflement du polymère, la viscosité de la solution augmente rapidement. Ainsi pour homogénéiser la solution, une agitation de 24 à 48 heures est nécessaire.

Une faible quantité d'anti-bactériens (Azide de sodium NaN_3) est ajoutée lors de la fabrication de la solution pour éviter toute contamination.

Pour éviter l'évaporation des solutions qui induirait une modification de la viscosité, les colonnes sont systématiquement équipées d'un couvercle. Des mesures rhéologiques effectuées régulièrement ont montré que dans ces conditions, la viscosité du fluide était stable dans le temps.

II.5 Fonctionnement de la colonne à bulles

Introduction

Les deux colonnes à bulles utilisées dans les expériences ont été décrites précédemment. Il convient d'en présenter ici les caractéristiques de fonctionnement ainsi que les conditions dans lesquelles ces colonnes sont utilisées. Pour caractériser le fonctionnement, il sera fait référence à la littérature concernant les colonnes à bulles en milieux newtoniens et en milieux non-newtoniens.

II.5.1 L'orifice

Dans les deux colonnes, les expériences sont effectuées avec un orifice de 10^{-3} m de diamètre. Dans la petite colonne, l'orifice est en PVC, dans la grande colonne, l'orifice est en inox. Certains auteurs comme Miyahara et al. (1984) ont étudié le suintement ou pleurage d'un orifice i.e. le passage de fluide à travers l'orifice vers la chambre située sous l'orifice en sens inverse du gaz débitant. Ce pleurage de l'orifice est favorisé par de grands diamètres d'orifice. Nous avons vérifié expérimentalement que pour nos orifices, aucun suintement n'a lieu. Ce résultat est conforme aux observations de Miyahara et al. (1988) ou Costes et Alran (1978).

Le volume de la chambre située sous l'orifice influe sur la formation des bulles. Une augmentation du volume de la chambre augmente le volume des bulles formées (Miyahara et al. 1988). Dans notre cas, ce volume est très réduit, et correspond au volume compris entre la vanne à aiguille et l'orifice. Comme la vanne à aiguille est à l'origine d'une très importante perte de charges, on peut considérer que la chambre est constituée par l'espace situé entre cette vanne et l'orifice. Compte tenu de cette hypothèse, le volume de la chambre est estimé à $3\text{x}10^{-6}$ m^3 dans le cas de la grande colonne et à 10^{-6} m^3 dans le cas de la petite colonne. Assez souvent, on définit un nombre de chambre N_c par :

$$N_c = \frac{4V_c\left(\rho_l - \rho_g\right)g}{\pi d^2\left(P + \rho_l gh\right)}$$

N_c nombre de chambre

d diamètre de l'orifice : 10^{-3} m

V_c volume de la chambre : $3\text{x}10^{-6}$ m^3 pour la grande colonne, 10^{-6} m^3 pour la petite colonne

P pression atmosphérique : 10^5 Pa

ρ_l masse volumique du liquide : 1000 kg/m^3

ρ_g masse volumique du gaz : 1,15 kg/m^3

h hauteur de fluide 1,6 et 0,5 m pour la grande et la petite colonne respectivement

Numériquement, N_C = 0,32 et 0,12 pour la grande et la petite colonne respectivement. Ces nombres de chambre sont petits comparés aux valeurs de la littérature. Il est généralement admis (Terasaka et Tsuge 1992, 1993) que pour $N_C < 1$, le volume des bulles formées est indépendant du volume de la chambre.

II.5.2 Estimation des pertes de charge à travers l'orifice

Les deux buses d'injections utilisées ont un orifice de 10^{-3} m de diamètre. La buse utilisée dans la grande colonne a une longueur de 10^{-2} m tandis que la buse utilisée dans la petite colonne a une longueur de $5x10^{-2}$ m. Les pertes de charge à travers les orifices sont estimées en annexe II.A. Les mesures expérimentales sont cohérentes avec la relation débit - pertes de charge calculée en tenant compte des différentes singularités de la buse.

Pour la grande colonne $\Delta P = 13{,}23x10^{11}Q^2 + 7{,}13x10^{6}Q$

Pour la petite colonne $\Delta P = 13{,}23x10^{11}Q^2 + 3{,}56x10^{7}Q$

Pour le débit le plus important, les pertes de charge dans la petite et la grande colonne sont de 71 et 14 Pa, ce qui est très faible.
Avant la buse, les longueurs de tuyaux entre la vanne à aiguille et l'orifice sont faibles, et le diamètre intérieur de ces tuyaux sont respectivement double et quadruple du diamètre de l'orifice pour la petite et la grande colonne. Comme les pertes de charge en conduite cylindrique sont en $1/R^4$, seules les pertes de charges à travers l'orifice sont à prendre en compte.

II.5.3 Mode de formation des bulles

A partir des différentes caractéristiques de fonctionnement d'un orifice, beaucoup d'auteurs ont cherché à caractériser le mode de formation d'une bulle. Ils ont cherché notamment à savoir si les bulles se formaient à débit constant, à pression constante ou si on était entre ces deux cas limites.

Trois critères ont été utilisés :
- le premier critère est basé sur la valeur du nombre de chambre : un petit nombre de chambre (inférieur à l'unité), indiquerait une formation de bulles à débit constant, tandis qu'un grand nombre de chambre indiquerait une formation de bulles à pression constante. Mais ce critère est contesté par Costes et Alran (1978) qui observent dans une solution non-newtonienne de CMC une formation de bulles à débit constant pour de faibles débits et à pression constante pour des débits importants
- un critère géométrique : le rapport $L/d^4 > 10^{12}$ m^{-3} induirait une formation à débit constant

L est la longueur de la buse, d son diamètre

- un critère basé sur les pertes de charge $\frac{\Delta P}{(4\sigma / d)} > 1$ pour que l'on soit à débit constant

ΔP perte de charge à travers l'orifice, σ tension superficielle

$L/d^4 = 5x10^{10}$ et 10^{10} m^{-3} et $\frac{\Delta P}{(4\sigma / d)} = 0,5$ et 0,1 pour la petite et la grande colonne respectivement.

Expérimentalement, en ajoutant un capteur de pression dans la chambre, (ce qui malheureusement doublait aussi le volume de celle-ci), on mesure dans la chambre des fluctuations de pression de l'ordre de la centaine de Pascals.

II.5.4 Régime d'écoulement

Lors de l'utilisation de la colonne à bulles par un bullage en continu, pour une géométrie donnée, le débit de gaz est le seul paramètre que l'on puisse faire varier. Le débit de gaz va déterminer le régime d'écoulement. Comparée aux études réalisées dans des fluides de viscosité équivalente, la gamme de débits que nous étudions (de 0,02 à $2x10^{-6}$ m^3/s) est notablement plus faible (Costes et Alran 1978, Terasaka et Tsuge 1993, Miyahara et al. 1988).

Notre gamme de débits correspond à la formation « bulle à bulle » ou « single bubbling ». Les bulles se forment une à une, à faible fréquence, sont nettement séparées lors de leur formation et ne coalescent pas dès leur formation comme c'est le cas pour des débits plus importants. Etant donnée l'importante viscosité des fluides, les bulles montent verticalement sans osciller. Ce n'est que pour les débits les plus importants et les fluides les moins visqueux que les bulles connaissent une légère perte de leur axisymmétrie.

Un nombre de Reynolds de l'orifice peut être calculé comme l'ont fait Costes et Alran (1978).

$$Re = \frac{\rho_g u d}{\mu}$$

ρ_g masse volumique du gaz : 1,15 kg/m^3

μ viscosité de l'azote : $1,75x10^{-5}$ Pa.s

Re = 167 pour le débit de gaz le plus important, ce qui correspond à un débit très faible d'après Costes et Alran (1978).

Dans toutes les expériences que nous avons effectuées, le régime d'écoulement est celui où les bulles se forment isolément. On est loin du régime d'établissement d'un jet, qui pour Costes et Alran (1978) commencerait au-delà d'un nombre de Reynolds de 4000.

II.5.5 Volume des bulles formées et fréquence de formation des bulles

Une fois fixé le débit de gaz, le volume des bulles formées et leurs fréquences de formation sont fixés. La taille des bulles formées croît avec la viscosité du fluide. De même, la fréquence et le volume des bulles augmentent avec le débit. L'évolution du volume des bulles avec le débit de gaz dans la petite colonne est représentée sur la figure II.5.

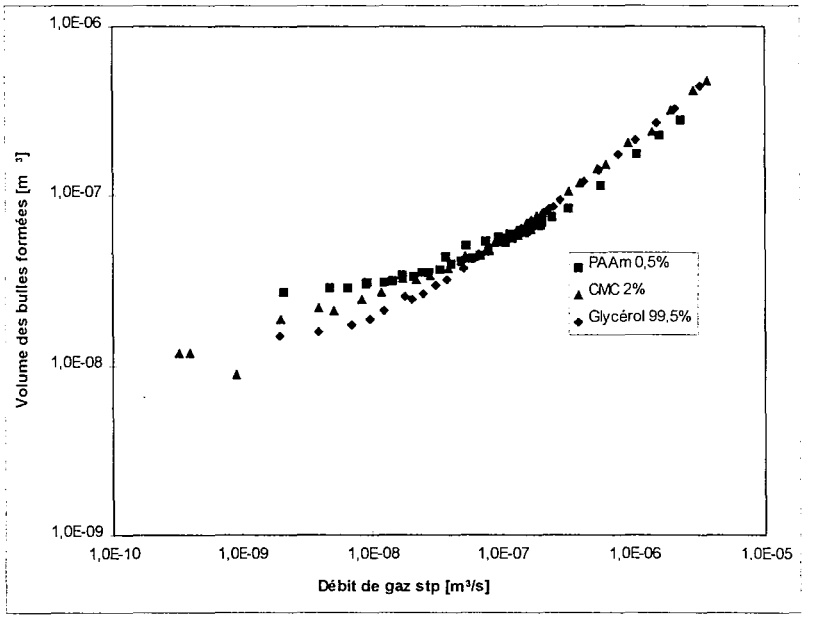


Figure II.5 Evolution du volume des bulles formées à un orifice de 10^{-3} m de diamètre en fonction du débit de gaz dans la petite colonne

La figure II.6 représente l'évolution de la fréquence de formation des bulles avec le débit de gaz pour trois des fluides utilisés lors de notre étude. Ces expériences ont aussi été effectuées dans la petite colonne.

Le volume de bulles est une fonction croissante du débit de gaz.

Pour de grands débits de gaz, ($Q > 10^{-7}$ m^3/s), le volume des bulles formées dépend peu des propriétés rhéologiques des fluides.

Dans cette zone, il est possible d'exprimer le volume des bulles en fonction du débit de gaz sous forme de la loi de puissance : $V = 0{,}001 \times Q^{0{,}61}$

Q débit de gaz [m^3/s]

V volume de la bulle [m^3]

A faible débit de gaz par contre, les propriétés rhéologiques des fluides influent nettement sur le volume des bulles formées.

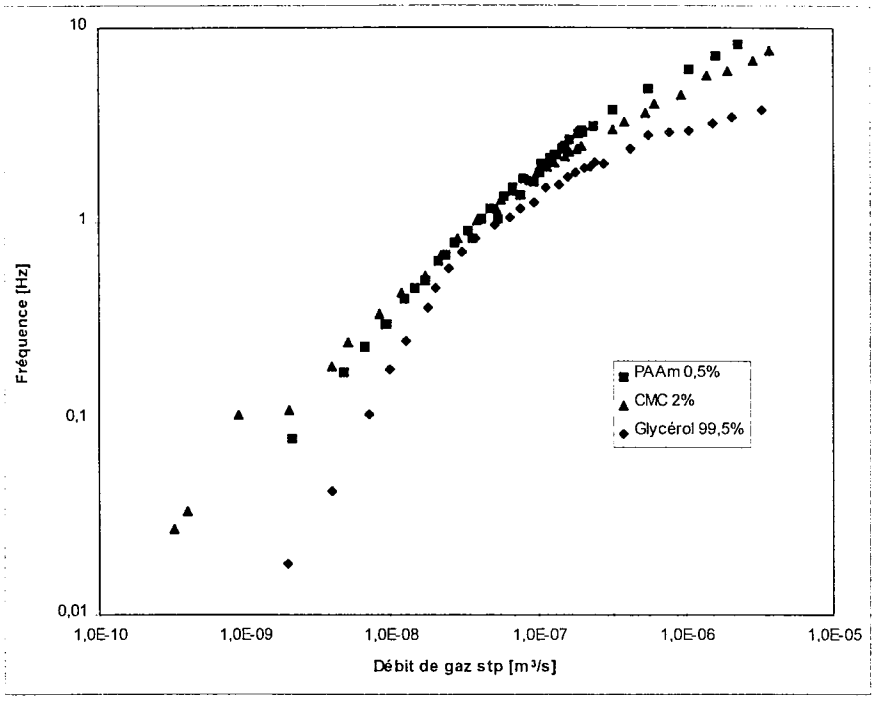


Figure II.6 Evolution de la fréquence de formation des bulles en fonction du débit de gaz pour un orifice de 10^{-3} m de diamètre

La fréquence de formation des bulles est une fonction croissante du débit de gaz.

II.6 Le phénomène de coalescence

Dans la zone de faible débit de gaz que nous étudions (jusqu'à $2x10^{-6}$ m^3/s), dans un fluide newtonien, les coalescences de bulles au sein du train sont quasiment inexistantes. Pour un fluide rhéofluidifiant mais faiblement élastique, seules quelques coalescences ont lieu, le plus souvent loin de l'orifice. Par contre, pour des solutions hautement viscoélastiques comme les solutions de Polyacrylamide, les coalescences ont pratiquement toujours lieu. A partir d'un certain débit, aucune bulle n'atteindra le haut de la colonne sans avoir coalescé au moins une fois. Dans des conditions absolument identiques, en utilisant le même montage expérimental, aux mêmes débits de gaz, dans les fluides viscoélastiques, le phénomène de coalescence prend une importance sans commune mesure avec ce qui peut exister dans des fluides rhéofluidifiants faiblement élastiques. Une caractéristique importante de ce phénomène de coalescence en ligne, est qu'il semble n'obéir à aucune loi. Par observation visuelle, il semble ne présenter aucun ordre, aucune régularité. Les coalescences ont lieu parfois à proximité de l'orifice, parfois beaucoup plus haut dans la colonne. Parfois, après une première coalescence, la bulle étant plus grosse, elle monte plus vite, rejoint la précédente, coalesce avec elle. et continue sa course pour rejoindre la précédente et provoquer 2 - 3 - 4 -5 ou même plus de coalescences en cascade.

Il est à noter que dans aucune de nos expériences, même pour une bulle de grand volume, une scission d'une bulle n'a pu être observé. La forte viscosité des fluides utilisés en est probablement la cause.

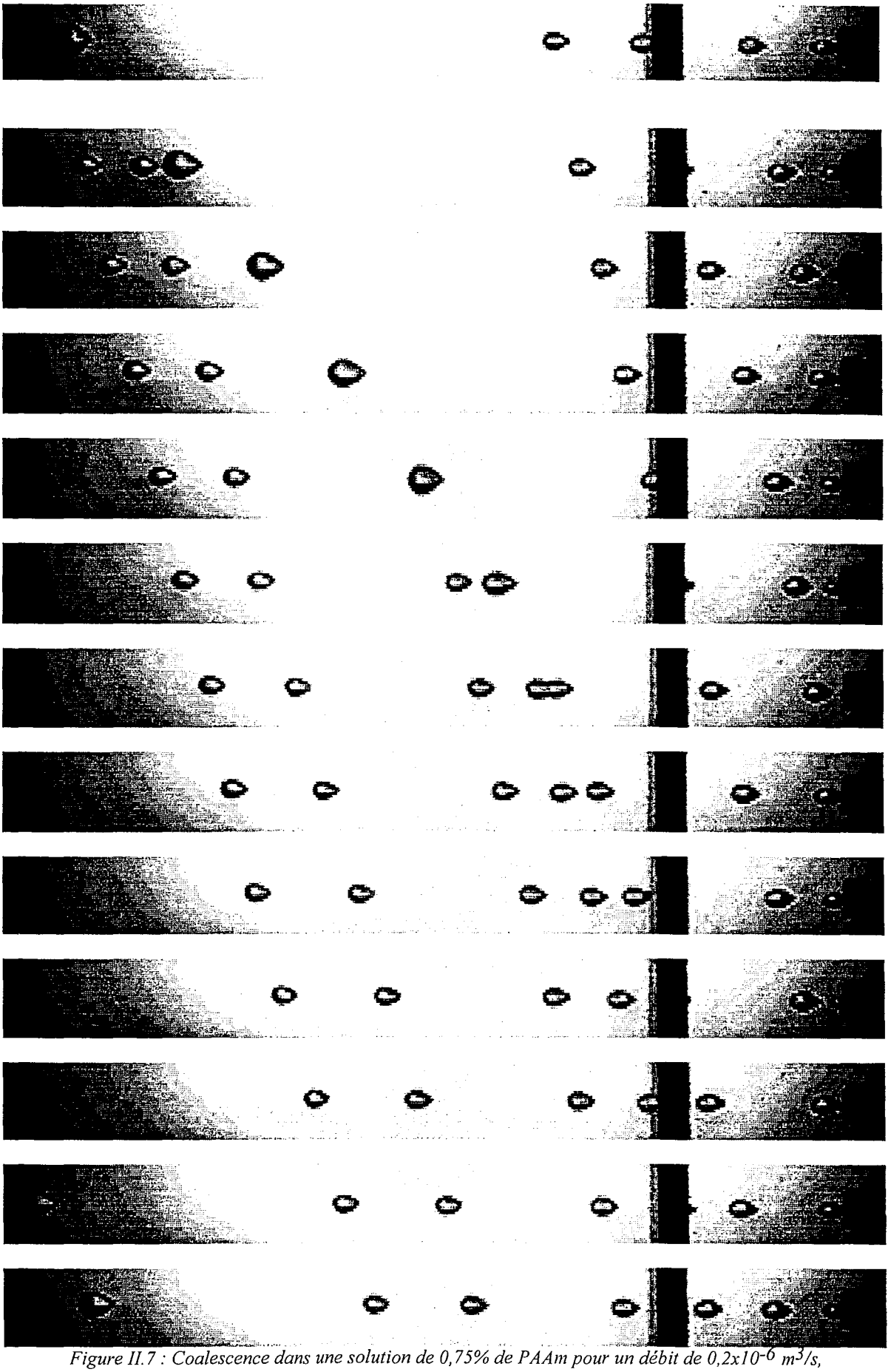


Figure II.7 : Coalescence dans une solution de 0,75% de PAAm pour un débit de 0,2x10^{-6} m^3/s, temps entre images 0,16s

La figure II.7 représente l'approche de deux bulles qui se suivent et leur coalescence dans une solution de PAAm de 0,75% et pour un débit de gaz de $0,2x10^{-6}$ m^3/s. Les différents clichés ont été pris à un intervalle de temps régulier de 0,16 s. Sur cette série d'images, certaines observations peuvent déjà être faites :

- dans la phase d'approche des deux bulles, la bulle « qui suit » connaît une augmentation importante de sa vitesse à mesure de l'approche
- la phase d'approche se termine par le contact des deux bulles. Le temps séparant l'entrée en contact des deux bulles et la coalescence (rupture du film liquide séparant les deux bulles), peut être estimé à moins de 0,08s.
- les clichés sont pris pour une même fenêtre d'observation. On peut déjà remarquer la disparition de la régularité du train de bulles.

Ces quelques remarques, qui nécessitent bien sûr plus grande confirmation, montrent quelques-uns des aspects du phénomène de coalescence de bulles en ligne, ainsi que sa complexité.

Chapitre III : Rhéologie des fluides

Introduction

Le but de notre étude étant d'étudier le comportement d'un train de bulles dans des fluides newtoniens et non-newtoniens, nous avons utilisé plusieurs fluides visqueux de caractéristiques rhéologiques bien distinctes :

- un fluide newtonien, composé de 99,5% de glycérol d'après le fabricant
- des fluides non-newtoniens
  - une solution de CMC (Carboxy Methyl Cellulose) de 2% dans de l'eau distillée
  - plusieurs solutions de PAAm (Poly Acryl Amide) de différentes concentrations - 0,25 - 0,5 et 0,75% dans de l'eau distillée.

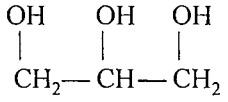
L'influence de la rhéologie des fluides sur le comportement d'un train de bulles ou de bulles isolées sera étudiée dans les chapitres qui vont suivre. Pour faire le lien entre la rhéologie et le comportement hydrodynamique d'un train de bulles, nous avons essayé d'avoir une connaissance aussi complète que possible du comportement rhéologique de ces fluides.

Dans une première partie, nous présenterons les caractéristiques physico-chimiques des polymères utilisés ainsi que les principaux résultats bibliographiques concernant leur comportement en solution. Dans une deuxième partie, nous présenterons les résultats de différents tests rhéologiques effectués sur ces fluides.

III.1 Propriétés physico-chimiques des solutions de Glycérol, CMC et PAAm

III.1.1 Le glycérol

Le glycérol est une molécule de masse moléculaire 92 g/mol, de masse volumique 1261 kg/m^3 et de formule :



Glycérol

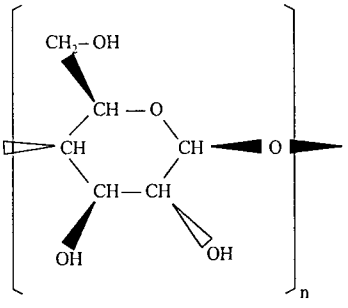
Notre solution provient de la compagnie Dow Europe SA. Elle est de qualité qualifiée de UPS grade à 99,5%. Cette solution est utilisée sans dilution. La viscosité du glycérol diminue notablement par dilution dans l'eau ou par simple hygroscopie. L'utilisation de grands volumes de fluide et l'emploi

systématique de couvercles au-dessus des colonnes (voire chapitre II) a permis de s'affranchir des problèmes d'hygroscopie lors de nos expériences.

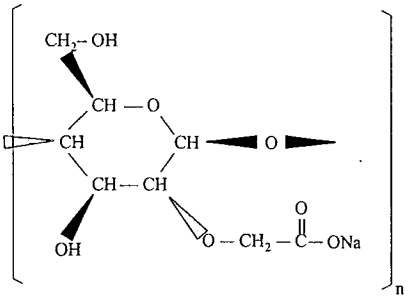
III.1.2 La CMC

Propriétés physico-chimiques

La CMC_{mv} (Carboxy Méthyl Cellulose mean viscosity) provient de la compagnie Sigma Chemical Co. La CMC_{mv} ou Na-CMC est un sel de sodium.
Une masse moléculaire moyenne en masse de $\mathbf{M_W = 2{,}85x10^5}$ **g/mol** a été déterminée par GPC (chromatographie par perméation de gel) au laboratoire LCPM - ENSIC Nancy.
La CMC est un polymère dérivé de la cellulose : elle s'obtient à partir de la cellulose en substituant une fonction hydroxy (-OH) par une fonction carboxyméthyl ($-CH_2COONa$).



Cellulose



Carboxy Méthyl Cellulose

Propriétés des solutions aqueuses de CMC

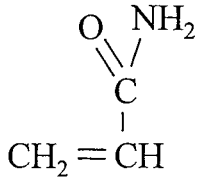
Une étude bibliographique de la conformation des molécules de CMC en solution aqueuse est donnée en annexe III.A.

D'après cette étude, notre solution de 2% de CMC (M_W = 285.000 g/mol), se situe en régime semi-dilué. Les chaînes de polymères sont sous forme de pelotes, elles se chevauchent et constituent probablement un réseau enchevêtré. Nous restons cependant en deçà de la concentration de transition sol-gel. Ainsi, on peut s'attendre à un comportement rhéofluidifiant, légèrement viscoélastique, sans contrainte seuil ni thixotropie.

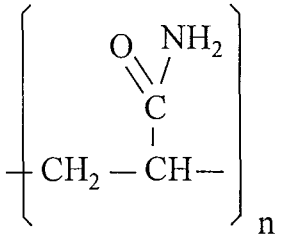
III.1.3 Le PAAm

Propriétés physico-chimiques

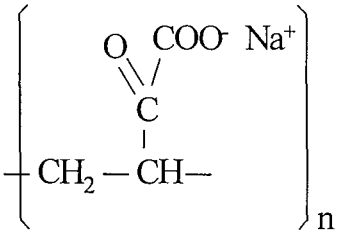
Le Poly Acryl Amide PAAm An 913 SH est un produit de la société SNF Floerger. C'est un polymère linéaire, de haute masse moléculaire, obtenu par copolymérisation de l'acrylamide et de l'acide acrylique. Le PAAm AN 913 SH est partiellement hydrolysé : en moyenne 13% des fonctions $-NH_2$ sont remplacées par des fonctions -COONa, sel de sodium. Par la présence de ces fonctions COO^-Na^+, le PAAm est comme la CMC, un polyélectrolyte.



monomère acryl amide



motif monomère acryl amide



motif monomère acryl amide hydrolysé

La masse molaire moyenne du PAAm AN 913 SH a été déterminée par la méthode de diffusion statique de la lumière à l'institut Charles Sadron à Strasbourg. Pour que les molécules prennent une configuration moins étendue, il a été nécessaire de se placer en milieu NaCl. Ainsi, pour une solution de concentrations de 0,05% en polymère et de 0,1% en NaCl, la méthode de diffusion statique indique une masse molaire de $\mathbf{M_W = 6{,}96x10^6}$ **g/mol**, et un **rayon de gyration de 252 nm**.
Cet ordre de grandeur du rayon de giration est conforme aux valeurs données par Kulicke et al. (1982) et Dupuis et al. (1994)

Propriétés des solutions aqueuses de PAAm

Une étude bibliographique de la conformation des molécules de PAAm en solution aqueuse est donnée en annexe III.A.

Suite à cette étude bibliographique, nous pouvons conclure que nos solutions de PAAm de 0,25 - 0,5 et 0,75% sont en régime semi-dilué et que les chaînes de polymères forment un réseau fortement

enchevêtré. De ce fait, nos solutions de PAAm présenteront trois caractéristiques rhéologiques principales :

- une rhéofluidification importante
- une élasticité importante
- un « effet de mémoire » du fluide

De nombreuses questions sur la rhéologie des solutions de PAAm sont apparues suite à l'étude de chute de billes ou d'ascension de bulles.

En régime semi-dilué, les chaînes de PAAm sont fortement enchevêtrées et forment un réseau (Ait-Kadi et al. 1988, Cho et al. 1984, Carreau et al. 1974). Par la présence de ce réseau et par viscoélasticité du fluide, les contraintes ne se relaxent que lentement après arrêt du cisaillement, d'où une rhéologie qui dépend du temps. Cette influence du temps est expliquée généralement par un « effet de mémoire » du fluide (Carreau et al. 1974).

En cherchant l'origine de l'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle des bulles ou la chute de sphères, Ambeskar et Mashelkar (1990) se sont posés la question de la « structure » de la solution de polymère et de la destruction de cette « structure » par cisaillement.

En accord avec la définition de la thixotropie donnée par Barnes (1997), Hu et al. 1995, Dupuis et al. 1994, Bradna et al. 1995, ont observé une thixotropie pour des solutions de PAAm. Mais ce point de vue est très contesté.

Ne souhaitant pas intervenir dans ce débat, nous adopterons le point de vue d'un fluide non-thixotrope en mentionnant brièvement l'éclairage qu'auraient donné les partisans de la thixotropie. Ainsi, dans l'annexe III.B, nous présentons un résumé bibliographique de la thixotropie des solutions de PAAm ainsi que des expériences qui « montrent » la thixotropie de nos solutions au « sens de Barnes (1997) ».

Dans la suite de ce chapitre, nous allons exposer les nombreux tests rhéologiques qui nous permettront de bien caractériser nos fluides et de confirmer les déductions faites précédemment.

III.2. Viscosité en régime permanent

Les mesures rhéologiques ont été effectuées au laboratoire sur deux rhéomètres différents : un rhéomètre à vitesse imposée (RFSII Rheometrics Fluid Spectrometer, Rheometrics) et un rhéomètre à contrainte imposée DSR Dynamic Stress Rheometer, Rheometrics). Ce dernier permet une détermination précise de la viscosité aux très faibles vitesses de cisaillement. Les géométries cône-

plan et plan-plan ont été utilisées pour ces mesures. Les mesures rhéologiques ont toutes été faites à 20°C.

La viscosité de la solution de CMC 2% ainsi que celle du glycérol sont représentées sur la figure III.1 en fonction de la vitesse de cisaillement. Le glycérol est bien newtonien sur toute la gamme des vitesses de cisaillement. La solution de CMC, après un pseudo premier plateau newtonien connaît une rhéofluidification. La viscosité de la solution de CMC se modélise très bien par le modèle de Carreau - Yasuda :

$$\eta = \eta_0 \left[1 + (\lambda \dot{\gamma})^a\right]^{\frac{m-1}{a}}$$

où $\eta_0 = 0{,}69$ Pa.s

$\lambda = 0{,}0058$ s^{-1}

$a = 0{,}42$

$m = 0$

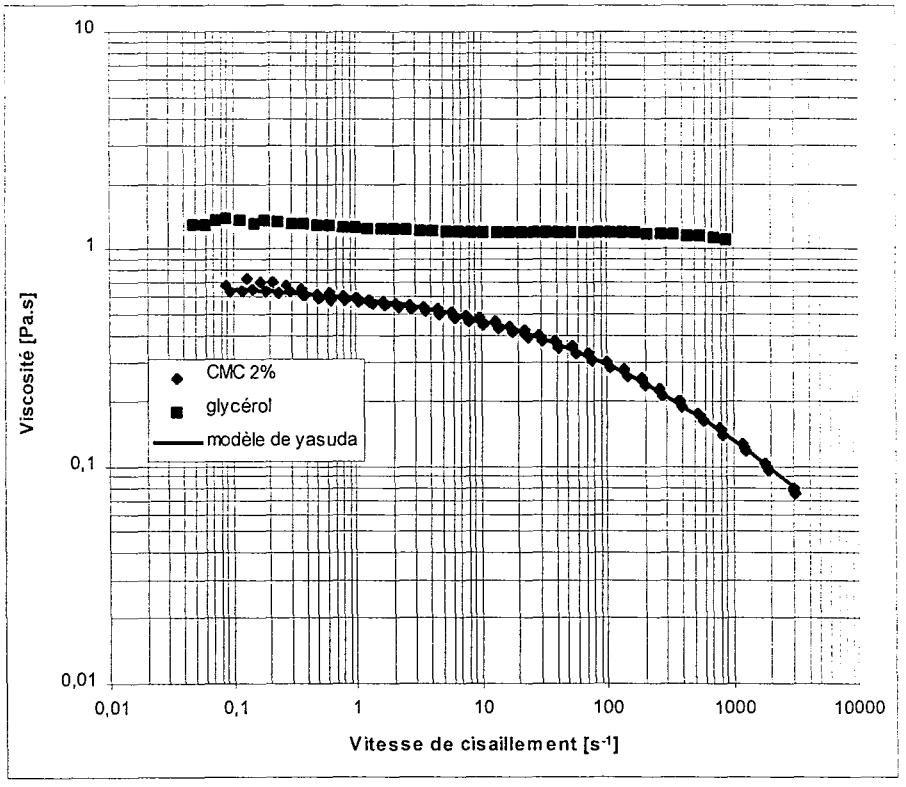


Figure III.1 Viscosité de la solution de CMC 2% et du glycérol

Localement, sur la gamme de vitesses de cisaillement de 0,1 - 50 s^{-1} (gamme de cisaillement comprenant celle rencontrée lors de l'ascension d'une bulle), la solution de CMC suit à peu près la loi de puissance : $\eta = K\dot{\gamma}^{n-1}$, n étant l'indice de rhéofluidification, K l'indice de consistance. Ceci nous permet d'effectuer une comparaison avec la viscosité des solutions de CMC de Ghannam et Esmail (1997). D'après leurs observations, l'indice de consistance augmente avec la concentration tandis que l'indice de rhéofluidification diminue avec la concentration comme le montre le tableau III.1. Leurs résultats sont comparables aux nôtres.

Auteur	Concentration CMC	K	n
Unité	%	$Pa.s^n$	
Présente étude	2%	0,576	0,894
Ghannam et Esmail (1997)	1%	0,05	0,95
Ghannam et Esmail (1997)	2%	0,45	0,85
Ghannam et Esmail (1997)	3%	2,3	0,73
Ghannam et Esmail (1997)	4%	8,3	0,61

Tableau III.1 : Modélisation de solutions de CMC par la loi de puissance

Les viscosités de différentes solutions de PAAm 0,25 - 0,5 et 0,75% sont représentées sur la figure III.2.

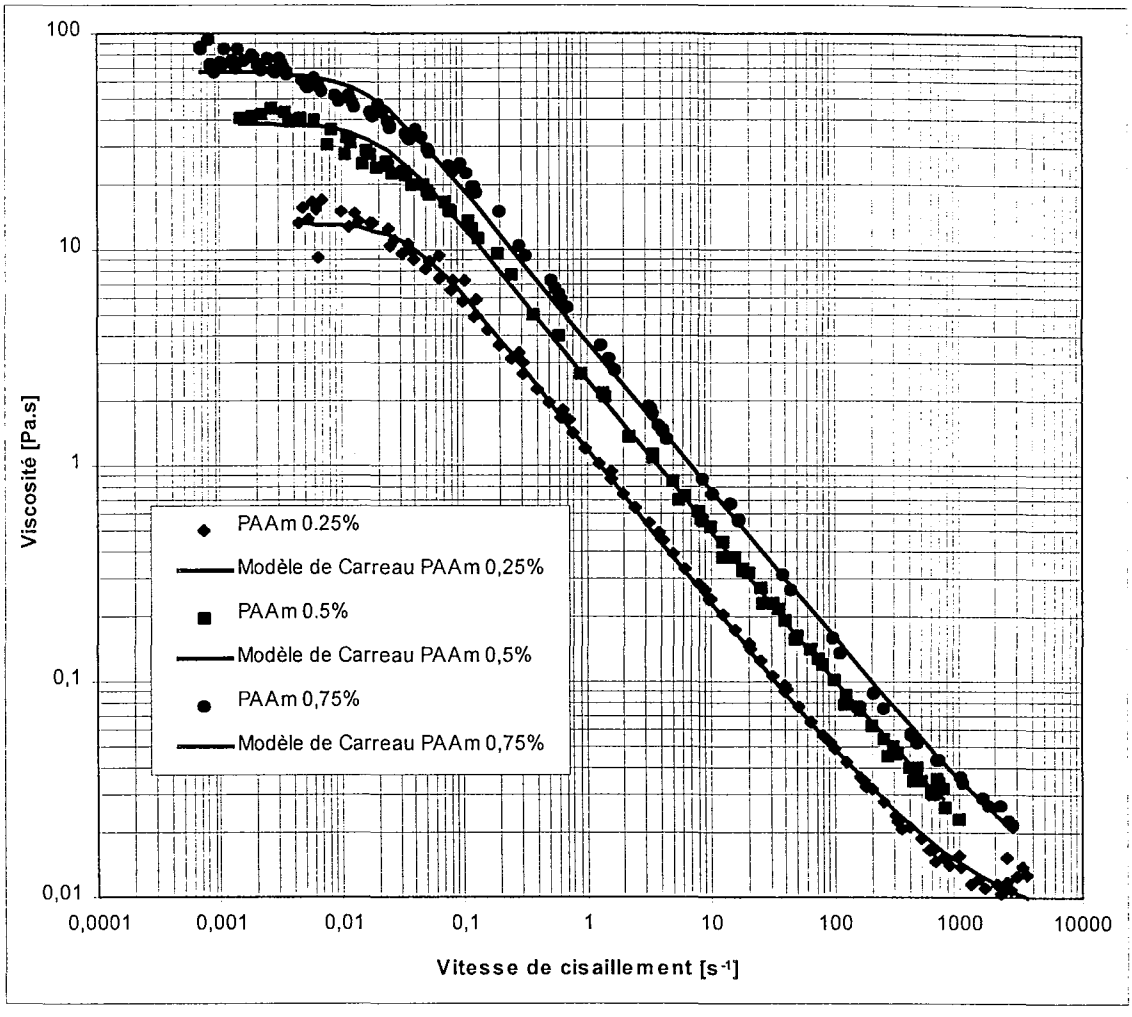


Figure III.2 : Viscosités des différentes solutions de PAAm en fonction de la vitesse de cisaillement et modélisation de ces viscosités par le modèle de Carreau

On observe pour une vitesse de cisaillement croissante :

- un premier plateau newtonien pour les faibles vitesses de cisaillement
- une zone de forte rhéofluidification du fluide
- le début d'un deuxième plateau newtonien pour les fortes vitesses de cisaillement

La viscosité des solutions de PAAm est bien représentée par le modèle de Carreau à 4 paramètres :

$$\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \left[1 + (\lambda.\dot{\gamma})^2\right]^{\frac{n-1}{2}}$$

η viscosité [Pa.s]

η_0 viscosité à vitesse de cisaillement nulle [Pa.s]

η_∞ viscosité à vitesse de cisaillement infinie [Pa.s]

λ un temps caractéristique du modèle [s]

n indice de rhéofluidification du fluide

$\dot{\gamma}$ vitesse de cisaillement [s^{-1}]

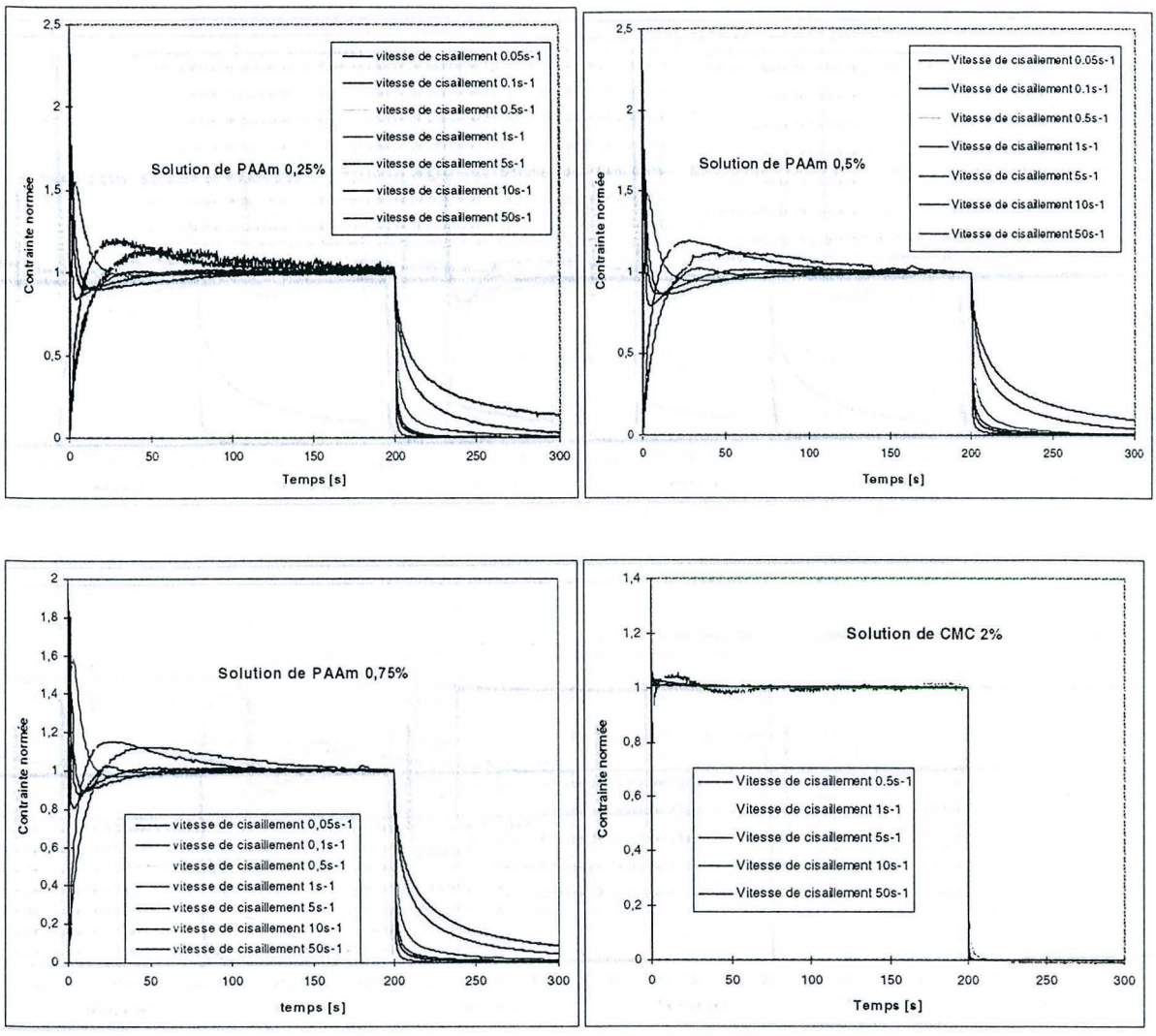
	η_0	η_∞	λ	n
Solution	[Pa.s]	[Pa.s]	[s]	
PAAm 0,25%	13,29	0,007	26,4	0,268
PAAm 0,5%	38,3	0,005	45,6	0,29
PAAm 0.75%	66,37	0,0052	59,6	0,303

Tableau III.2 Paramètres du modèle de Carreau pour les différents fluides

On peut noter que les trois solutions de PAAm ont un indice de rhéofluidification assez proche.

III.3. Viscosité en régime transitoire

Pour connaître la réponse des fluides suite à une sollicitation extérieure, nous avons suivi l'évolution de la contrainte de cisaillement au cours du temps, d'une part après un échelon de cisaillement, d'autre part après un arrêt brutal du cisaillement. Ce dernier test donne une indication sur le temps de relaxation du fluide. Ces différents tests ont été effectués, sur le rhéomètre à vitesse imposée RFSII, en géométrie cône-plan.



Figures III.3.a b c et d : Réponses des solutions de PAAm 0,25 - 0,5 - 0,75% et CMC 2% suite à un échelon de vitesse de cisaillement de différentes intensités, et relaxation des fluides suite à un arrêt du cisaillement

Une distinction nette apparaît entre les solutions viscoélastiques de PAAm d'une part et la solution de CMC d'autre part. Les solutions de PAAm présentent un dépassement de contrainte important surtout à forte vitesse de cisaillement. Après arrêt du cisaillement, ces contraintes se relaxent lentement surtout pour de faibles échelons de vitesse de cisaillement. Par contre, pour la solution de CMC, il n'y a quasiment pas de dépassement de contraintes même à forte vitesse de cisaillement. De plus, la relaxation des contraintes est quasi instantanée. La solution de CMC est donc essentiellement inélastique.

Le dépassement de contraintes ou « overshoot » présenté par les fluides viscoélastiques, est dû au désenchevêtrement puis à la rupture des liaisons entre chaînes de polymère. Plus l'échelon de cisaillement est important, plus le dépassement de contraintes est important et bref.

On peut remarquer que pour les trois solutions de PAAm, aussi bien la réponse des contraintes suite à un échelon de cisaillement que la relaxation des contraintes suite à l'arrêt brutal du cisaillement, sont très semblables même si leurs concentrations sont assez différentes.

Pour le PAAm, pour des vitesses de cisaillement dépassant $1s^{-1}$, l'overshoot est suivi d'un undershoot puis à nouveau d'un deuxième overshoot (voir figure III.4 qui est un zoom de la figure III.3.c). Cet undershoot suivi d'un second overshoot nettement moins marqué, est relaté dans la littérature (Kulicke et al. 1982, ou Bird et al. 1987). Ces auteurs n'ont donné aucune explication à ce phénomène. Dans l'annexe III.B, nous revenons plus longuement sur cette observation.

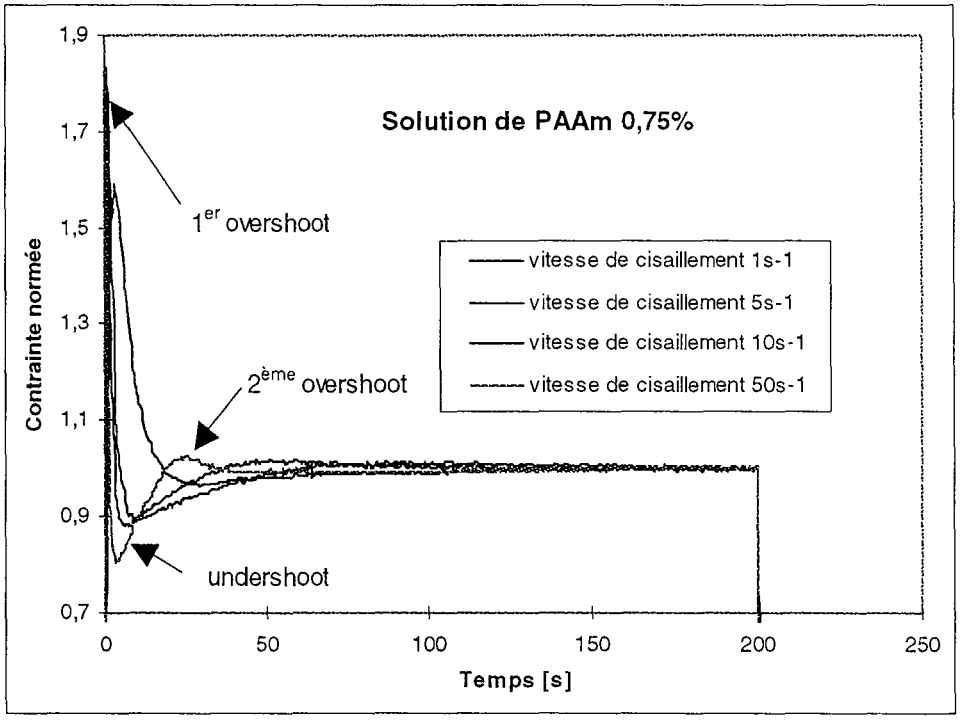


Figure III.4 : Réponse du fluide en transitoire, présence d'un premier overshoot suivi d'un undershoot, suivi d'un deuxième overshoot. Cas de la solution de PAAm 0,75%.

III.4. Elasticité des solutions

Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, le caractère élastique des solutions de PAAm est mis en évidence par la relaxation non immédiate des contraintes de cisaillement après un arrêt brutal du cisaillement. Deux autres tests rhéologiques permettent de rendre compte de cette élasticité :

- le balayage en déformation : un balayage en déformation à une fréquence d'oscillation donnée, permet de connaître l'importance relative du module élastique G' et du module visqueux G'', ainsi que le domaine d'élasticité linéaire.

- la mesure des contraintes normales : N_1, la première différence des contraintes normales, n'est non nulle que pour des solutions viscoélastiques ou élastiques. C'est un des tests les plus utilisés pour mesurer l'importance de l'élasticité d'un fluide.

III.4.1 Modules élastiques et visqueux

Les figures III.5 et III.6 représentent le balayage en déformation des solutions de PAAm et de la solution de CMC pour une pulsation de 1 rad/s.

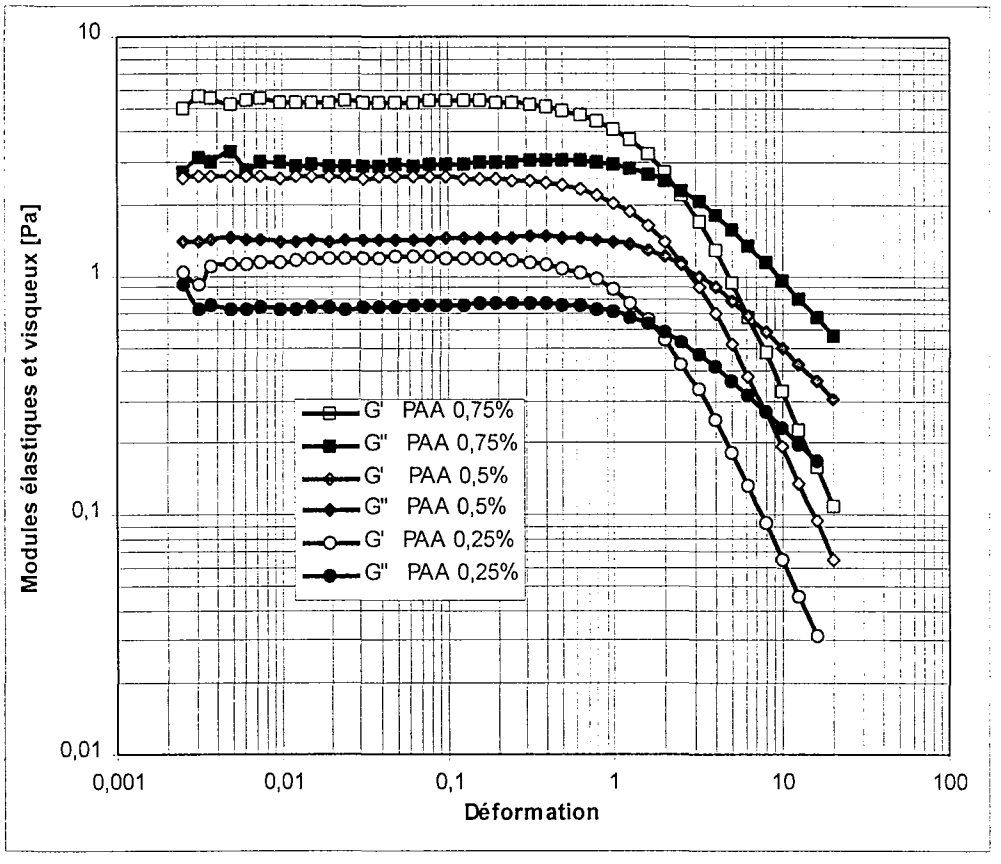


Figure III.5 Modules élastiques et visqueux des différentes solutions de PAAm pour une pulsation de 1 rad/s

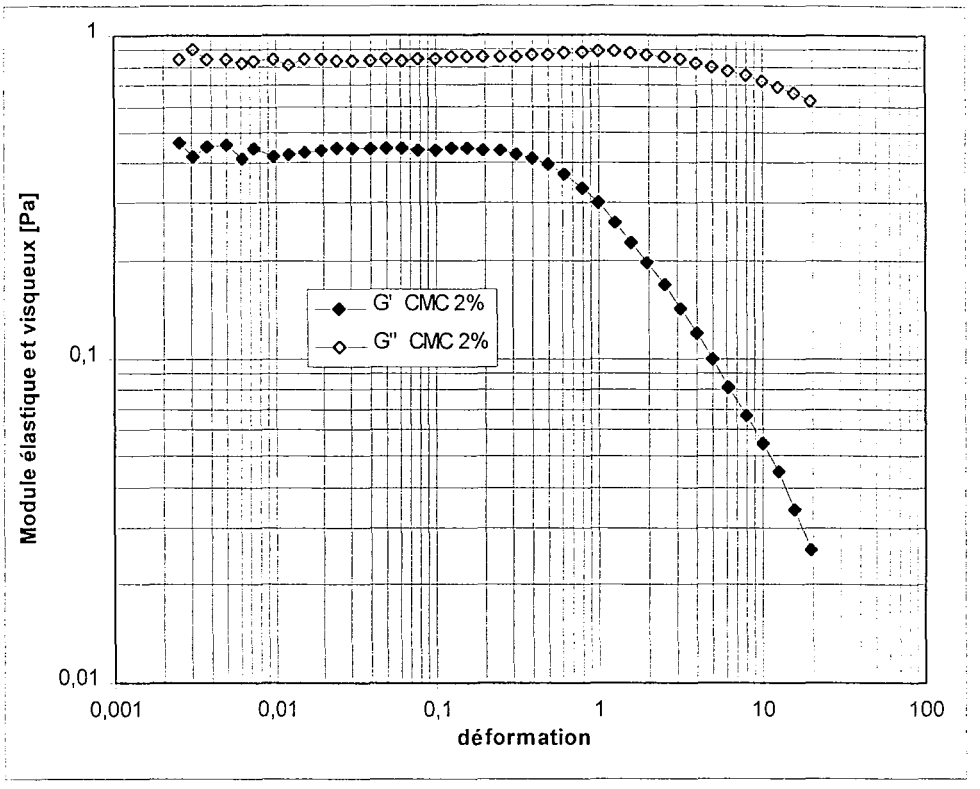


Figure III.6 Module élastique et visqueux de la solution de CMC 2% pour une pulsation de 1 rad/s

Un module élastique plus important que le module visqueux montre le caractère élastique des solutions de PAAm (figure III.5). Inversement, un module visqueux plus important que le module élastique montre que la solution de CMC 2% est essentiellement inélastique (figure III.6).

L'importance relative des modules élastiques et visqueux est souvent donnée par l'angle de perte $\tan\delta$ (voir tableau III.3).

L'angle de perte étant défini par : $\tan\delta = \frac{G''}{G'}$

Le domaine d'élasticité linéaire, (domaine de déformation où le module élastique reste constant), est particulièrement important pour les solutions de PAAm. Ce domaine est caractérisé par la déformation critique γ_c. Au delà de cette déformation critique, on sort du domaine d'élasticité linéaire. La déformation critique γ_c est l'intersection entre les deux asymptotes de la courbes du module élastique : l'asymptote horizontal du domaine d'élasticité linéaire et l'asymptote de la décroissance logarithmique comme représenté sur la figure III.7. Le tableau III.3 résume ces différentes données.

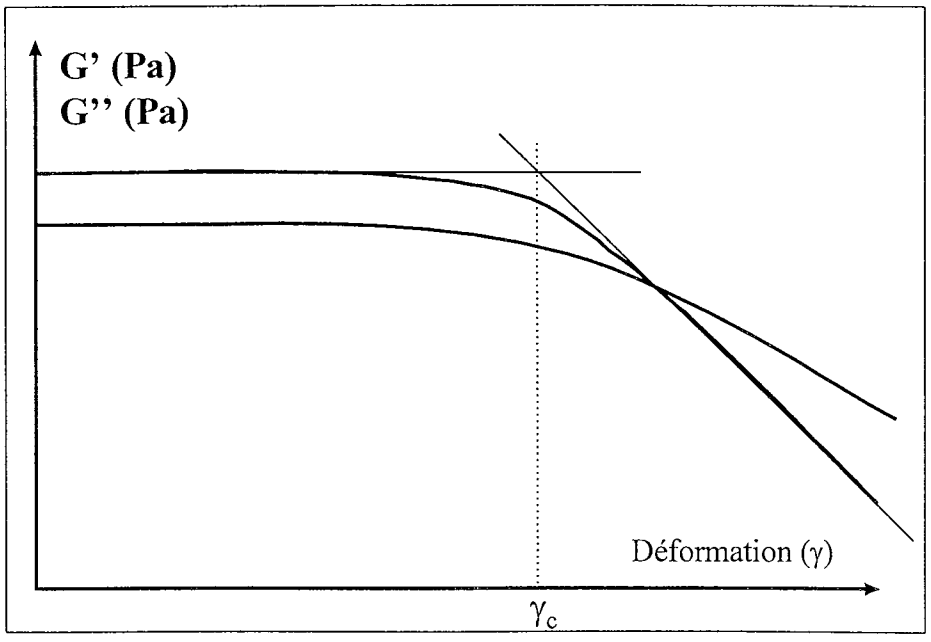


Figure III.7 : Définition de la déformation critique γ_c

Solution	tan(δ)	γ_c
PAAm 0,25%	0,62	1,7
PAAm 0,5%	0,54	1,65
PAAm 0.75%	0,54	1,7
CMC 2%	1,92	0,73
Glycérol 99,5%	6,67	0,72

Tableau III.3

Comme déjà observé sur la relaxation des contraintes, une augmentation de la concentration des solutions de PAAm n'augmente pas considérablement le caractère élastique de celles-ci.

III.4.2 Contraintes normales

Les solutions de PAAm étant très élastiques, elles présentent des premières différences des contraintes normales mesurables. Ceci n'est pas le cas de la solution de CMC 2%. Deux géométries ont été utilisées pour cette mesure : la géométrie cône-plan et la géométrie plan-plan.

En géométrie cône-plan, la première différence des contraintes normales N_1 s'obtient à partir de la mesure de la force normale par :

$$N_1 = \frac{2F}{\pi R^2}$$

R rayon du plateau cône-plan [m]

F force normale [Pa]

En géométrie plan-plan :

$$N_1 - N_2 = \frac{F}{\pi R^2}\left(2 + \frac{d\ln(F)}{d\ln(\dot{\gamma})}\right)$$

N_2 deuxième différence des contraintes normales [Pa]

$\dot{\gamma}$ vitesse de cisaillement [s^{-1}]

Les secondes différences des contraintes normales sont généralement faibles devant les premières différences, ce qui nous a permis de les négliger dans le cas de la géométrie plan-plan. En géométrie plan-plan avec un entrefer de 10^{-3} m, la mesure s'est révélée plus aisée que dans la géométrie cône-plan.

Les mesures ont donné des résultats identiques pour les deux géométries. La présence de fluctuations a rendu difficile la mesure de ces contraintes normales. Ces fluctuations pourraient provenir d'instabilité d'écoulement. En effet, dans une solution de PAAm, Kulicke et al. (1982) ont photographié des instabilités d'écoulement dans l'entrefer de la géométrie cône-plan et ont observé des vortex. Ceci expliquerait une certaine dispersion dans les mesures. Sur la figure III.8, les moyennes des premières différences des contraintes normales sont représentées pour les trois solutions de PAAm.

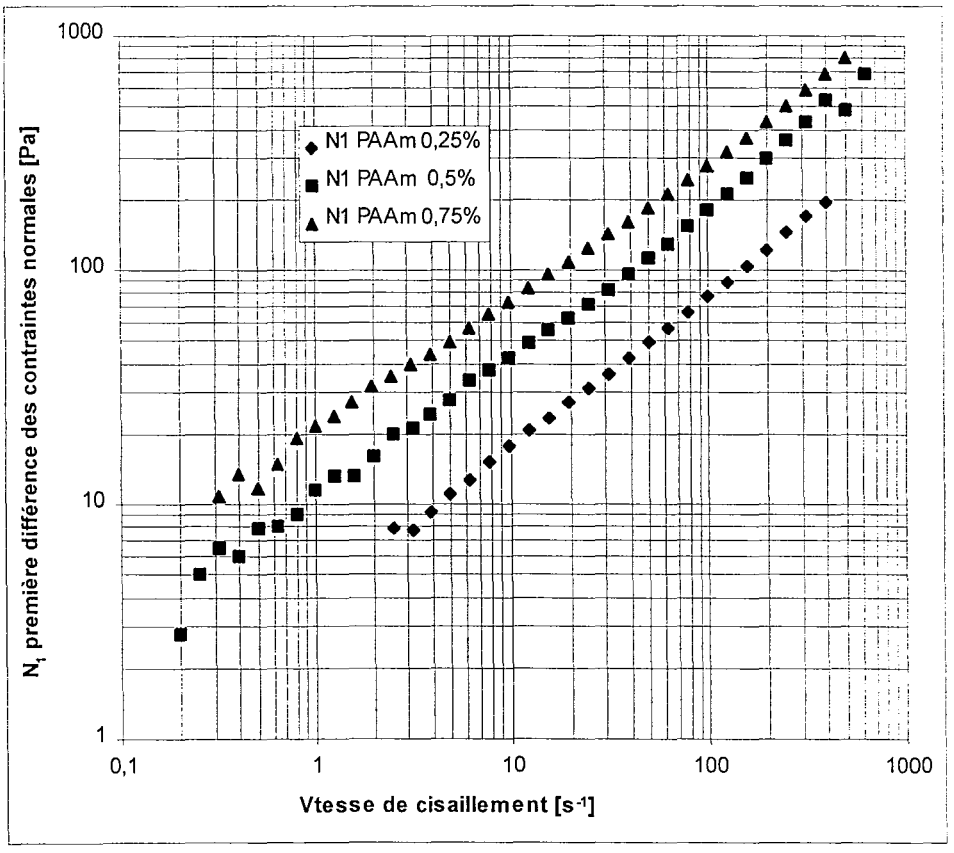


Figure III.8 : Première différence des contraintes normales pour les solutions de 0,25 - 0,5 et 0,75% de PAAm lors de mesures effectuées en géométrie cône - plan et plan - plan

Les premières différences des contraintes normales croissent avec une augmentation de la concentration en polymère.

Comme proposé par Ait-Kadi et al. (1989), ces contraintes normales peuvent s'exprimer sous la forme d'une loi de puissance en fonction de la contrainte tangentielle selon la loi : $N_1 = m' | \tau |^{n'}$. Le tableau III.4 résume les valeurs des différents paramètres.

Solution	m'	n'
PAAm 0,25%	2,077	2,078
PAAm 0,5%	1,15	2,078
PAAm 0,75%	0,354	2,204

Tableau III.4 Expressions des premières différences des contraintes normales pour les différents fluides

Ces mesures sont en accord avec les données de la littérature pour les solutions de PAAm.

III.5 Modèle de Maxwell généralisé

III.5.1 Introduction

Dans le paragraphe III.4.1, nous avons vu que les solutions viscoélastiques de PAAm possèdent un domaine d'élasticité linéaire particulièrement important. Dans le domaine de visocélasticité linéaire, (i. e. $\gamma < \gamma_c$), après un échelon de déformation d'amplitude $\gamma < \gamma_c$, les modules de relaxation se superposent. Le module de relaxation du fluide est défini par :

$$G(t) = \frac{\tau(t)}{\gamma}$$

Pour des déformations plus importantes, $\gamma > \gamma_c$, le module de relaxation n'est plus indépendant de la déformation, on est dans le domaine de viscoélasticité non-linéaire.

Dans le domaine de viscoélasticité linéaire, il est possible de déterminer les paramètres du modèle de Maxwell généralisé pour les différentes solutions de PAAm (pour une présentation plus complète du modèle de Maxwell généralisé, on se rapportera à l'annexe III.C).

III.5.2 Modélisation du module de relaxation G(t)

Le modèle de Maxwell non généralisé défini par :

$$G(t) = G_o \exp\left(-\frac{t}{\lambda_0}\right)$$

ne permet pas de représenter convenablement le module de relaxation.

Par contre, le modèle de Maxwell généralisé défini par :

$$G(t) = \sum_{k=1}^{n} G_k \cdot \exp\left(-\frac{t}{\lambda_k}\right)$$

où les λ_k sont des constantes de temps, et les G_k les modules de relaxation correspondants, donne une représentation intéressante du module de relaxation.

Ainsi, la modélisation du module de relaxation des solutions de PAAm 0,25 - 0,5 et 0,75 par un modèle de Maxwell d'ordre 6, donne les résultats données dans le tableau III.5.

		PAAm 0,25%	PAAm 0,5%	PAAm 0,75%
	λ_k	G_k	G_k	G_k
	[s]	[Pa]	[Pa]	[Pa]
k = 1	0,1	2,16	5,13	8,98
k = 2	0,5	0,342	0,657	1,543
k = 3	1	0,533	1,52	3,015
k = 4	5	0,474	0,86	2,54
k = 5	10	0,0415	0,24	$3,78 \times 10^{-9}$
k = 6	50	0,204	0,33	1,212

Tableau III.5 : Modèle de Maxwell d'ordre 6

III.5.3 Détermination de quelques grandeurs

Viscosité à cisaillement nul

Le modèle de Maxwell généralisé permet d'avoir accès à la viscosité à cisaillement nul :

$$\eta_0 = \sum_{k=1}^{N} \lambda_k G_k$$

Pour les solutions de PAAm 0,25 - 0,5 et 0,75%, les viscosités à cisaillement nul sont η_0 = 13,9 - 25,6 et 78 Pa.s respectivement.

Temps caractéristique

Un temps caractéristique du fluide λ_0 est obtenu par pondération des temps caractéristiques des différents oscillateurs par les modules élastiques correspondants. λ_0 a une forme de moment d'ordre 1 : c'est un temps moyen, c'est un des temps caractéristiques existants pour caractériser un fluide viscoélastique. Dans notre cas, le temps caractéristique du fluide λ_0 s'obtient par :

$$\lambda_o = \frac{\sum_{k=1}^{N} G_k . \lambda_k^2}{\sum_{k=1}^{N} G_k . \lambda_k}$$

Pour les solutions de PAAm 0,25 - 0,5 et 0,75%, les temps caractéristiques du fluides sont λ_0 = 37,9 - 34,1 et 39,7 s respectivement. Ces temps caractéristiques sont très proches, et sont à mettre en relation avec les figures III.3.a, b et c où la relaxation de la contrainte tangentielle normée est représentée après arrêt brutal du cisaillement. Sur ces figures, on voit que les contraintes normées se relaxent d'une façon très similaire.

III.6 Temps de relaxation

Comme vu dans l'étude bibliographique, le nombre de Déborah est utilisé pour rendre compte de l'importance de l'élasticité du fluide lors de l'ascension d'une bulle ou de la chute d'une sphère en fluide viscoélastique.

Le nombre de Déborah est défini par :

$$De = \frac{\lambda}{t_{flow}}$$

λ étant le temps caractéristique ou l'échelle de temps du fluide

t_{flow} étant le temps caractéristique ou l'échelle de temps de l'écoulement

Pour la sédimentation d'une sphère ou l'ascension d'une bulle, le temps caractéristique de l'écoulement est unanimement pris comme $t_{flow} = \frac{R}{U}$, U étant la vitesse de la sphère et R son rayon.

Pour le temps caractéristique du fluide λ, Bird et al. (1987) retient trois définitions possibles :

- soit le temps caractéristique λ du modèle de Carreau $\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \left[1 + (\lambda.\dot{\gamma})^2\right]^{\frac{n-1}{2}}$

- soit un temps caractéristique construit à partir de la loi de puissance de la viscosité $\eta = K\dot{\gamma}^{n-1}$ et la loi de puissance du coefficient de la première différence des contraintes normales $\psi_1 = m'\dot{\gamma}^{n'-2}$

$$\lambda = \left(\frac{m'}{2K}\right)^{\frac{1}{n'-n}}$$

- la constante de temps donnée par la viscoélasticité linéaire $\lambda = \lim_{\dot{\gamma}\to 0} \frac{\psi_1}{2\eta}$

Cette dernière expression, ou un temps caractéristique proche, le temps caractéristique de Rouse, sont généralement utilisés.

Le temps caractéristique de Rouse se définit par $\lambda_1 \approx \frac{\Psi_{1,0}}{2\eta_0}$

$\Psi_{1,0}$ et η_0 étant respectivement le coefficient de contrainte normale à cisaillement nul et la viscosité à cisaillement nul.

Pour donner un ordre de grandeur (Bird et al. 1987), λ vaut de 10^{-3} s pour les solutions diluées à 10^3 s pour les solutions concentrées.

Dans le cas présent, il n'a pas été possible de mesurer les contraintes normales à faible cisaillement, celles-ci étant trop faibles pour être mesurées. Ainsi, les temps caractéristiques dont nous disposons sont les temps caractéristiques du modèle de Carreau : λ = 26,4 - 45,6 - 59,6 s, et le temps moyen du modèle de Maxwell généralisé : λ_0 = 37,9 - 34,1 et 39,7 s pour les solutions de 0,25 - 0,5 et 0,75% de PAAm respectivement.

Le temps caractéristique de l'écoulement $t_{flow} = \frac{R}{U}$, est en fait l'inverse du cisaillement caractéristique de l'écoulement. Dans le cas de nos expériences, ce temps caractéristique va de 1 s^{-1} pour les petites bulles dans la solution de PAAm 0,75%, à 1/20 ou 1/30 s^{-1} voire un peu moins pour de grosses bulles dans la solution de PAAm 0,25%.

De ce fait, les nombres de Deborah rencontrés au cours de nos expériences vont de 30 à près de 1000.

A titre de comparaison, Bisgaard (1983), a des nombres de Deborah allant de 10 à 65 lors de chute de sphères ou d'ascension de bulles pour une solution de 1% de PAAm dans du glycérol. Lors de leurs simulations numériques sur la chute de sphères, Zheng et Phan-Thien (1992) ou Satrape et Crochet (1994) ont des nombres de Deborah allant jusqu'à 20.

Le nombre de Deborah important de nos écoulements fait du caractère élastique un facteur important pour ne pas dire dominant de l'ascension des bulles.

III.7 Tableau récapitulatif

Fluide		Glycérol	CMC 2%	PAAm 0,25%	PAAm 0,5%	PAAm 0,75%
Masse molaire	[g/mol]	92	$2,85x10^5$	$6,96x10^6$	$6,96x10^6$	$6,96x10^6$
Masse volumique	[kg/m^3]	1261	1000	1000	1000	1000
Tension interfaciale	[N.m^{-1}]	$62x10^{-3}$	$65x10^{-3}$	$70x10^{-3}$	$70x10^{-3}$	$70x10^{-3}$
Viscosité		newtonien	rhéofluidifiant	viscoélastique	viscoélastique	viscoélastique
Loi de puissance*	k [Pa.s^n]	1,2	0,576	1,22	2,67	6,04
	n	1	0,89	0,308	0,3	0,271
Modèle de Carreau	η_0 [Pa.s]			13,29	38	66,37
	η_∞ [Pa.s]			0,007	0,005	0,0052
	λ [s]			26,4	45,6	59,6
	n			0,268	0,29	0,303

Tableau III.6 : Récapitulatif des caractéristiques des différents fluides

* une loi de puissance a été calculée sur un domaine de vitesses de cisaillement contenant les vitesses de cisaillement caractéristiques induites par l'ascension des bulles. Ce modèle loi de puissance permettra le calcul du nombre de Reynolds généralisé.

Chapitre IV : Influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle et la forme des bulles

Introduction

En « bullage libre », à faible débit, les bulles sont petites et leur fréquence de formation faible. A débit important, les bulles sont grosses et leur fréquence de formation élevée (tout au moins sur la gamme de débits étudiés). Dans cette configuration, il n'est pas possible de faire varier indépendamment le volume et la fréquence de formation des bulles. Donc pour pouvoir distinguer nettement l'influence de différents paramètres sur le comportement d'un train de bulles, nous commencerons dans ce chapitre par étudier l'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle et la forme des bulles.

Dans la littérature, Carreau et al. (1974), Bisgaard (1983), De Kee et al. (1986), Cho et al. (1984) et Ambeskar et Mashelkar (1990) ont observé une influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle des bulles dans des solutions de PAAm - glycérol ou dans des solutions de Polyoxyde d'éthylène. Il nous a semblé intéressant d'étendre ces études à une large gamme de volumes de bulles, et de se placer dans la gamme des volumes de bulles obtenues en « bullage libre ». Plusieurs fluides de caractéristiques rhéologiques très différentes sont utilisés dans des conditions expérimentales identiques pour pouvoir comparer les différents comportements des bulles.
Dans une première partie, nous décrivons brièvement les conditions opératoires de cette série d'expériences. Dans la deuxième et la quatrième partie, nous étudions l'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle et sur la forme des bulles. Dans la troisième partie, nous calculons les coefficients de traînée des bulles. Enfin, dans la cinquième nous présentons les conclusions que l'on peut tirer des expériences et des hypothèses qui pourraient permettre d'expliquer les comportements observés.

IV.1 Conditions expérimentales

Au cours de cette série d'expériences, nous utilisons un dispositif d'injection contrôlée par électrovanne dans la petite colonne. Comme le diamètre intérieur de la colonne est de 0,29 m, donc très grand devant la taille des bulles, le milieu sera considéré comme infini. La vitesse ascensionnelle des bulles est mesurée par leur passage au travers de deux dispositifs laser - diode situés en milieu de colonne, sur un axe vertical, à 0,1 m de distance l'un de l'autre. Le volume et la forme des bulles sont déterminés par analyse d'images comme décrit dans le chapitre II.

Un balayage du volume de bulles de 20×10^{-9} m^3 à 600 voire 1400×10^{-9} m^3 est effectué pour des périodes d'injections de 0,3 - 1 - 6 - 15 et 60 s. Pour faire varier le volume des bulles injectées, on fait varier la pression dans le réservoir tampon en amont de l'électrovanne pour un temps d'ouverture de l'électrovanne de 0,01 s.

Pour un balayage mieux réparti et plus précis des volumes des bulles, la pression dans le réservoir tampon est mesurée par un capteur. Dans le cas de ces expériences, des pressions de 0,06 à 0,35 bar sont balayées par incrémentation.

Nous avons utilisé les fluides newtonien (glycérol), rhéofluidifiant (CMC 2%) ainsi que trois fluides viscoélastiques (PAAm 0,25 - 0,5 et 0,75%), précédemment étudiés pour pouvoir comparer l'influence de la rhéologie des fluides sur la forme et la vitesse ascensionnelle des bulles.

Pour s'assurer que la zone de mesure est bien située au delà de la zone transitoire et que la vitesse mesurée est une vitesse « ascensionnelle stationnaire », la vitesse instantanée des bulles est mesurée par analyse d'images à partir de l'orifice. Cette « vitesse instantanée » des bulles est calculée à partir de leurs déplacements entre deux images successives (temps entre deux images 0,04s). Les figures IV.1 a et b représentent la vitesse ascensionnelle instantanée des bulles pour une période d'injection de 1s, dans des solutions de 0,25 et 0,75% de PAAm respectivement.

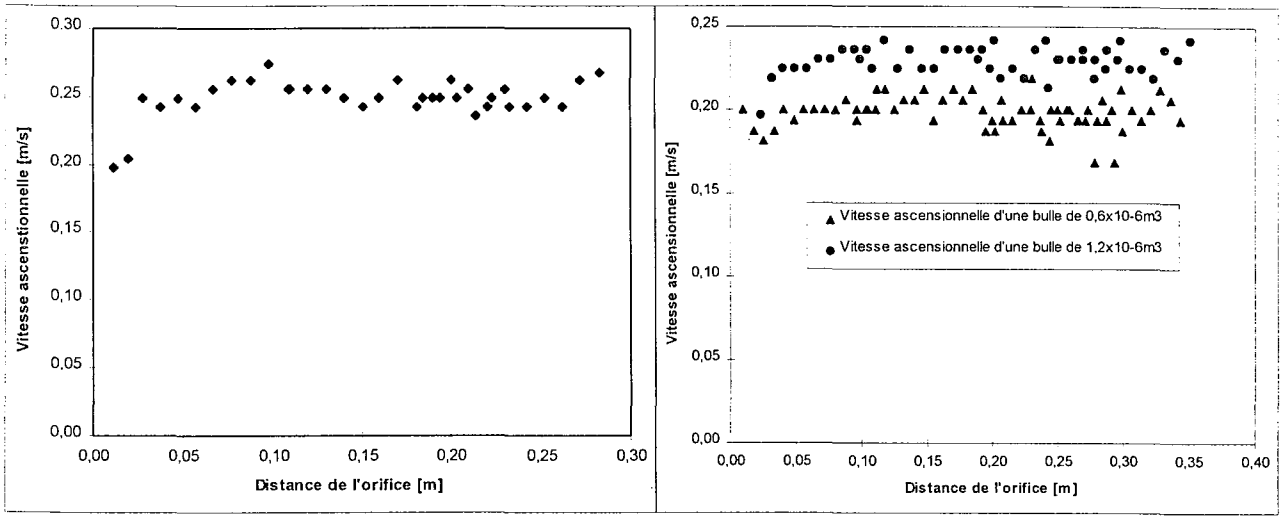


Figure IV.1 a et b : Vitesse ascensionnelle instantanée en fonction de la distance à l'orifice pour une période d'injection 1s

IV.1.a : dans une solution de PAAm 0,25% pour une bulle de 0,65x10^{-6} m^3

IV.1.b : dans une solution de PAAm 0,75% pour des bulles de 0,6 et 1,2x10^{-6} m^3

Abstraction faite de l'imprécision de mesure liée à la difficulté à déterminer la frontière des bulles, les bulles atteignent très rapidement une vitesse ascensionnelle constante. La vitesse moyenne mesurée à une distance de 0,2 et 0,3 m de l'orifice correspond donc bien à une vitesse ascensionnelle stationnaire.

Le tableau IV.1 rappelle brièvement les différentes propriétés des fluides.

Composition	Unité	99,5% Glycérol	2% CMC	0,25% PAAm	0,5% PAAm	0,75% PAAm
Masse volumique	kg/m^3	1260	1000	1000	1000	1000
Masse molaire	g/mol	92	$3,0x10^5$	$6,98x10^6$	$6,98x10^6$	$6,98x10^6$
Tension de surface	$x10^{-3}$ N/m	62	65	70	70	70
Propiétés rhéologiques		newtonien	rhéofluidifiant	viscoélastique	viscoélastique	viscoélastique

Tableau IV.1 : Propriétés des fluides utilisés

IV.2 Influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle

Les figures suivantes représentent la vitesse ascensionnelle des bulles en fonction de leurs volumes, pour différentes périodes d'injection, dans un fluide newtonien, un fluide rhéofluidifiant puis dans trois fluides viscoélastiques.

Glycérol

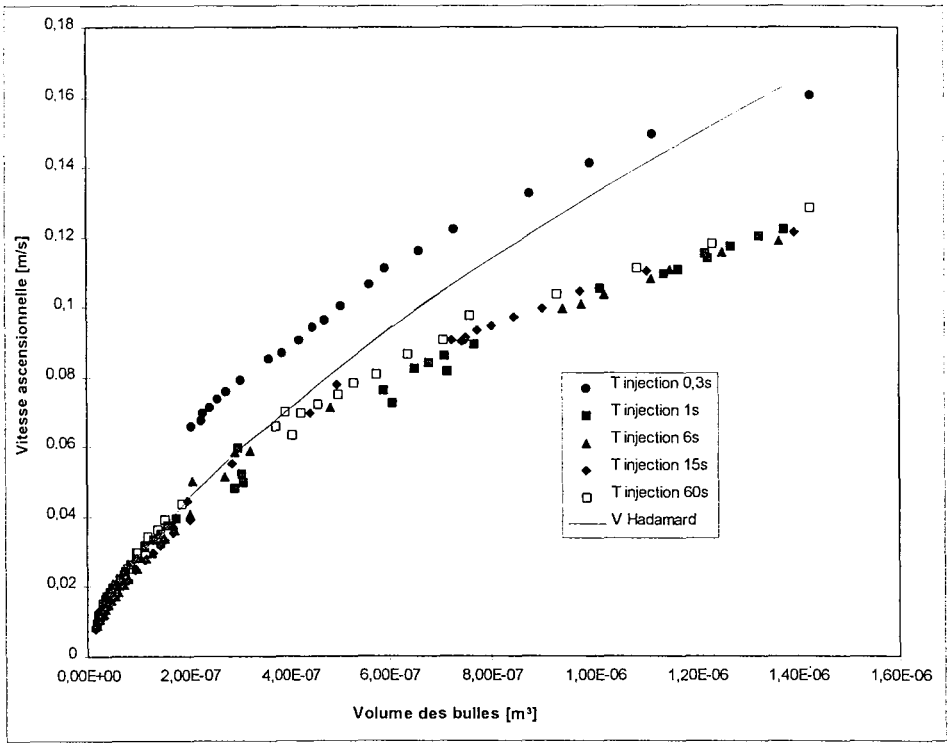


Figure IV.2 : Vitesse ascensionnelle des bulles en fonction de leur volume et de la période d'injection pour une solution de glycérol 99,5% - comparaison avec la vitesse ascensionnelle de bulles sphériques en régime d'Hadamard-Rybczynski

Dans cette solution de glycérol, et pour des bulles de volume inférieur à $400x10^{-9}$ m^3, les résultats expérimentaux concordent bien avec la vitesse ascensionnelle calculée théoriquement pour une bulle sphérique à interface libre en écoulement d'Hadamard Rybczynski dans un fluide newtonien (voir chapitre I) :

$$U_{Hadamard} = \frac{1}{3}\frac{\rho_l g R^2}{\mu} \qquad I.7$$

Au delà de ce volume, les bulles ont une vitesse ascensionnelle inférieure à celle d'une bulle sphérique à interface libre en écoulement d'Hadamard Rybczynski dans un fluide newtonien.

Solution de CMC 2% dans de l'eau distillée

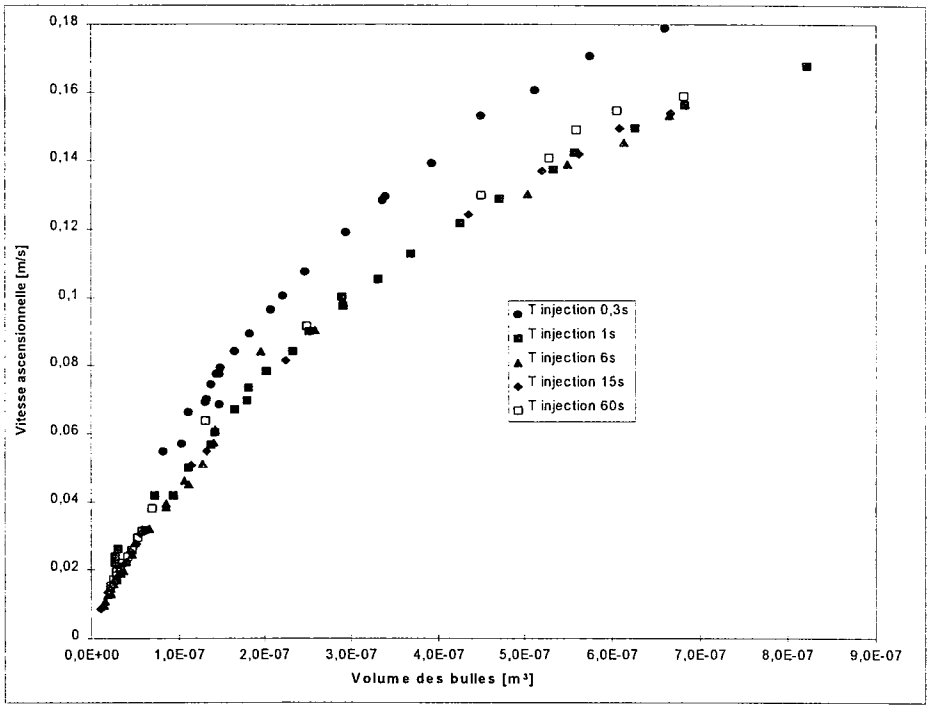


Figure IV.3 : Vitesse ascensionnelle des bulles en fonction de leur volume et de la période d'injection pour une solution de CMC 2%

Discussion des résultats pour les solutions de glycérol et CMC

Pour les solutions de glycérol et de CMC 2%, la vitesse ascensionnelle augmente de façon monotone avec le volume des bulles sur la gamme des volumes considérée. Mis à part le cas de la période d'injection de 0,3 s, la vitesse ascensionnelle est reproductible et ne dépend pas de la période d'injection. Pour ces deux fluides, il est possible de représenter l'évolution de la vitesse ascensionnelle en fonction du volume par une loi de puissance de la forme : $U = aV^b$, U étant la vitesse ascensionnelle et V le volume des bulles.

Ainsi, pour le glycérol, pour des volumes inférieurs à 10^{-6} m^3 :

$$U = 442\ V^{0,602}$$

Et pour la CMC :

$$U = 3600\ V^{0,702}$$

Pour la période d'injection de 0,3s, la vitesse ascensionnelle des bulles est nettement plus importante que pour les autres périodes d'injection, aussi bien dans la solution de Glycérol que dans la solution de CMC. Comme le pensent Carreau et al (1974), cette augmentation de la vitesse est probablement due au mouvement résiduel du fluide mis en mouvement par la bulle précédente. Nous reviendrons par la suite sur cette observation.

Solution de PAA 0,25% dans de l'eau distillée

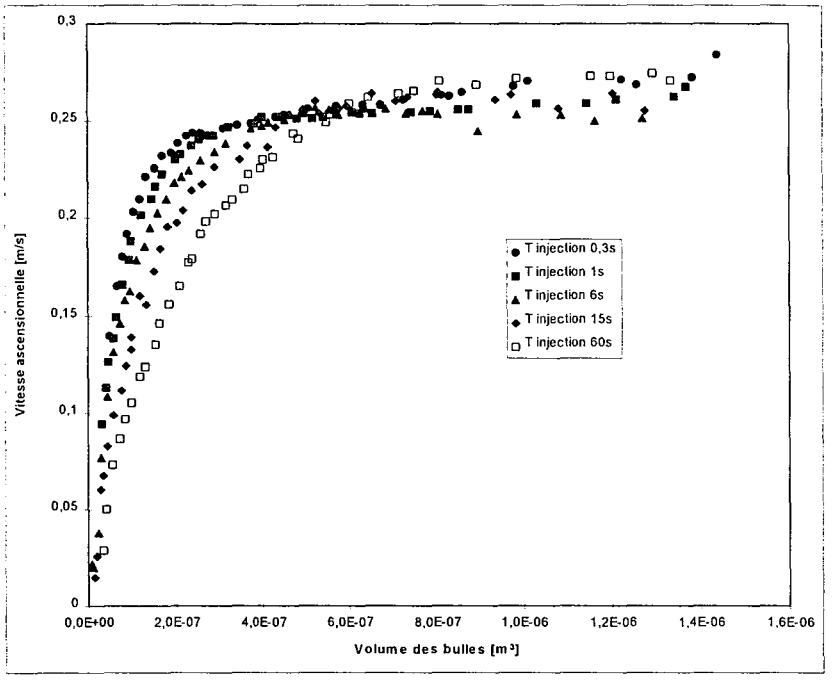


Figure IV.4 : Vitesse ascensionnelle des bulles en fonction de leur volume et de la période d'injection pour une solution de PAA 0,25%

Solution de PAA 0,5% dans de l'eau distillée

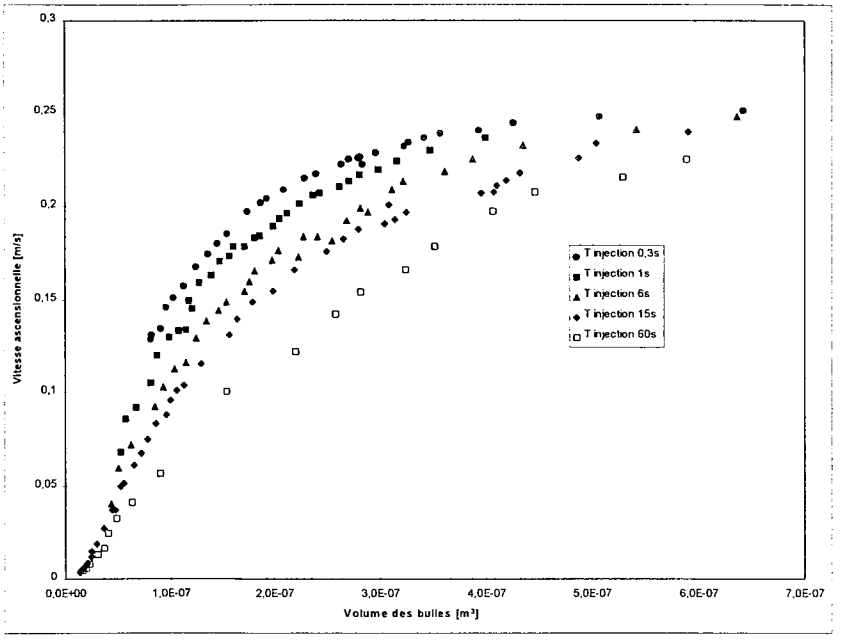


Figure IV.5 : Vitesse ascensionnelle des bulles en fonction de leur volume et de la période d'injection pour une solution de PAA 0,5%

Solution de PAA 0,75% dans de l'eau distillée

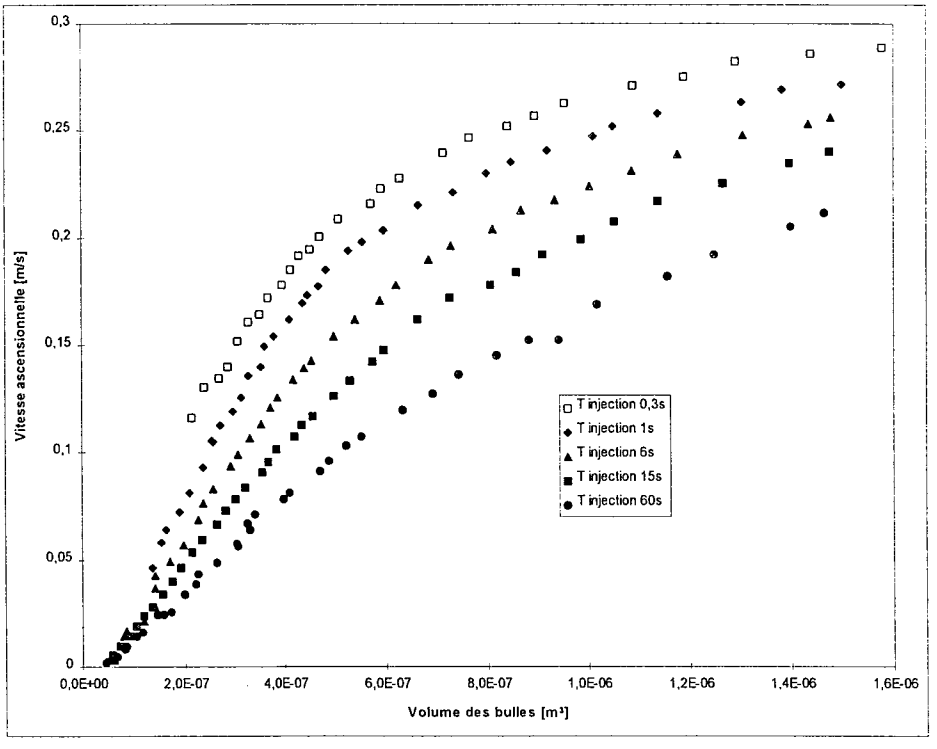


Figure IV.6 : Vitesse ascensionnelle des bulles en fonction de leur volume et de la période d'injection pour une solution de PAA 0,75%

Discussion des résultats pour les solutions de PAAm

Les solutions de PAAm sont toutes obtenues par dissolution d'un même polymère, le polyacrylamide, dans de l'eau distillée. Seule la concentration du polymère varie. Ainsi, les trois solutions sont hautement élastiques et rhéofluidifiantes avec une viscosité et une élasticité qui augmentent avec la concentration en polymère. Plus la concentration en polymère augmente, plus la viscosité augmente, et plus la vitesse ascensionnelle des bulles est faible.

Dans l'évolution de la vitesse ascensionnelle en fonction du volume des bulles, deux zones peuvent être distinguées :

- une première zone dans laquelle la vitesse ascensionnelle augmente fortement avec le volume des bulles
- une deuxième zone dans laquelle la vitesse atteint un palier. Ce palier de vitesses est aux alentours de 0,25 m/s. Il semble correspondre à peu près à la vitesse maximale que peuvent atteindre les bulles dans ces solutions.

Le volume des bulles à partir duquel la vitesse ascensionnelle atteint un palier augmente avec la concentration en polymère. Par exemple, pour la solution de 0,25% PAAm, le palier est atteint pour des volumes de bulles de 300 à 500×10^{-9} m^3, tandis que pour la solution de 0,75%, il n'est pas encore atteint pour des volumes de 1500×10^{-9} m^3. De même, en augmentant la concentration en PAAm, la première zone s'étend sur une gamme de volumes beaucoup plus importante, et la vitesse ascensionnelle augmente bien plus lentement avec le volume des bulles.

L'existence d'un palier de la vitesse ascensionnelle lorsqu'on augmente le volume des bulles a aussi été observé par Carreau et al. (1974) dans une solution de 0,5% PAAm Separan MG-700 en solvant glycérol/eau 20 et 80% respectivement. Sur le palier, les bulles ont une excentricité (rapport largeur/hauteur bulle) très importante. En calculant le nombre de Reynolds généralisé à partir du modèle de la loi de puissance donné dans le tableau III.6 (ce qui est justifié vu la gamme de vitesses de cisaillement rencontrée), on s'aperçoit que le palier commence pour des nombres de Reynolds d'environ 15. Il est probable que ce palier traduise un changement dans l'hydrodynamique des bulles.

Comparaison fluide newtonien, rhéofluidifiant et viscoélastique

Dans un fluide viscoélastique tel que les solutions de PAAm, la vitesse ascensionnelle des bulles dépend fortement de la période d'injection. Pour un volume de bulle donné, la vitesse ascensionnelle des bulles diminue avec une augmentation de la période d'injection. A l'inverse, la vitesse ascensionnelle des bulles ne dépend pas de la période d'injection dans les solutions de glycérol (solution newtonienne) ou de CMC (rhéofluidifiante). Comme expliqué précédemment, le cas particulier de la vitesse ascensionnelle pour une

période d'injection de 0,3 s est due probablement, à un mouvement ascensionnel du fluide, il n'y a donc pas lieu de l'évoquer ici.

Au vu des différents graphes représentant la vitesse ascensionnelle en fonction du volume des bulles (figures IV.4, 5 et 6), il est possible de définir une zone où l'influence de la période d'injection est maximale. Cette zone commence pour des bulles de volumes plus petits dans les solutions de PAAm les moins concentrées et s'étend jusqu'au début du palier de la vitesse ascensionnelle. Cette zone correspond à des vitesses ascensionnelles comprises entre 0,05 et 0,2-0,25 m/s.

Par augmentation de la concentration en polymère, l'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle est aussi accrue.

Remarque : De nombreux auteurs, par exemple Astarita et Appuzzo (1965), Zana et Leal (1978), ont observé une discontinuité dans la courbe de variation de vitesse ascensionnelle en fonction du volume des bulles pour des fluides non newtoniens. Cette discontinuité a lieu pour des volumes de bulles de 10 à 100×10^{-9} m^3 et des vitesses ascensionnelles de 1 à 10×10^{-2} m/s. Bien que cette zone ait été étudiée dans nos expériences, aucune discontinuité n'a été observée.

Le tableau IV.2 résume les conditions opératoires des différentes séries d'expériences.

	Unité	Glycérol 99,5%	CMC 2%	PAAm 0,25%	PAAm 0,5%	PAAm 0,75%
Volume des bulles	$x10^{-9}$ [m^3]	15 - 1500	20 - 800	15-1500	15 - 600	50-1500
Vitesse ascensionnelle	$x10^{-2}$ [m/s]	1 - 16	1 - 18	2 - 28	0,5 - 25	0,2 - 29
Nombre de Reynolds		0,03 - 4,5	0,1 - 4	0,1 - 25	0,01 - 9	0,001 - 6
Nombre de Bond		2 - 40	2 - 20	1,5 - 26	2 - 12	3 - 28
Nombre de Weber		0,01 - 4,5	0,03 - 4	0,01 - 14	0,01 - 8	0,04 - 15
Nombre de capillarité		0,01 - 4,5	0,15 - 1	0,01 - 0,6	0,1 - 1	0,3 - 3

Tableau IV.2 : Résumé des conditions opératoires

Les nombres de Bond et de Weber sont calculés comme défini dans le chapitre bibliographique :

$$Bo = \frac{\rho d^2 g}{\sigma} \text{ et } We = \frac{\rho d U^2}{\sigma}.$$

Pour les solutions de PAAm et CMC, les nombres de Reynolds et de capillarité sont des nombres généralisés : $Re = \frac{\rho U^{2-n} d^n}{K}$ et $ca = \frac{K U^n}{\sigma d^{n-1}}$.

Ils sont calculés en utilisant le modèle loi de puissance de la viscosité (cf tableau III.6). Etant données les valeurs des nombres de Reynolds, l'ascension des bulles se fait en régime de Stokes lorsque les bulles sont petites, et en régime intermédiaire dans les autres cas.

IV.3 Coefficient de traînée d'une bulle en ascension

L'étude de la vitesse terminale ascensionnelle des bulles ou de la sédimentation de sphères fait généralement intervenir un coefficient de frottement *f*, également appelé coefficient de traînée (drag coefficient, parfois noté C_d). Le plus souvent, le coefficient de frottement est représenté graphiquement en fonction du nombre de Reynolds. On essaye ensuite d'exprimer par une corrélation le coefficient de frottement comme une fonction du nombre de Reynolds ainsi que d'autres paramètres.

Nous avons donc représenté le coefficient de frottement d'une bulle en ascension en fonction du nombre de Reynolds pour les différents fluides étudiés. Pour un fluide newtonien, dans un milieu infini et au repos, en régime de Stokes, le coefficient de frottement d'une bulle sphérique en ascension dont l'interface est libre est : f = 16/Re. A titre de comparaison, ce coefficient de frottement « théorique » est représenté sur les différents diagrammes. Les écarts existants sont dus :

- au fait que l'on soit en dehors du régime de Stokes
- à une déformation des bulles lorsque le nombre de Reynolds augmente
- à la viscosité non newtonienne des fluides

Glycérol

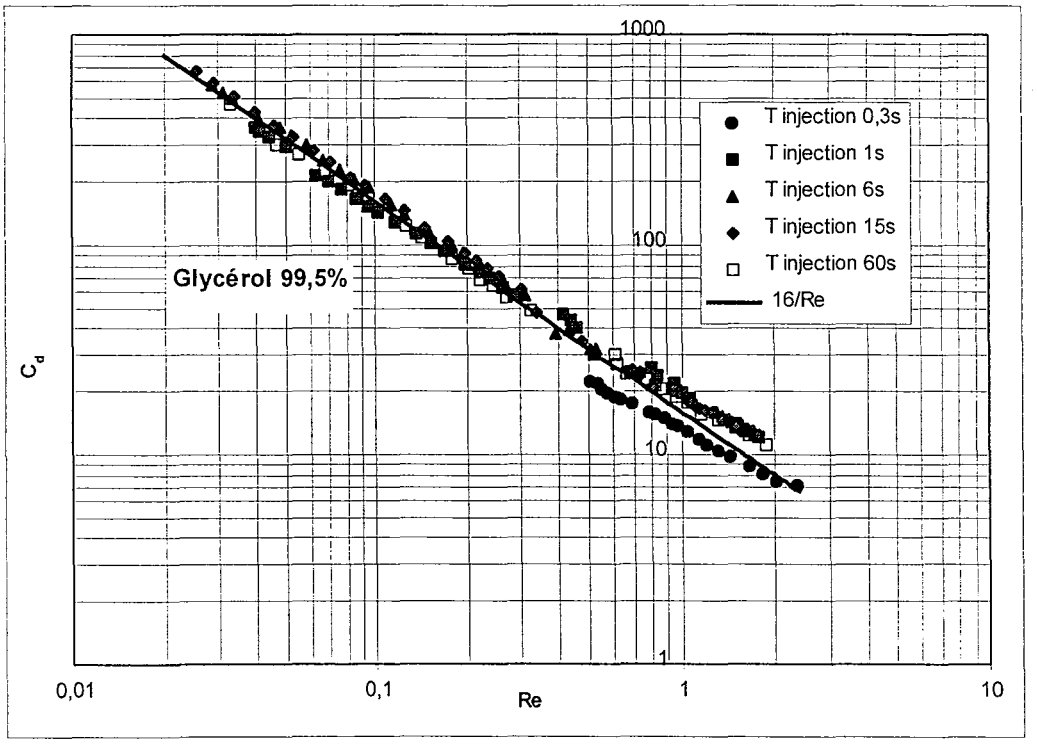


Figure IV.7 : Coefficients de frottement des bulles en ascension dans le glycérol en fonction du nombre de Reynolds. Le temps d'injection entre les bulles varie de 0,3 à 60s.

Les coefficients de frottement expérimentaux sont en accord avec ceux obtenus théoriquement pour l'ascension d'une bulle sphérique en écoulement de Stokes.

Un écart des coefficients de frottement expérimentaux à la relation $f = {}^{16}/_{Re}$ n'est observé que dans deux cas :

- quand le nombre de Reynolds dépasse Re = 1
- quand la période d'injection est de 0,3s. Comme mentionné précédemment, pour cette période d'injection, la proximité des bulles qui se suivent entraîne une mise en mouvement du fluide et ainsi un coefficient de frottement moindre.

Solution de CMC

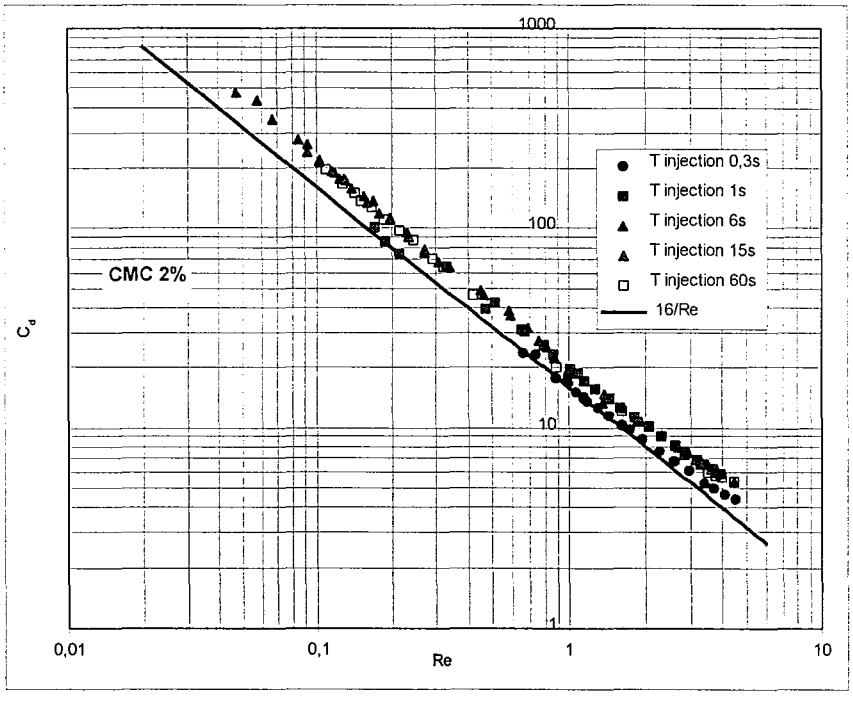


Figure IV.8 : Coefficients de frottement des bulles en ascension dans une solution de CMC 2% en fonction du nombre de Reynolds. Le temps d'injection entre les bulles varie de 0,3 à 60s.

La solution de CMC est un fluide rhéofluidifiant. Les résultats expérimentaux montrent une bonne reproductibilité de la mesure des coefficients de frottement. Mais, même pour des bulles très petites, les coefficients de frottement expérimentaux s'écartent de ceux obtenus en régime de Stokes.

Les résultats expérimentaux sont bien corrélés par $f = {}^{21,8}/_{\mathrm{Re}}$.

Comme dans le cas du glycérol, les coefficients de frottement sont plus faibles pour une période d'injection de 0,3s que pour les autres périodes d'injection. L'origine de ce cas particulier est, à notre avis, la même que celle évoquée précédemment.

Solution de PAAm

Les coefficients de frottement sont représentés en fonction du nombre de Reynolds pour les trois solutions de PAAm 0,25% - 0,5% et 0,75%.

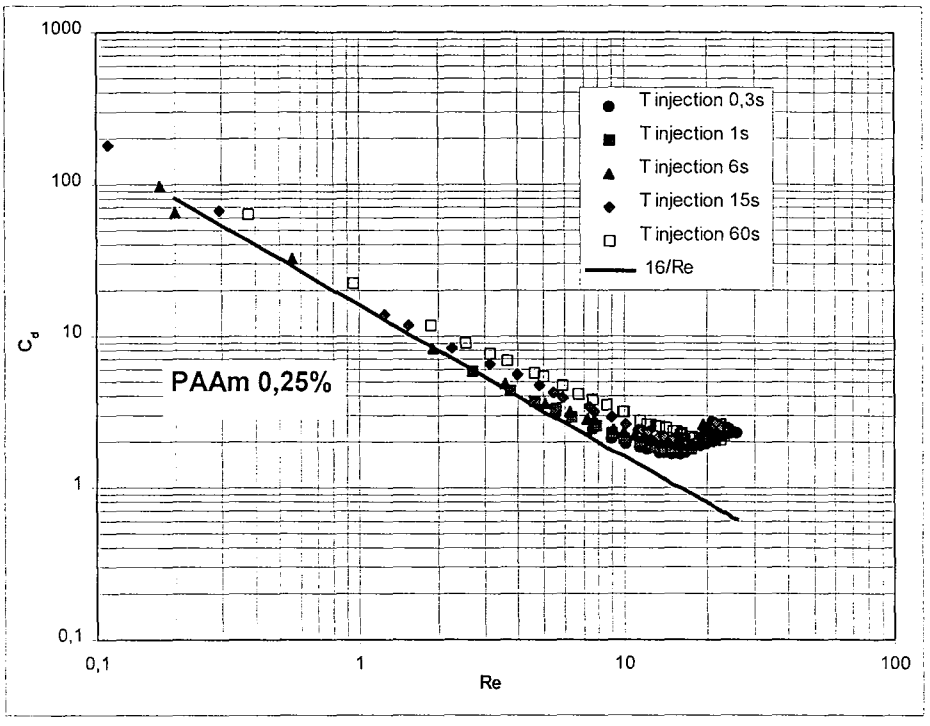


Figure IV.9 : Coefficients de frottement des bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,25%.

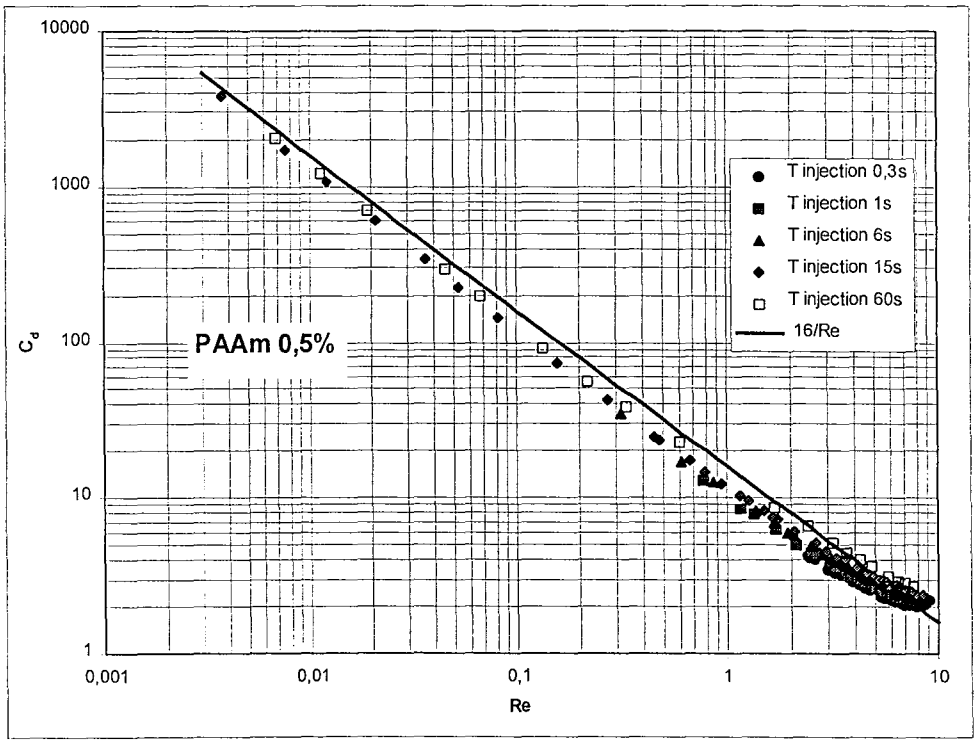


Figure IV.10 : Coefficients de frottement des bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,5%.

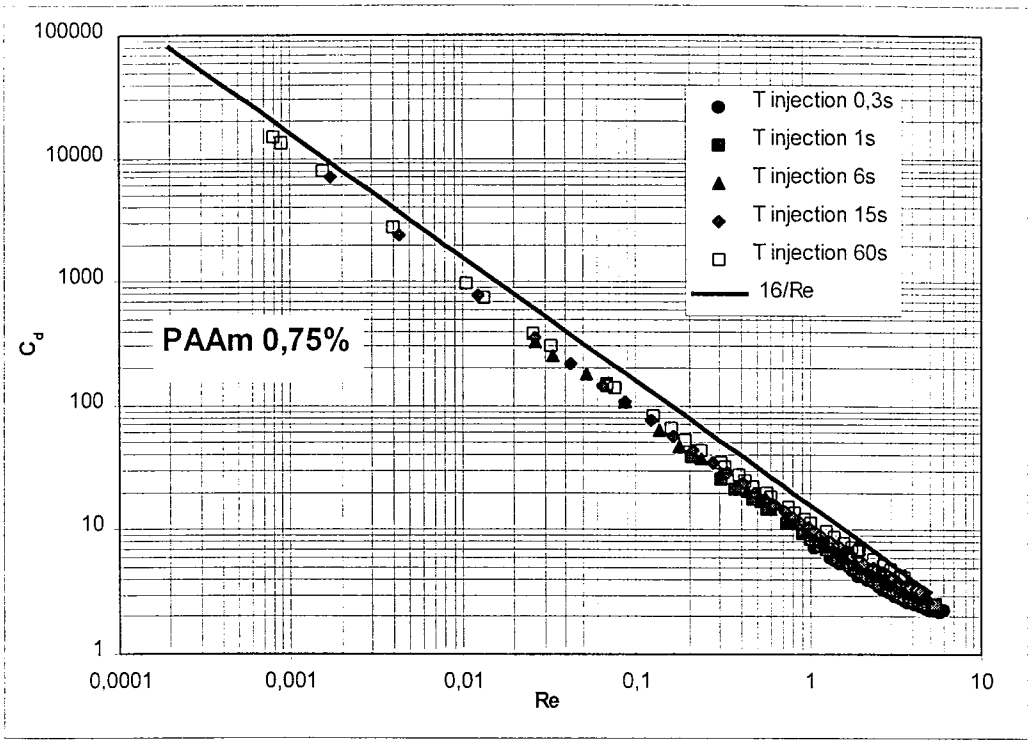


Figure IV.11 : Coefficients de frottement des bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,75%.

D'après ces résultats ;

- Pour des nombres de Reynolds généralisés très petits, Re < 0,01, on ne s'écarte que légèrement des coefficients de frottement calculés en écoulement de Stokes.
- Pour 0,01 < Re < 1, la courbe s'écarte sensiblement des coefficients de frottement du régime de Stokes, mais l'écart est constant.
- Quand Re > 1, les coefficients de frottement deviennent plus grands que ceux donnés par 16/Re, notamment pour la solution de PAAm 0,25%.

Comme dans la solution de CMC 2%, dans la solution de PAAm 0,25%, les coefficients de frottement expérimentaux des bulles en ascension sont plus importants que ceux calculés en régime de Stokes. Par contre, pour les solutions de PAAm 0,5 et 0,75%, ces coefficients expérimentaux sont plus faibles que ceux calculés en régime de Stokes.

L'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle, et par là même, sur les coefficients de frottement, n'est pas négligeable. Pour les trois solutions de PAAm, les coefficients de frottement sont plus importants pour les périodes d'injections longues.

Dans la littérature, relativement peu d'études expérimentales sont consacrées à l'étude des coefficients de frottement. Assez souvent (Chhabra 1988), un facteur correctif X des coefficients de traînée est introduit dans l'expression $C_d = \frac{16}{Re} X$. Ce facteur correctif peut prendre différentes formes comme par exemple

une fonction de l'indice d'écoulement du fluide. Pour Hirose et Moo-Young (1969) ce facteur est $X = 2^n . 3^{\frac{n-3}{2}} . \frac{13 + 4n - 8n^2}{(2n+1)(n+2)}$. La prise en compte de ce facteur de correction ne donne pas de résultats très concluants dans le cas de nos expériences.

La période d'injection n'est jamais un paramètre pris en compte dans l'expression des coefficients de frottement ou de la vitesse ascensionnelle. Comme dans les solutions de PAAm étudiées, la vitesse ascensionnelle varie du simple au double suivant la période d'injection, il s'en suit que les corrélations qui existent pour exprimer cette vitesse ascensionnelle ne sont pas d'un grand secours.

IV.4 Influence de la période d'injection sur la forme des bulles

Dans la littérature, la forme des bulles est caractérisée de diverses manières. Dans le cas de fluides newtoniens, des cartographies de la forme des bulles ont été réalisées en représentant des nombres adimensionnels comme les nombres de Bond, Weber ou capillarité en fonction du nombre de Reynolds.
Dans le cas de fluides non-newtoniens, aucune cartographie de la forme des bulles n'a été réalisée à notre connaissance. L'évolution de la forme des bulles n'est quasiment jamais donnée en fonction de nombres adimensionnels comme les nombres de Bond, Weber ou Reynolds, mais est donnée en fonction du diamètre des bulles ou de leur volume.

L'excentricité de la bulle, le rapport de sa largeur sur sa hauteur, donne une image quantitative de la forme des bulles. Lors des expériences effectuées dans les différents fluides, la vitesse ascensionnelle et la forme des bulles ont été mesurées simultanément. L'évolution de l'excentricité des bulles en fonction de leur volume est représentée pour les différents fluides et pour différentes périodes d'injection, sur les figures IV.12.a et b, IV.14.a et b et IV.15.a et b.

Solution de glycérol et CMC

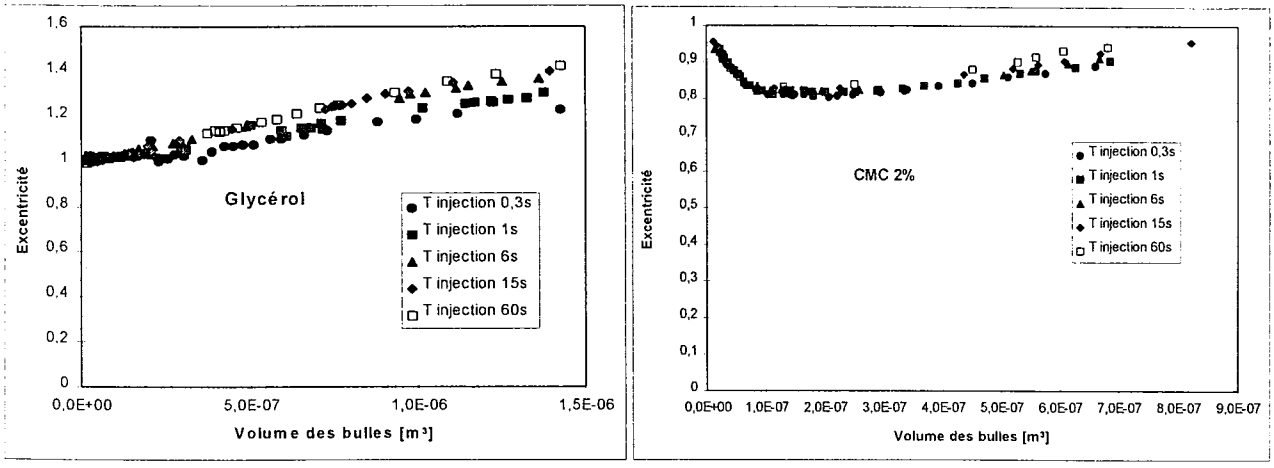


Figure IV.12.a et b : Excentricité des bulles en fonction de leur volume et de la période d'injection dans le glycérol et dans la solution de CMC 2%

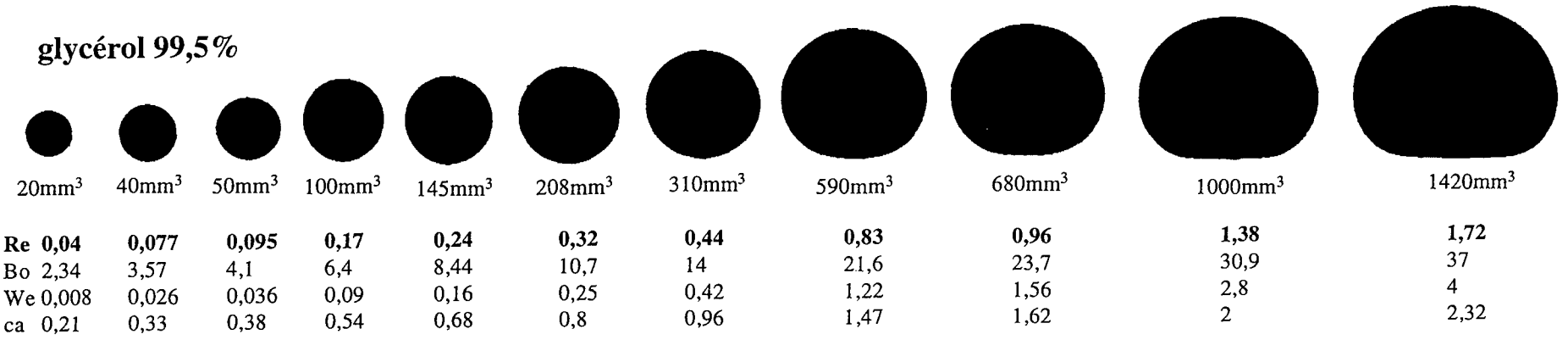
Pour les bulles de très petit volume, les forces de tension interfaciale dominent. Ainsi, elles sont de forme quasi sphérique, et ont une excentricité proche de 1, comme observé sur les figures IV.12.a et b ou sur les figures IV.13.

Pour la solution de glycérol, par augmentation du volume, les bulles se déforment en plusieurs étapes (figure IV.13) :

$V < 100x10^{-9}$ m^3	bulles sphériques avec une bonne approximation
$100 < V < 500x10^{-9}$ m^3	forme de sphéroïde aplati aux pôles tout en restant proche de la forme sphérique
$500 < V < 1400x10^{-9}$ m^3	les bulles deviennent plates à l'arrière
$1400x10^{-9}$ m^3 < V	bulles de forme de casque sphérique, l'arrière de la bulle se creuse comme dans une dépression

Ces formes de bulles ont été observées par de nombreux auteurs pour des fluides newtoniens obtenus à partir de mélanges eau-glycérol ou eau-glucose, ou encore de silicone (Carreau 1974). A nombre de Reynolds et de Bond identiques, elles sont conformes aux résultats de la littérature (Bhaga et Weber 1981). Pour toutes les bulles observées, l'excentricité est supérieure à 1.

Pour la solution de CMC, sur la gamme de volumes étudiée, les bulles sont allongées verticalement. L'excentricité décroît, passe par un minimum pour un volume de $150x10^{-9}$ m^3 puis croît au-delà. On note la présence d'une queue se terminant en pointe pour des volumes supérieurs à $50x10^{-9}$ m^3.
Aussi bien dans le glycérol que dans la solution de CMC, l'excentricité des bulles n'est guère influencée par la période d'injection.



Re	**0,04**	**0,077**	**0,095**	**0,17**	**0,24**	**0,32**	**0,44**	**0,83**	**0,96**	**1,38**	**1,72**
Bo	2,34	3,57	4,1	6,4	8,44	10,7	14	21,6	23,7	30,9	37
We	0,008	0,026	0,036	0,09	0,16	0,25	0,42	1,22	1,56	2,8	4
ca	0,21	0,33	0,38	0,54	0,68	0,8	0,96	1,47	1,62	2	2,32

Re	**0,17**	**0,22**	**0,47**	**0,65**	**0,86**	**1,27**	**1,86**	**2,3**	**3,17**	**3,9**
Bo	2,09	2,28	4,1	5,39	6,3	8	10,2	12	15,3	18
We	0,028	0,04	0,14	0,23	0,36	0,68	1,27	1,75	2,9	4,11
ca	0,16	0,19	0,3	0,35	0,42	0,54	0,68	0,76	0,92	1,04

Figure IV.13: Evolution de la forme des bulles avec leurs volumes pour une période d'injection de 1s, dans des solutions de glycérol et CMC

Solutions de PAAm

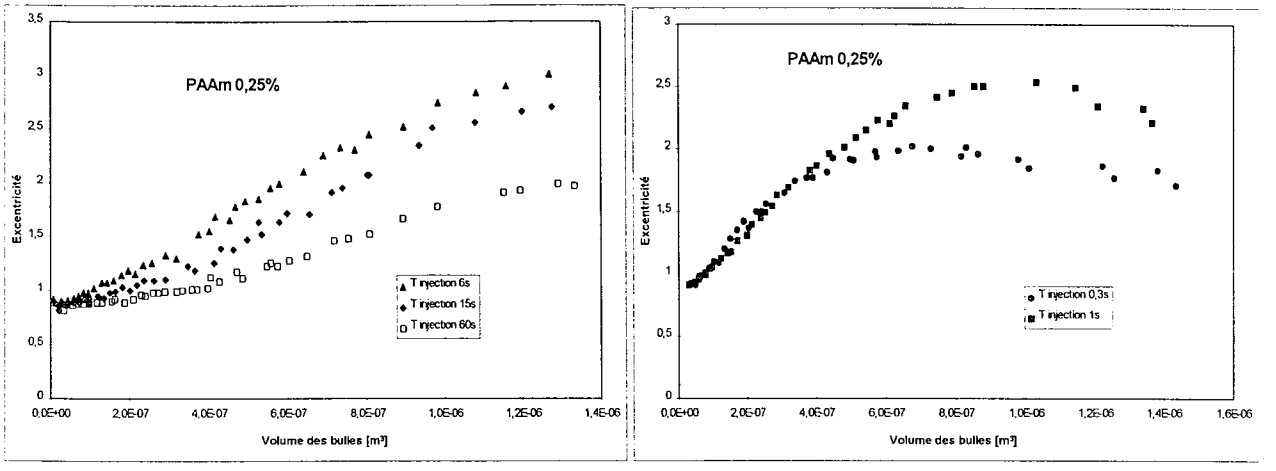
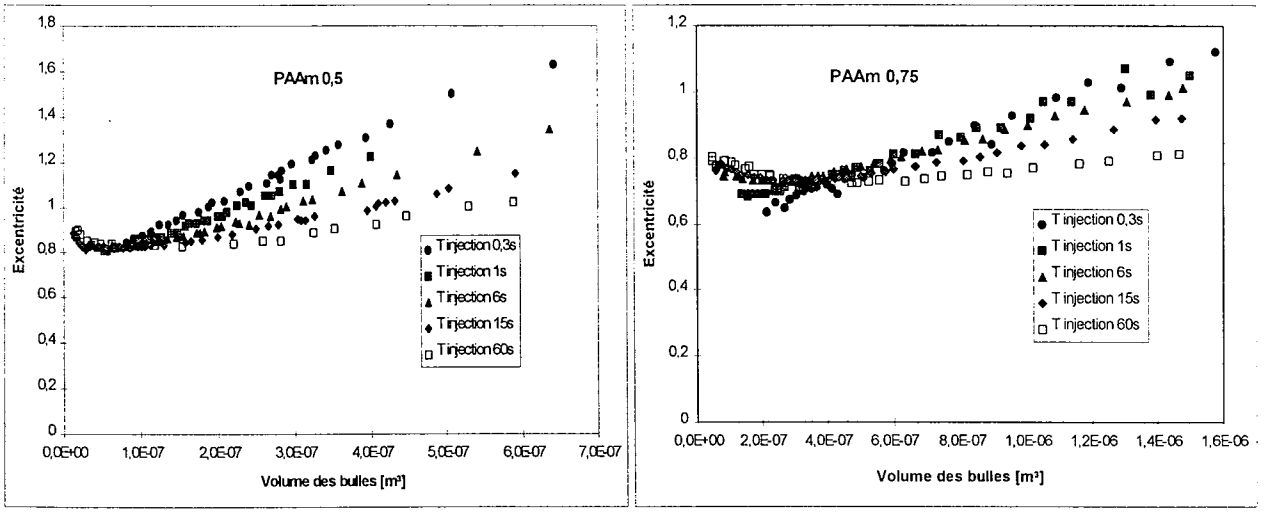


Figure IV.14 : Excentricité des bulles en fonction de leur volume pour différentes périodes d'injection dans une solution de PAAm 0,25%



Figures IV.15 a et b : Excentricité des bulles en fonction de leur volume pour différentes périodes d'injection dans des solutions de PAAm 0,5 et 0,75% en eau distillée

Contrairement aux solutions de CMC et de glycérol, pour les solutions de PAAm, la période d'injection a une forte influence sur la forme des bulles. Cette influence est nettement plus marquée pour la solution la moins visqueuse (PAAm 0,25%), que pour la solution la plus visqueuse (PAAm 0,75%).

En règle générale, l'excentricité des bulles augmente quand la période d'injection diminue. Cependant, quelques restrictions à cette règle existent :

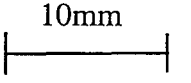
- à faible volume, l'influence de la période d'injection est faible. Ce n'est qu'à partir de volumes de 50 - 100 et 400×10^{-9} m^3 pour les solutions de 0,25 - 0,5 et 0,75% de PAAm respectivement, que des changements dans la forme des bulles deviennent notables.

PAAm 0,25%

	30mm³	62mm³	100mm³	200mm³	400mm³	600mm³	850mm³	1200mm³	1350mm³
Re	**2,71**	**6,4**	**9.9**	**15**	**18,7**	**19,9**	**20,8**	**22,2**	**23,5**
Bo	2,15	3,4	4,6	7,38	11,7	15,5	19,4	24,5	26,5
We	0,49	1,57	2,9	5,5	8,3	9,8	11	12,8	14
ca	0,18	0,24	0,29	0,37	0,44	0,49	0,53	0,58	0,6

PAAm 0,5%

	52mm³	80mm³	100mm³	160mm³	210mm³	260mm³	310mm³	350mm³	400mm³
Re	**0,78**	**1,7**	**2,6**	**4,45**	**5,4**	**6,2**	**7**	**7,4**	**7,8**
Bo	3	4	4,9	6,4	7,7	8,8	10	10,7	11,7
We	0,31	0,85	1,5	3,1	4	5,5	6	6,6	7,3
ca	0,4	0,5	0,57	0,69	0,75	0,81	0,86	0,89	0,92



PAAm 0,75%

	135mm³	200mm³	250mm³	300mm³	400mm³	600mm³	850mm³	1000mm³	1200mm³	1500mm³
Re	**0,21**	**0,47**	**0,91**	**1,14**	**2,0**	**3,1**	**4,1**	**4,5**	**4,9**	**5,5**
Bo	5,7	7,6	8,7	9,6	11,9	15,3	19,3	21,7	23,5	28,2
We	0,2	0,7	1,25	1,68	3,4	6,2	9,3	10,9	12,3	14,9
ca	0,94	1,22	1,37	1,47	1,7	2	2,3	2,4	2,5	2,7

Figure IV.16 : Evolution de la forme des bulles avec leurs volumes pour une période d'injection de 1s, dans des solutions de PAAm

PAAm 0,25%

	T=0,3s	T=1s	T=6s	T=15s	T=60s
Re	**16,9**	**16,5**	**15,3**	**14**	**11,3**
Bo	8,7	8,7	8,7	8,8	8,7
We	6,7	6,5	5,9	5,35	4,2
ca	0,4	0,39	0,39	0,38	0,37

PAAm 0,5%

Re	**6,5**	**6**	**4,8**	**4,5**	**3,16**
Bo	8,3	8,4	8,7	8,6	8,7
We	5,2	4,7	3,7	3,4	2,2
ca	0,8	0,79	0,77	0,76	0,71

PAAm 0,75%

Re	**1,3**	**0,91**	**0,6**	**0,41**	**0,24**
Bo	8,34	8,7	8,7	8,9	8,9
We	1,9	1,25	0,77	0,5	0,27
ca	1,4	1,4	1,29	1,22	1,1

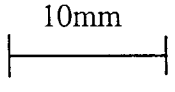
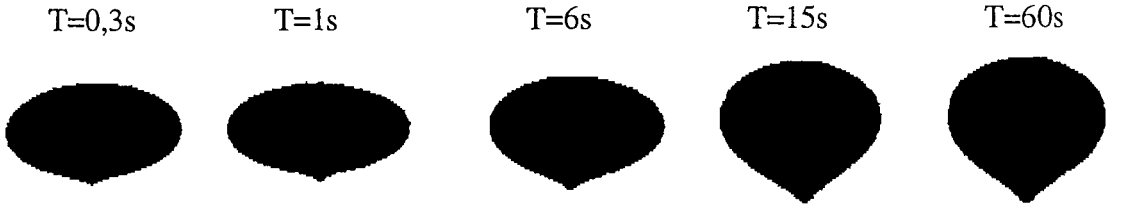


Figure IV.17 : Evolution de la forme des bulles de 250x10^{-9} m^3 en fonction de la période d'injection pour les trois solutions de PAAm

PAAm 0,25%



T=0,3s	T=1s	T=6s	T=15s	T=60s
Re 18,5	**18,7**	**18,2**	**16,6**	**16,1**
Bo 11,5	11,7	11,7	12	11,8
We 8,1	8,3	8,0	7,4	7,0
ca 0,44	0,44	0,44	0,44	0,43

PAAm 0,5%

Re 8,1	**7,9**	**7,3**	**6,3**	**5,8**
Bo 11,5	11,7	11,5	11,8	11,8
We 7,5	7,3	6,5	5,7	5,1
ca 0,93	0,92	0,9	0,0,89	0,88

PAAm 0,75%

Re 2,34	**2,0**	**1,28**	**0,89**	**0,56**
Bo 11,6	11,9	11,5	11,4	11,7
We 4,1	3,4	2	1,3	0,8
ca 1,76	1,7	1,6	1,5	1,4

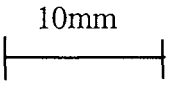


Figure IV.18 : Evolution de la forme des bulles de $400x10^{-9}$ m^3 en fonction de la période d'injection pour les 3 solutions de PAAm

- pour la solution de PAAm 0,75%, pour des périodes d'injection très courtes, et pour de faibles volumes de bulles, les bulles sont allongées verticalement plus qu'à la normale. Cet allongement des bulles dans la solution de PAAm 0,75% de haut niveau de viscosité nous fait penser à la formation d'un « jet » presque continu que l'on voit apparaître à partir d'un certain débit, dans des solutions hautement visqueuses. Ce phénomène doit être dû à un rapport (force de tension interfaciale)/(force visqueuse) défavorable.
- pour la solution la moins visqueuse (0,25% PAAm), à partir d'un certain volume des bulles et pour des périodes d'injection courtes (0,3 ou 1s), l'excentricité des bulles décroît avec le volume. Pour des périodes d'injection plus importantes, l'excentricité des bulles croît avec le volume des bulles. Cette gamme de volumes où l'excentricité décroît, correspond au palier de la vitesse ascensionnelle. Dans cette zone, les bulles passent d'une forme de sphéroïde très aplatie avec queue à une forme de calotte sphérique, toujours encore avec une queue (voir figure IV.16).

Sur les figures IV.13 et IV.16, les bulles sont représentées à l'échelle 2,2. Ces images de bulles ont été obtenues expérimentalement par analyse d'image, pour une période d'injection de 1s.

Pour des volumes de bulles donnés : 250 et 400×10^{-9} m^3, la forme des bulles est représentée pour les différentes périodes d'injection, pour les trois solutions de PAAm (figures IV.17 et IV.18). Ces figures montrent à quel point la forme des bulles est dépendante de la période d'injection.
L'influence de la période d'injection décroît avec une augmentation de la concentration en polymère. Pour une même taille de bulle et une même période d'injection, l'excentricité des bulles diminue avec une augmentation de la concentration en polymère.

Pour toutes les bulles représentées, les nombres de Reynolds, Bond, Weber et de capillarité ont été calculés. Il n'a pas été trouvé de relation évidente entre un ou deux de ces nombres et la forme réelle des bulles (par exemple sur les figures IV.17 ou IV.18 les bulles ont le même nombre de Bond, bien que leurs formes soit très différentes). Comme évoqué précédemment, nous n'avons pas trouvé de cartographie de la forme des bulles en fonction des différents nombres adimensionnels pour les solutions viscoélastiques. Une seule tentative pour des fluides non-newtoniens a été faite par Tsukada (1990) dans le cas d'une solution de CMC de concentration bien précise. L'absence de littérature reflète la difficulté voire l'impossibilité d'effectuer une cartographie en fonction de ces nombres adimensionnels pour les fluides viscoélastiques.

L'évolution de la forme des bulles avec la période d'injection n'est relatée dans la littérature que par Carreau et al. (1974). Pour de petites bulles, (1 et $1,5 \times 10^{-6}$ m^3), ils observent, comme dans nos expériences, une décroissance de l'excentricité avec la période d'injection. Pour de plus grosses bulles (8 et 10×10^{-6} m^3), l'excentricité croît avec la période d'injection, passe par un maximum et décroît par la suite comme cela a été observé pour les grosses bulles dans la solution de 0,25% de PAAm. Cette tendance contraire a

lieu pour de grands nombres de Reynolds. Dans notre expérience, cette décroissance de l'excentricité correspond au passage de bulles de forme sphéroïdale très aplatie à la forme de calotte sphérique. Cette transition de forme doit traduire un changement dans le champ hydrodynamique autour des bulles.

IV.5 Conclusion

Les expériences effectuées ont permis de connaître l'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle et la forme des bulles sur une large gamme de volumes et pour des volumes proches de ceux obtenus en « bullage libre ».
Mis à part le cas d'une période d'injection de 0,3 s, la période d'injection n'a pas d'influence sur la vitesse et la forme des bulles pour les solutions de glycérol et CMC, mais a une forte influence pour les solutions de PAAm.
Par ce balayage, une influence maximale de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle a été observée lorsque les nombres de Reynolds sont compris entre 1 et 15. Cette zone de forte influence de la période d'injection correspond à une zone de vitesses comprises entre 0,05 et 0,2 à 0,25 m/s. D'après les trois solutions étudiées, une augmentation de la concentration en polymère, donc une augmentation conjointe de la viscosité et de l'élasticité, augmente l'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle des bulles.

L'influence de la période d'injection sur la forme des bulles augmente avec le volume des bulles. Quelle que soit la période d'injection, les petites bulles sont de forme presque sphérique, il est donc naturel que la période d'injection n'ait, dans ce cas, qu'une influence négligeable sur la forme des bulles. L'influence de la période d'injection sur la forme des bulles augmente avec une diminution de la concentration en polymère donc avec une diminution de la viscosité.

L'influence de la période d'injection sur la forme des bulles va de pair avec un changement de la vitesse ascensionnelle.

Comme présenté dans la partie I.3.2.4 de la bibliographie, de nombreux auteurs ont étudié ce phénomène de dépendance de la vitesse de chute d'une bille ou de l'ascension d'une bulle avec la période d'injection. Pour l'instant, aucune explication ne s'est imposée.

A notre avis, la difficulté d'interprétation de ces observations viendrait du fait que plusieurs effets se superposeraient :

A court terme, 1 à 2 s, comme le souligne Carreau (1974), des interactions hydrodynamiques existent. Ces interactions ne sont pas propres aux fluides viscoélastiques. Ceci explique une vitesse

ascensionnelle des bulles plus importante pour les solutions de glycérol et de CMC lorsque la période d'injection est de 0,3 s.

A plus long terme, comme évoqué par de nombreux auteurs, un « effet de mémoire », serait à l'origine d'une influence aussi importante de la période d'injection sur la vitesse et la forme des bulles. En effet, comme montré par Li et al. (1996), le passage d'une bulle crée un déplacement du fluide ainsi qu'une certaine contrainte du fait de l'élasticité du fluide. Cette contrainte créée prend du temps pour se relaxer, et s'accumule lorsque la période d'injection n'est pas très longue (Li et al. 1996). Ainsi, l'élasticité des solutions de PAAm fait que les contraintes résiduelles et donc le mouvement dans le fluide perdure très longtemps après le passage des bulles, ce qui, vu la rhéofluidifiance du fluide, induit une moindre viscosité rencontrée par la bulle qui suit.

Remarque : Ceux qui reconnaissent au PAAm un caractère thixotrope, interpréterons l'influence de la période d'injection comme l'incapacité du fluide à récupérer totalement son niveau de viscosité « au repos » suite au cisaillement engendré par la bulle précédente. Cette récupération du niveau de viscosité suite à une déstructuration par cisaillement serait due au caractère thixotrope du fluide.

Chapitre V : Ascension de bulles dans un train

Introduction

Dans ce chapitre, nous considérons les interactions entre bulles. Ces interactions peuvent mener à des coalescences, donc à une diminution du nombre de bulles, et par là même, à une diminution de l'aire interfaciale, ce que l'on cherche le plus souvent à éviter. Les interactions au sein d'un même train de bulles sont considérées dans une première partie. Les interactions entre deux trains de bulles ainsi que leur influence sur la coalescence au sein d'un train sont étudiées dans une deuxième partie. Une discussion sur ces interactions ainsi que quelques hypothèses explicatives sont données dans une troisième partie. Le chapitre se termine par quelques perspectives.

V.1 Interactions entre bulles dans un train

V.1.1 Le phénomène de coalescence

Dans la partie II.6, quelques images montrent le phénomène de coalescence en ligne dans un train de bulles pour une solution de PAAm 0,75%. Sur ces quelque vingt centimètres, on observe déjà une diminution importante du nombre de bulles avec la distance à l'orifice.
Le phénomène de coalescence est quasiment inexistant dans le glycérol et est marginal dans la solution de CMC 2%. Ce n'est que dans les solutions viscoélastiques de PAAm qu'il prend une importance considérable.

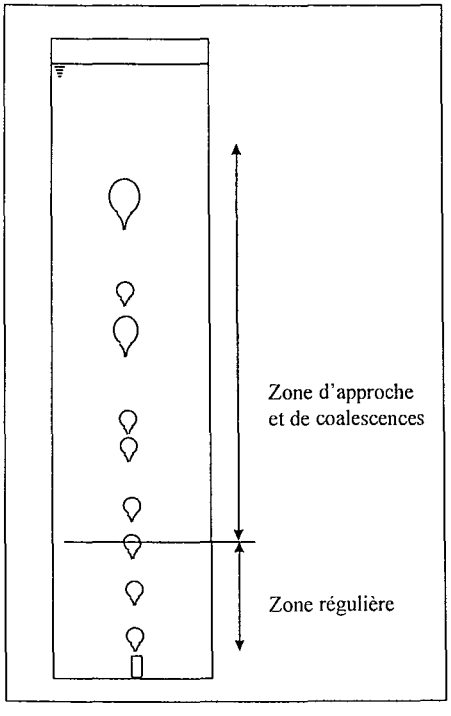


Figure V.1 : Coalescences en ligne dans une colonne à bulles pour une solution de viscoélastique de PAAm

Au départ, pour un débit donné, les bulles formées à l'orifice sont toutes de taille identique (par analyse d'images, aucune différence dans la taille des bulles n'a pu être observée. On estime que l'analyse d'image donne une précision meilleure que quelques pour cents), et se détachent régulièrement de l'orifice. Il s'en suit que dans la zone située juste au-dessus de l'orifice, les bulles sont alignées verticalement et régulièrement espacées, comme le montre la figure V.1.
Mais très rapidement des différences dans l'espacement entre bulles apparaissent, certaines bulles rattrapent les bulles précédentes. Au fur

et à mesure de l'approche, la bulle « qui suit » accélère jusqu'à ce qu'elle entre en contact avec la précédente. Une fois en contact, par un processus très rapide (de l'ordre de $80x10^{-3}$ s) le film liquide séparant les deux bulles s'amincit puis se rompt, permettant aux deux bulles de fusionner.

Il faut noter que lorsque les deux bulles sont en contact, ou lorsqu'elles sont suffisamment proches pour qu'elles entrent en contact, la coalescence a lieu de manière certaine. Autrement dit, lorsque deux bulles sont en contact après une approche en ligne, jamais aucune séparation ultérieure de ces deux bulles n'a été observée.

Dans ces expériences, plusieurs paramètres sont étudiés :

- des fluides de rhéologie différente : une solution de PAAm 0,5% et une solution de PAAm 0,75% dans de l'eau distillée
- différents débits de gaz : 0,05 - 0,1 - 0,2 - 0,5 - 1 et $2x10^{-6}$ m^3/s
- différentes distances entre les deux buses

Dans ces conditions, l'évolution du nombre de bulles avec la distance à l'orifice est étudiée en comptant le nombre de bulles du train de bulles qui passe à une hauteur donnée pendant un intervalle de temps donné. En pratique, on balaye une quinzaine de hauteurs comprises entre 0,03 et 1,4 m au-dessus de l'orifice

Le tableau V.1 résume les différentes conditions expérimentales.

		PAAm 0,75%					PAAm 0,5%	
Débit de gaz	[m^3/s]	$0,1x10^{-6}$	$0,2x10^{-6}$	$0,5x10^{-6}$	$1,0x10^{-6}$	$2,0x10^{-6}$	$0,1x10^{-6}$	$0,2x10^{-6}$
Fréquence de formation	[Hz]	1,14	1,7	2,48	3,4	4,7	1,25	2,2
Volume des bulles [stp]	[m^3]	$86x10^{-9}$	$116x10^{-9}$	$201x10^{-9}$	$294x10^{-9}$	$425x10^{-9}$	$80x10^{-9}$	$88,5x10^{-9}$

Tableau V.1 : Conditions des expériences sur les interactions en ligne dans un train de bulles

V.1.2 Evolution du nombre de bulles avec la distance à l'orifice

Pour quantifier la coalescence, on mesure le nombre de bulles passant à travers le système laser - diode pendant un temps de 22 ou de 11 minutes pour un débit donné, à une hauteur donnée. Plus précisément, l'intensité lumineuse reçue par la diode est acquise à une fréquence de 100 Hz. Les fichiers contiennent donc 131072 ou 65536 points de mesure. Le passage d'une bulle se traduit par une moindre intensité lumineuse, donc par « un pic inversé » sur signal acquis. Un traitement des fichiers d'acquisition par un programme Fortran permet de comptabiliser le nombre de bulles ayant traversé pendant le temps de la mesure. Ce nombre de bulles détectées passe de plusieurs centaines pour les débits les plus faibles à quelques milliers pour les débits les plus importants.

Influence de la pression hydrostatique et de la proximité de la surface libre

Avant d'effectuer un balayage systématique de la hauteur de colonne dans différentes conditions, il est intéressant de connaître l'influence de la proximité de la surface libre et de la pression hydrostatique sur la coalescence. Ainsi, dans une première série d'expériences, l'évolution du nombre de bulles est mesurée pour différentes hauteurs de fluide (figure V.2).

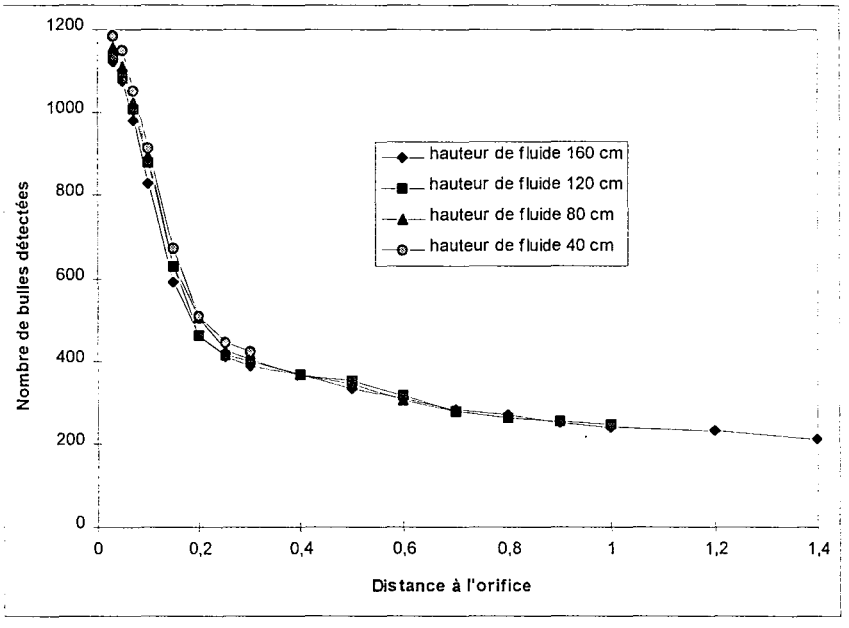


Figure V.2 : Evolution du nombre de bulles avec la distance à l'orifice pour un débit de gaz de $0,2x10^{-6}$ m^3/s dans une solution de PAAm 0,75%

Pour les différentes hauteurs de fluide, aucune différence dans l'évolution du nombre de bulles avec la distance à l'orifice n'est observée. Ainsi, d'après nos observations, la proximité de la surface libre n'a aucune influence sur la coalescence. Une variation de la pression hydrostatique d'environ un mètre d'eau n'a pas non plus d'influence notable d'après nos expériences.

Solution de PAAm 0,5% - influence du débit

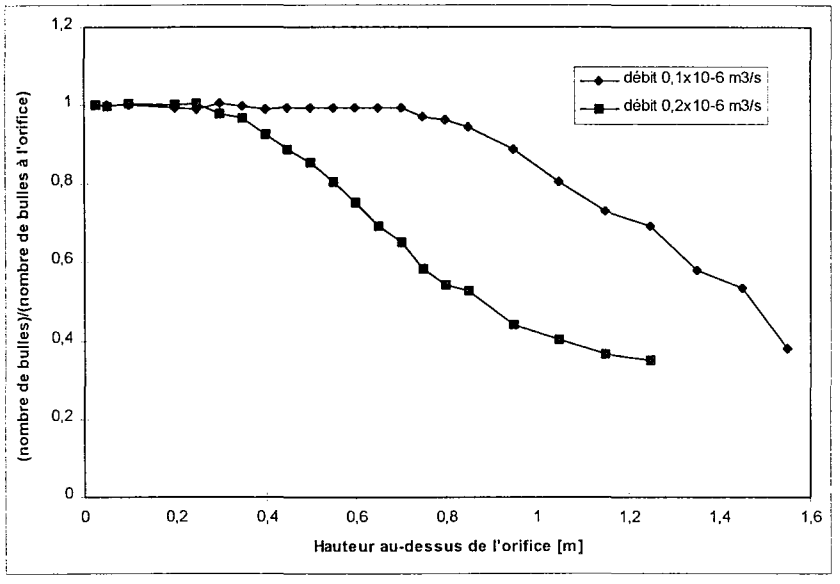


Figure V.3 : Evolution du nombre de bulles avec la distance à l'orifice pour une solution de PAAm 0,5% et pour des débits de gaz de 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s

Pour une solution de PAAm 0,5%, une augmentation du débit intensifie le phénomène de coalescence. En haut de la colonne, le nombre de bulles a été divisé par près de trois.

Solution de PAAm 0,75% - influence du débit

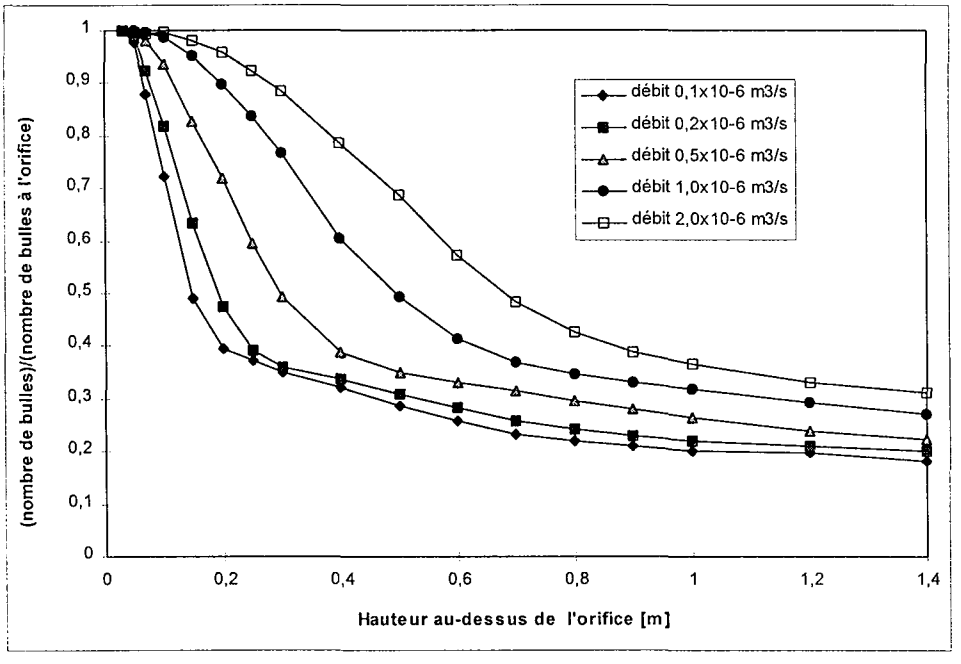


Figure V.4 : Evolution du nombre de bulles avec la distance à l'orifice dans une solution de PAAm 0,75% et pour des débits de gaz de 0,1 à 2x10^{-6} m^3/s

Pour une solution de PAAm 0,75%, en haut de la colonne, le nombre de bulles est divisé par cinq pour les faibles débits et par trois pour les débits plus importants.

Trois zones peuvent être distinguées dans l'évolution du train de bulles

- une première zone correspond à un plateau : le nombre de bulles reste constant, les coalescences n'ont pas encore commencé à avoir lieu. Cette zone est très étroite pour les faibles débits et est plus large pour des débits plus importants.
- dans une deuxième zone, que l'on pourrait qualifier de zone de coalescence, le nombre de bulles est divisé par trois.
- dans une dernière zone, le nombre de bulles n'évolue que lentement. Cette diminution du nombre de coalescences peut apparaître comme une re-stabilisation du système.

Quand le débit augmente, les premières coalescences ont lieu plus loin de l'orifice, la zone de coalescence s'étend sur une plus grande hauteur, et la troisième zone (zone de plus faible évolution du nombre de coalescences) ne commence que plus loin de l'orifice.

V.1.3 Evolution de la distribution de taille des bulles avec la distance à l'orifice

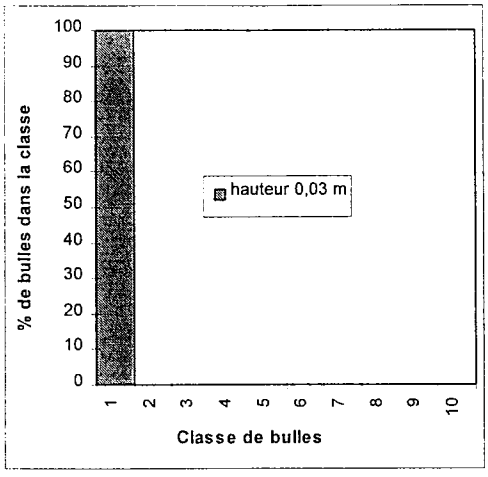
Dans la partie précédente, nous avons vu l'évolution du nombre de bulles par suite de coalescences en ligne dans un train. L'information obtenue caractérise globalement le train de bulles, mais ne traduit pas l'évolution qualitative du train de bulles. Pour mieux connaître l'évolution de la structure du train de bulles, la distribution de taille des bulles est mesurée à différentes hauteurs dans une solution de PAAm 0,75% et pour un débit de gaz de $0{,}2\text{x}10^{-6}$ m^3/s. Les mesures de la taille des bulles sont effectuées par acquisition et traitement d'images avec le logiciel Visolog.

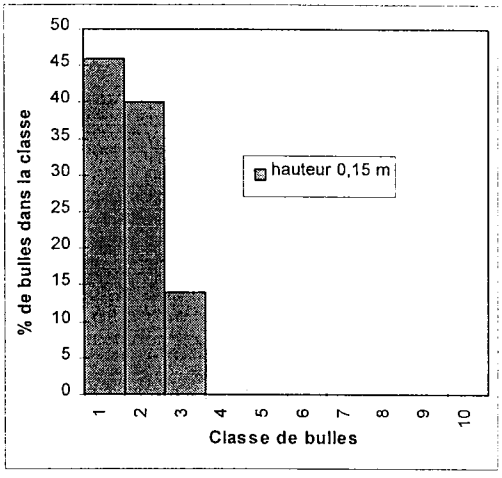
Comme les bulles lors de leur formation ont toutes le même volume, après coalescences, le volume des bulles est un multiple entier du volume initial des bulles. Ainsi, par analyse d'images, une distribution discrète des volumes de bulles est obtenue. Pour simplifier les notations, les volumes de bulles sont répartis en différentes classes :

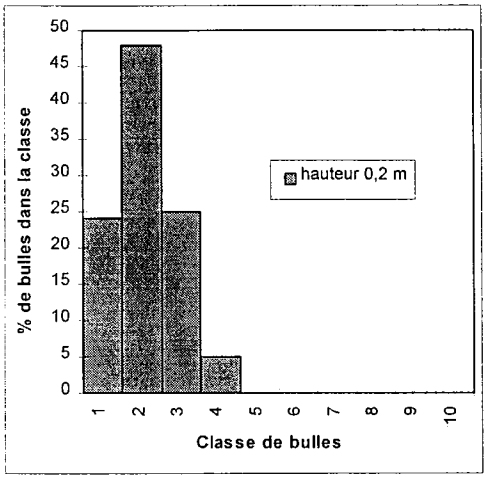
La classe 1 désigne des bulles qui n'ont jamais coalescé et dont le volume est de $116\text{x}10^{-9}$ m^3 (volume des bulles formées à l'orifice).

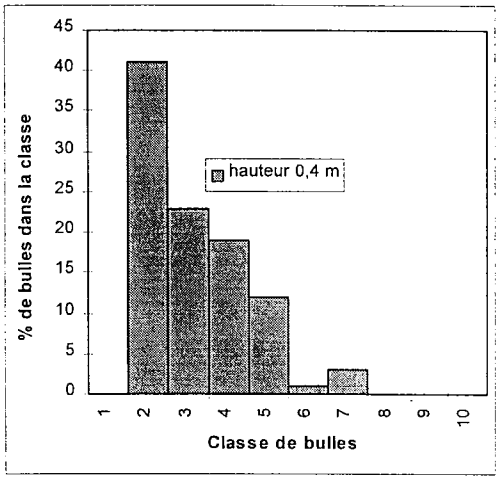
La classe 2 désigne des bulles qui résultent de la coalescence de deux bulles de classe 1. Leur volume est de $2\text{x}116\text{x}10^{-9}$ m^3.

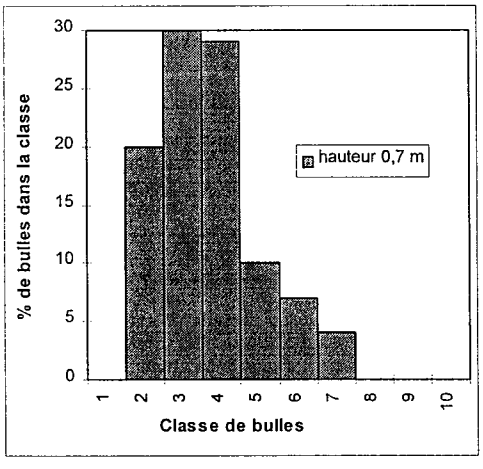
La classe 3 désigne des bulles qui après deux coalescences ont un volume de $3\text{x}116\text{x}10^{-9}$ m^3 et ainsi de suite.

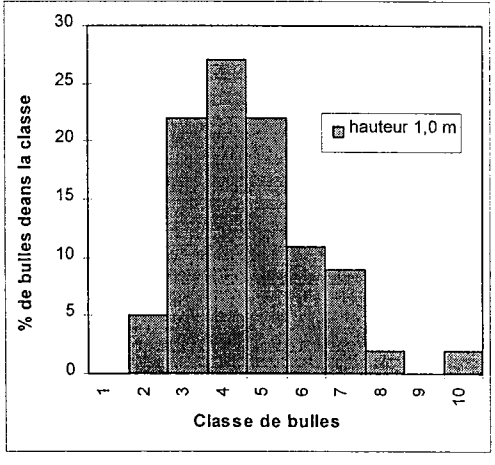

% de bulles dans la classe
Classe de bulles
hauteur 0,03 m


% de bulles dans la classe
Classe de bulles
hauteur 0,15 m


% de bulles dans la classe
Classe de bulles
hauteur 0,2 m


% de bulles dans la classe
Classe de bulles
hauteur 0,4 m


% de bulles dans la classe
Classe de bulles
hauteur 0,7 m


% de bulles deans la classe
Classe de bulles
hauteur 1,0 m

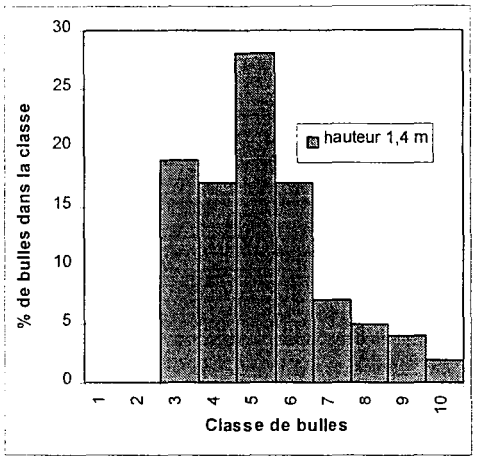


Figure V.5 : Evolution de la distribution de taille des bulles avec la distance à l'orifice dans une solution de PAAm 0,75% et pour un débit de 0,2x10^{-6} m^3/s

Globalement, par suite de coalescences, la distribution des volumes des bulles se déplace vers de plus grands volumes. Mais, en même temps que des bulles de volume (ou classe) plus important apparaissent, les bulles de petit volume disparaissent progressivement. A 0,4 m de l'orifice, toutes les bulles ont coalescé au moins une fois. A 1,4 m de l'orifice, les bulles de classe 2 ont elles aussi disparu. Aussi, lorsqu'à une hauteur donnée, on compare le rapport entre les volumes des plus grosses bulles et les volumes des plus petites, on s'aperçoit que ce rapport augmente au départ avec la hauteur, puis stagne et même diminue. Tout se passe comme si le désordre du système augmentait rapidement avec les premières coalescences, puis, à partir d'une certaine hauteur, diminuait à nouveau comme le montre l'évolution de l'écart type relatif de la distribution des bulles (figure V.6).

Soit la distribution des volumes des bulles : il existe n_i bulles de volume V_i

Le nombre total de bulles est : $N = \sum_{i=1}^{n} n_i$

Le volume moyen des bulles est : $\overline{V} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{n} n_i V_i$

L'écart type σ est donné par : $\sigma^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{n} n_i \left(V_i - \overline{V}\right)^2$

L'écart type relatif (sans dimension) est alors : $\frac{\sigma}{\overline{V}}$

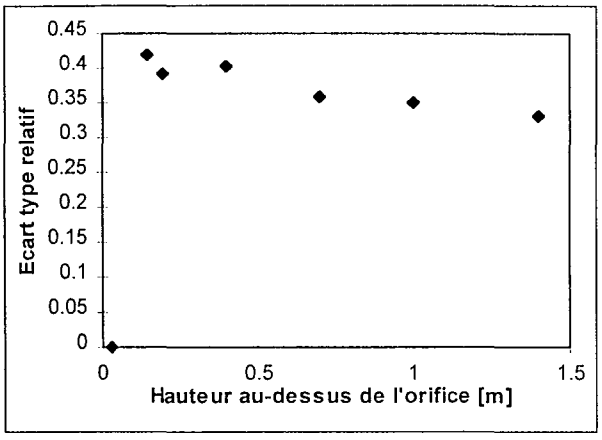


Figure V.6 : Ecart type relatif de la distribution de bulles

Ces observations confirment la présence d'une zone de forte coalescence suivie d'une zone de moindre coalescence où la complexité du système n'augmente plus.
Suite à l'étude de l'évolution de la distribution de taille de bulles, quelques éléments de l'étude du train de bulles par la physique du chaos sont présentés dans la partie suivante.

V.1.4 Comportement chaotique de la coalescence de bulles en lignes

Y. Mouline (1996) a réalisé une étude très complète sur le chaos dans une colonne à bulles. Il ne sera présenté ici que quelques diagrammes montrant le comportement chaotique d'un train de bulles dans une solution de PAAm 0,75%, pour un débit de $0{,}2 \times 10^{-6}$ m^3/s. Le signal temporel, le spectre de puissance (obtenu par transformée de Fourier du signal temporel), ainsi que le portrait des phases obtenu par la méthode des retards avec un délai de Δt, sont représentés sur les figures V.7, à des hauteurs de 0,03 - 0,2 - 0,4 et 1,0 m.

A une hauteur de 0,03 m, le train de bulles est périodique. Ceci se voit aussi bien sur le signal temporel que sur le spectre de puissance. En effet, le spectre de puissance ne comporte qu'un seul pic dont la fréquence est celle de la formation des bulles. A cette hauteur, les coalescences n'ont pas encore eu lieu, il n'existe que des bulles de classe 1, ce qui se traduit par la présence d'un unique anneau sur le portrait des phases.
A une hauteur de 0,2 m, le signal n'est plus périodique. Des pics plus grands et plus espacés apparaissent. Ils correspondent aux bulles qui ont déjà coalescé. Le spectre de puissance est continu, ce qui est typique d'un comportement chaotique. Sur le portrait des phases, on distingue facilement les trois anneaux qui correspondent aux trois classes de bulles les plus présentes. La quatrième classe de bulles qui ne compte que quelques bulles, se devine.

Pour des hauteurs encore plus importantes, les bulles sont plus grosses et moins nombreuses ce qui se traduit sur le signal temporel par des pics plus importants et plus espacés. Le spectre de puissance est

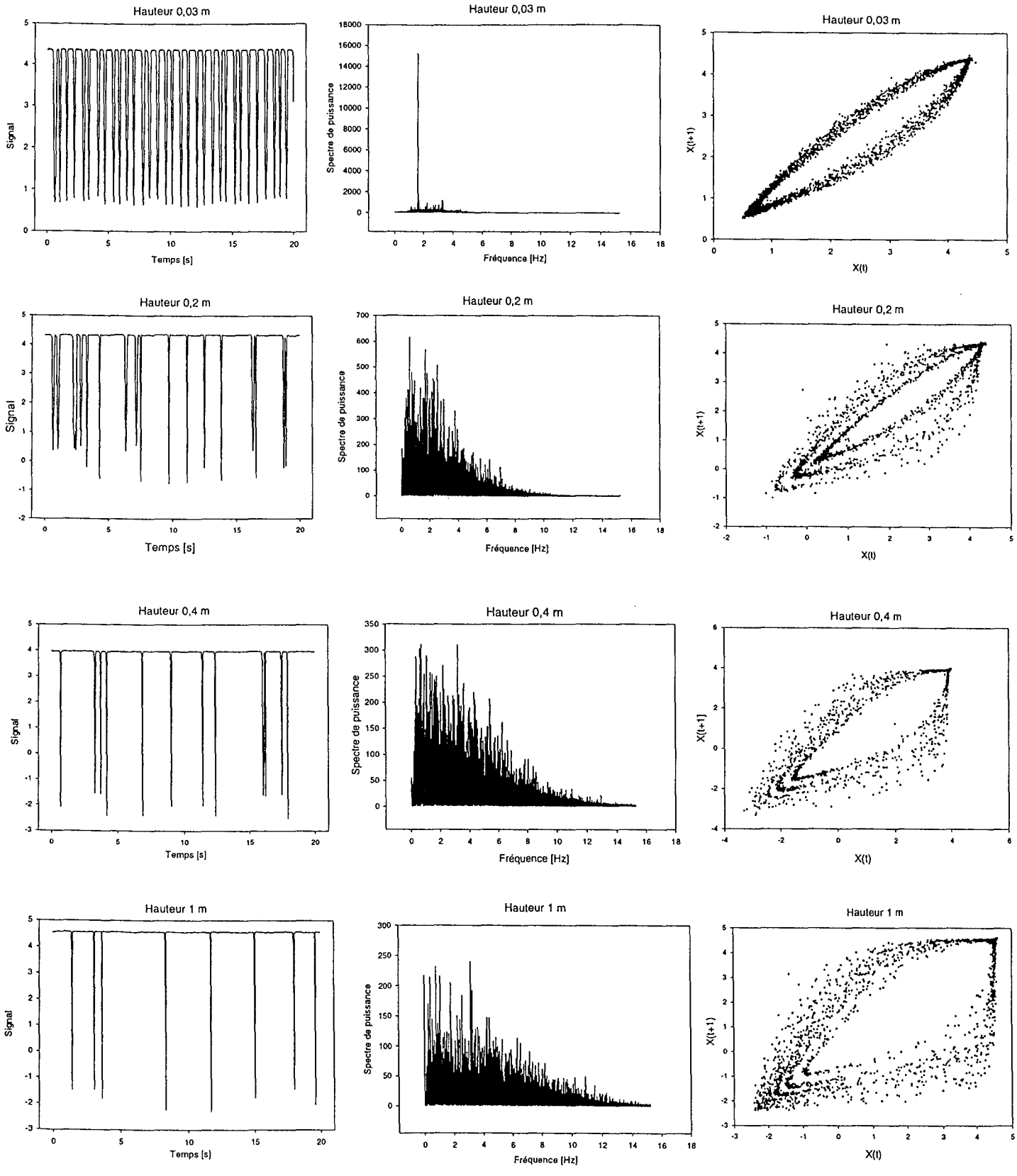


Figure V.7 : Evolution du signal temporel - du spectre de puissance et du portrait des phases avec la hauteur. Solution de PAAm 0,75%, débit de gaz $0,2x10^{-6}$ m^3/s

toujours continu. Sur le portrait des phases, on observe de nombreuses classes de bulles ainsi qu'un glissement progressif vers des classes de bulles élevées : simultanément apparition de nouvelles classes des bulles de valeurs élevées et disparition des classes les plus faibles.

V.1.5 Conclusion partielle

La dynamique d'un train de bulles a été étudiée par trois voies différentes : la donnée globale de l'évolution du nombre de bulles avec la hauteur, la distribution des volumes de bulles et une approche par la physique du chaos. Ces trois voies convergent pour différencier différentes zones dans l'évolution du train de bulles :

- une zone régulière où les coalescences n'ont pas lieu
- une zone où les coalescences sont nombreuses. Dans cette zone, le spectre de puissance devient brutalement continu et la complexité du système devient très importante (large distribution de taille des bulles)
- dans une dernière zone, l'évolution est plus lente et le système semble retrouver un certain équilibre.

Ces différentes zones sont visibles pour les deux solutions utilisées (PAAm 0,75 et 0,5%), bien que pour cette dernière, la zone d'évolution plus lente soit à peine atteinte en haut de la colonne.

Ces résultats sont concordants avec le calcul des exposants de Lyapunov effectué par Li et al. (1996). Leur exposant de Lyapunov augmente rapidement, culmine, puis décroît. Ces observations semblent confirmer qu'il existe un mécanisme d'équilibre qui induit le déterminisme du chaos.
La distinction en zones de l'évolution du train de bulles permet d'entrevoir une possible extrapolation pour des hauteurs de colonne encore plus importantes. Cette extrapolation est certainement plus fiable qu'une simple extrapolation linéaire.

V.2 Interactions entre trains de bulles

Il est rare qu'industriellement un seul orifice soit utilisé. Ainsi, pour connaître l'influence que pouvait avoir un train de bulles sur un autre, des expériences utilisant deux orifices fonctionnant avec le même débit de gaz, ont été effectuées.

V.2.1 Débit de 0,1 à $2x10^{-6}$ m^3/s

Dans une solution aqueuse de PAAm 0,75%, le nombre de bulles est mesuré dans différentes conditions :

- débits 0,1 - 0,2 - 0,5 - 1 et $2x10^{-6}$ m^3/s

- hauteur au-dessus de l'orifice : de 0,03 à 1,4 m
- distance entre les deux orifices : 0,0145 - 0,0205 - 0,0275 - 0,037 - 0,063 et 0,0735 m

Sur les figures V.8 et 9, l'évolution du nombre de bulles avec la hauteur est représentée pour les différentes distances entre orifices et pour les débits de 0,2 et $1x10^{-6}$ m^3/s respectivement.

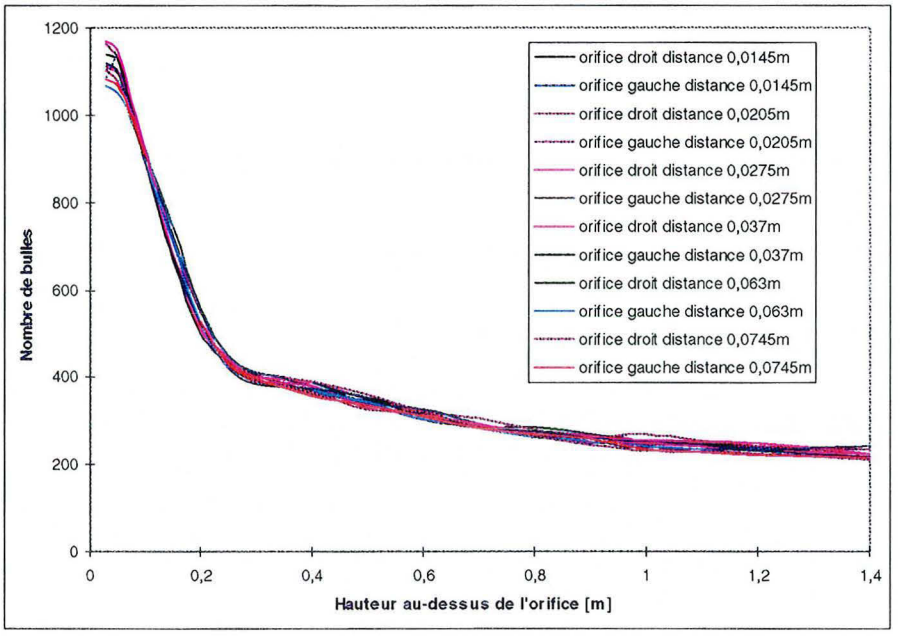


Figure V.8 : Evolution du nombre bulles avec la hauteur au-dessus l'orifice en faisant varier la distance entre les deux orifices. Débit de gaz de $0,2x10^{-6}$ m^3/s

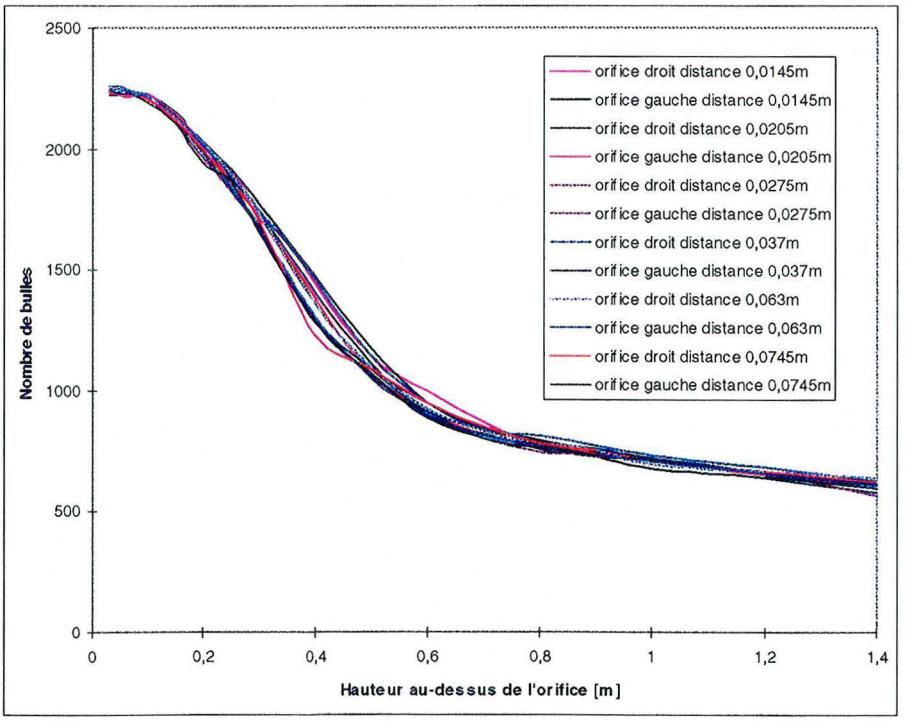


Figure V.9 : Evolution du nombre bulles avec la hauteur au-dessus l'orifice en faisant varier la distance entre les deux orifices. Débit de gaz de $1x10^{-6}$ m^3/s

Sur la gamme de débits étudiée, aucune coalescence latérale entre trains de bulles n'a lieu, même pour une distance entre les deux orifices de 0,0145m. Sur les figures V.8 et V.9, l'évolution du nombre de bulles avec la hauteur pour différentes distances entre orifices est représentée pour des débits de 0,2 et $1x10^{-6}$ m^3/s. On constate que pour ces débits, ainsi que pour tous les débits intermédiaires, les courbes donnant l'évolution du nombre de bulles avec la hauteur pour différentes distances entre orifices sont superposables, aux erreurs expérimentales près. La distance entre les deux orifices n'a donc apparemment aucune influence sur la coalescence en ligne même lorsque ces trains sont rapprochés, et ceci jusqu'à des débits relativement importants ($2x10^{-6}$ m^3/s).

Vue la durée des acquisitions et le nombre de paramètres balayés (hauteurs, débits, distances entre orifice), les expériences se sont effectuées sur plusieurs jours, voire plusieurs semaines. Nous avons vérifié et constaté que l'évolution du nombre de bulles avec la hauteur était reproductible dans le temps.

Lorsque les orifices sont proches, les deux trains de bulles connaissent un rapprochement réciproque à quelques centimètres au-dessus de l'orifice, suivi d'un éloignement progressif. En augmentant le débit, ce rapprochement entre les deux trains s'accentue sans toutefois mener à des coalescences entre trains.

V.2.2 Débit de $4x10^{-6}$ m^3/s

Pour un débit plus important que ceux étudiés jusqu'à présent, ($4x10^{-6}$ m^3/s, bulles de $6x10^{-7}$ m^3, fréquence de formation des bulles 6,6 Hz), lorsque la distance entre orifices est de 0,0145m, le rapprochement entre les deux trains est très important et mène parfois à quelques coalescences entre les deux trains. Mais le plus souvent, même si les bulles sont très proches, elles ne coalescent pas. Après ce point de rapprochement, les deux trains s'écartent progressivement et évoluent indépendamment comme le montre la figure V.10

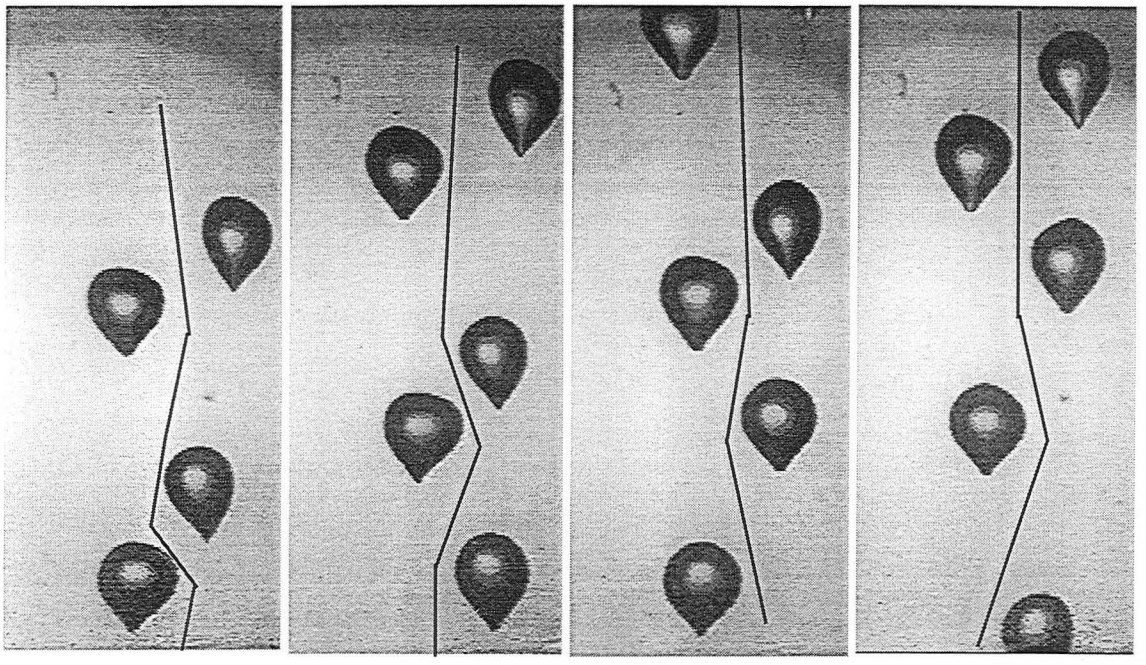


Figure V.10 évolution des deux trains de bulles lors de leur rapprochement maximum. Temps entre images 80 ms, débit $4x10^{-6}$ m^3/s, solution de PAAm 0,75%. Le trait noir délimite les deux trains

Dans tous les cas de figure, les coalescences en ligne sont favorisées par rapport aux coalescences entre trains. Les clichés du haut de la figure V.11 montrent les différentes étapes d'une coalescence latérale. Les clichés du bas de cette figure montrent que les coalescence au sein d'un même train sont très favorisées comparées aux coalescences entre trains. La divergence des trains de bulles est visualisée sur la figure V.12.

V.3 Interprétation des résultats

Coalescence dans un train de bulles

Une augmentation de la concentration en polymère (solutions de 0,5 et 0,75% de PAAm), donc une augmentation conjointe de la viscosité et de l'élasticité de la solution accroît le nombre de coalescences.

Sur les expériences effectuées, une augmentation du débit augmente le nombre de coalescences pour la solution de 0,5% de PAAm, et diminue le nombre de coalescences pour une solution de 0,75%. Il semblerait qu'il existe un débit critique en dessous duquel la coalescence augmente avec le débit et au-delà duquel une augmentation du débit défavorise la coalescence. Ce débit critique, (ou débit optimal pour la coalescence), diminuerait avec la concentration des solutions. L'existence de ce débit critique résulterait probablement d'un compromis entre des effets dynamiques opposés. En l'occurrence, il pourrait s'agir de l'élasticité qui favorise la coalescence, de la viscosité qui a tendance à freiner la coalescence, et de la poussée d'Archimède qui est proportionnelle au volume des bulles et influe sur la vitesse des bulles.

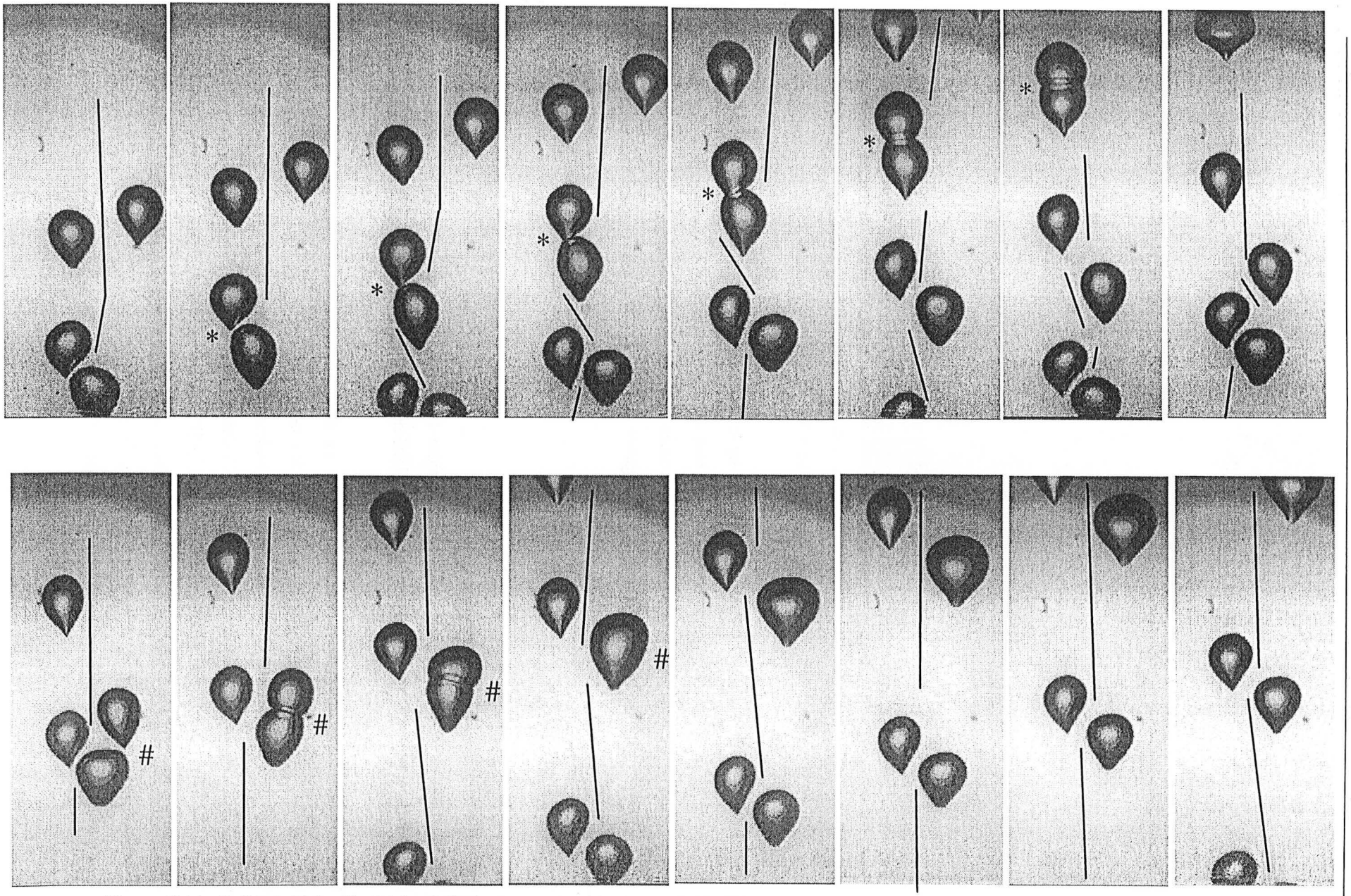


Figure V.11 : Débit $4x10^{-6}$ m^3/s, PAAm 0,75%, écartement des buses $1,45x10^{-2}$ m, temps entre images 0,04s. Sur la première série d'images on observe une coalesence latérale entre deux bulles venant de deux trains différents (*). On voit que la coalescence se fait par la queue de la bulle. Par la suite, on voit que les coalescences intra-train sont favorisées par rapport aux coalescence inter-trains (#).

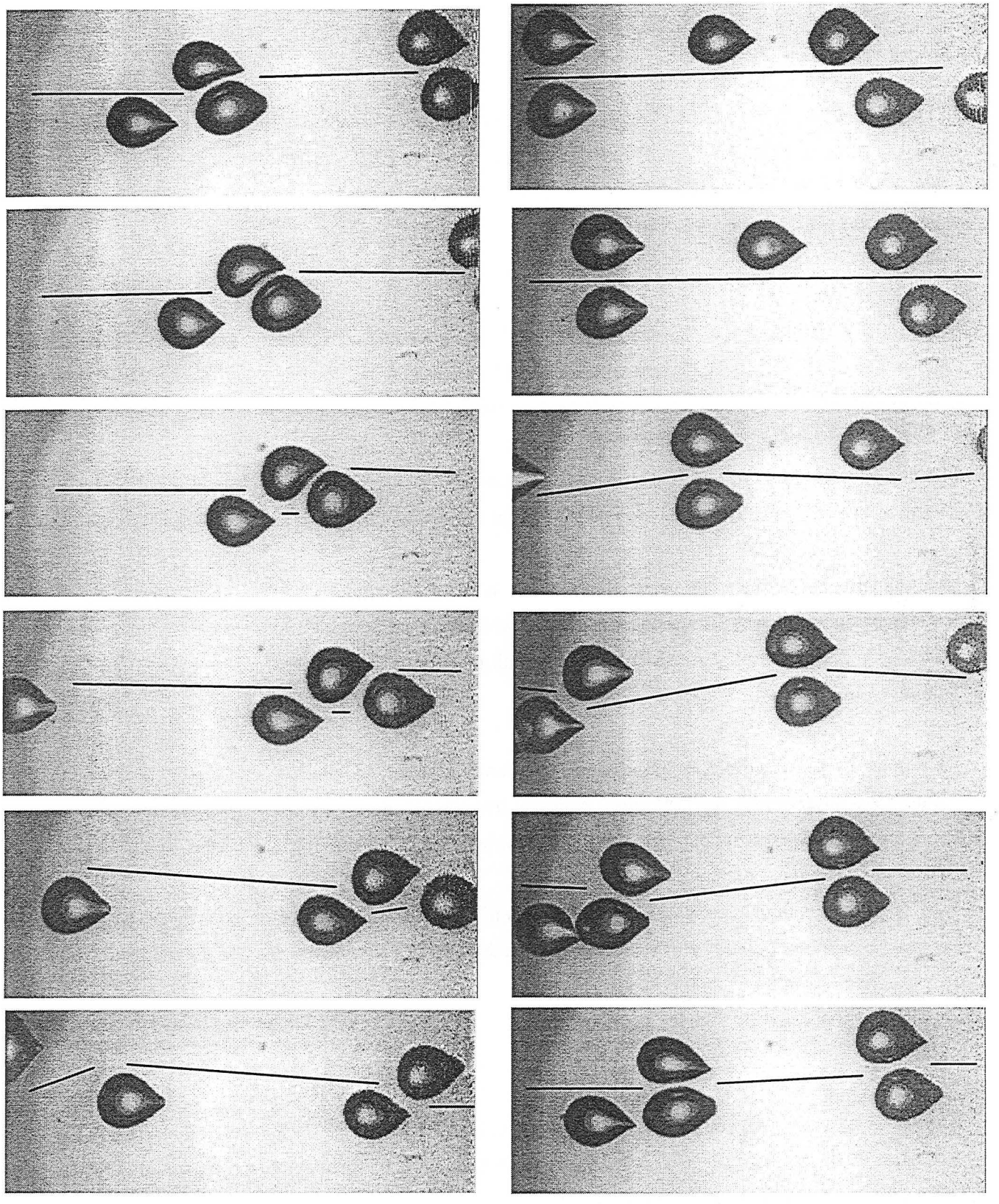


Figure V.12 : Débit $4x10^{-6}$ m^3/s, écartement des buses $1,45x10^{-2}$ m, temps entre images 0,04s, solution de PAAm 0,75%

Dans l'évolution du nombre de bulles avec la distance à l'orifice, trois zones peuvent être distinguées. Cette distinction de trois zones se retrouve dans toutes les expériences effectuées, et semblerait pouvoir être généralisée à d'autres fluides viscoélastiques.

Dans la colonne, les bulles se rejoignent, accélèrent et coalescent. Il est donc difficile de définir une vitesse ascensionnelle des bulles. Avant les premières coalescences, le nombre de Reynolds ne dépasse pas Re = 9 pour la solution de PAAm 0,5% et Re = 6 pour la solution de PAAm 0,75%. Pour ces valeurs du nombre de Reynolds, l'écoulement est encore laminaire, ce qui prouve que le phénomène de coalescence ne s'explique pas par une turbulence dans la traînée.

Interactions entre trains

Pour des débits inférieurs ou égaux à $2x10^{-6}$ m^3/s, aucune coalescence entre trains n'a été observée même lorsque les orifices ne sont éloignés que de 0,0145 m. De plus, la présence d'un deuxième train ne semble nullement influencer la coalescence en ligne. Les deux trains évoluent indépendamment l'un de l'autre.

Pour un débit de $4x10^{-6}$ m^3/s, quelques coalescences entre trains ont lieu. Mais à tous moments, les coalescences au sein d'un même train de bulles sont favorisées par rapport aux coalescences entre trains.

Ces expériences permettent de conclure que, dans le cas des solutions viscoélastiques, lorsque la colonne à bulles comporte plusieurs orifices, celle-ci ressemble à une addition de trains de bulles qui se comportent comme s'ils étaient isolés. Ainsi, la colonne devrait pouvoir se modéliser par une juxtaposition de trains de bulles isolés.

Comparaison interactions en ligne/interactions entre trains

Suite à ces observations, deux questions se posent très clairement :

- pourquoi les interactions en lignes dans un train sont-elles tellement plus importantes que les interactions entre deux trains ?
- la proximité géométrique de deux bulles n'est pas un critère suffisant pour que la coalescence ait lieu. Y aurait-il des positions relatives des deux bulles plus favorables que d'autres pour qu'il y ait coalescence ?

Des hypothèses explicatives peuvent être avancées :

Lors d'un essai, où l'on voulait voir comment évoluait un front coloré situé au niveau du train de bulles, une seringue avait été introduite par le coté, jusqu'au train de bulles. En sortant la seringue, le train de bulles se mit à dévier et à emprunter le chemin par lequel la seringue était passé comme représenté sur la figure V.13.

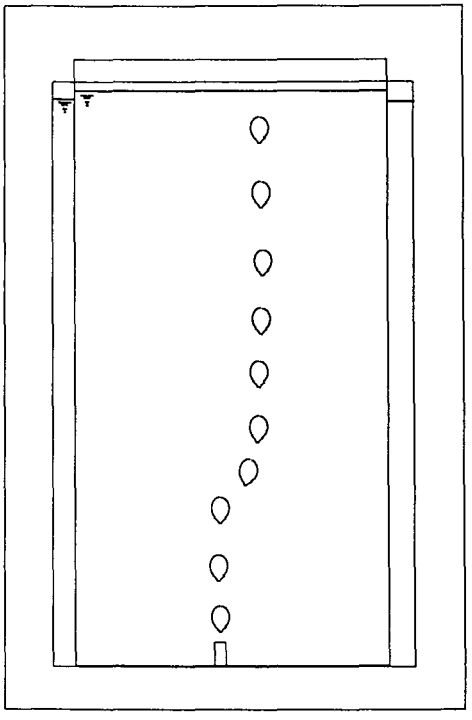


Figure V.13 : Déviation du train de bulle dans une solution de PAAm 0,5% suite à l'introduction d'une seringue par le coté

Cette déviation sur le coté, loin de s'amortir rapidement, fut observée pendant 10 à 15 min.

Cette observation met en évidence l'existence d'un chemin préférentiel qu'emprunte le train de bulles. Ce chemin avec sa déviation est emprunté pendant un intervalle de temps long, malgré la poussée d'Archimède qui devrait ramener ce mouvement à un mouvement uniquement vertical.

Ce chemin préférentiel apparaît comme un « corridor » de moindre viscosité. Cette moindre viscosité a, à notre avis, pour origine une rhéofluidification du fluide due à la permanence du mouvement après le passage de la bulle. La permanence du mouvement est bien sûr due au caractère élastique du fluide qui entraîne une lente relaxation des contraintes comme évoqué précédemment.

L'existence d'un chemin préférentiel au sein du fluide, chemin créé et entretenu par le passage des bulles expliquerait :

- la divergence des deux trains de bulles
- l'importance beaucoup plus grande des interactions dans un même train comparé aux interactions entre trains,
- la non influence d'un deuxième train sur la coalescence au sein d'un train, comme cela a été observé sur l'évolution du nombre de bulles.

Avec ces hypothèses, la coalescence dans un train apparaîtrait comme un processus interne au train.

Remarque : Les personnes qui estiment que le PAAm est thixotrope expliqueraient la présence de ces chemins de moindre viscosité par la thixotropie. Pour eux, le passage d'une bulle déstructurerait la solution de PAAm, et cette dernière n'aurait pas le temps de retrouver totalement sa structure d'état d'équilibre avant le passage de la bulle suivante.

Le mécanisme de coalescence est souvent étudié en statique : on approche deux bulles très lentement, puis, on observe la rupture du film. En dynamique, la déformabilité des bulles et l'hydrodynamique de la phase continue sont deux facteurs qui jouent un rôle important voire décisif dans le mécanisme de coalescence, comme observé par Manga et Stone (1993) dans du sirop de glucose. Ils ont observé qu'une petite bulle

située au départ au-dessus d'une grosse bulle la contournait, avant d'être aspirée par l'arrière de cette grosse bulle.

Dans nos observations, deux bulles situées côte à côte se déforment mais ne coalescent pas (voir figure V.11 et V.12). Par contre, lorsqu'une bulle se dirige vers une autre bulle en arrivant par la queue, la coalescence a de fortes chances d'avoir lieu. Il faut en fait qu'une bulle soit dans le sillage d'une autre, pour qu'il y ait coalescence. La direction du sillage est donnée par l'orientation de la queue. Ceci explique que dans un train de bulles, les coalescences en lignes sont très rapides et ont toujours lieu une fois que les bulles sont proches. La figure V.14, résume schématiquement les différentes zones plus ou moins propices à la coalescence.

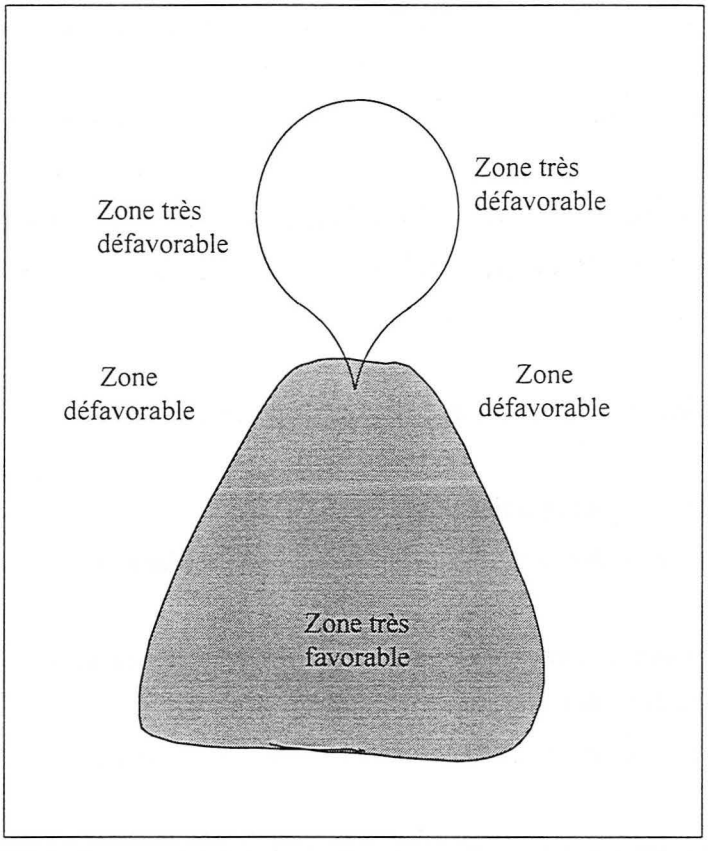


Figure V.14 : Distinction des zones dans lesquelles la présence d'une bulle a plus ou moins de chance de mener à une coalescence

V.4 Perspectives

Des perspectives comme suite à ce travail apparaissent dans plusieurs directions :

- étendre l'étude de l'évolution du nombre de bulles avec la hauteur pour différents débits et différentes solutions de PAAm ou d'autres solutions viscoélastiques,
- comparer les interactions entre deux trains de bulles dans des fluides de caractéristiques rhéologiques différentes comme un fluide newtonien visqueux, un fluide rhéofluidifiant non élastique ou encore des solutions de PAAm de différentes concentrations,
- étudier plus précisément la coalescence entre deux bulles en injectant simultanément deux bulles de même taille et d'un éloignement latérale et vertical variable,
- utiliser une caméra rapide pour mieux cerner la coalescence et voir très précisément comment se déforment les bulles lors de la dernière phase de l'approche et lors de la rupture du film. Cette caméra rapide pourrait aussi montrer expérimentalement si les bulles initialement immobiles connaissent comme les sphères, un passage par un « overshoot » de vitesse, suivit d'un « undershoot », puis d'oscillations amorties lorsque le fluide est viscoélastique (cf. étude bibliographique). Par observation à l'oeil nu, il nous semblait qu'après son détachement de l'orifice, la bulle connaissait un overshoot suivi d'un undershoot, puis d'un stabilisation de sa vitesse.

Chapitre VI : Champ de vitesses autour de bulles isolées

Introduction

Dans les chapitres précédents, l'étude de la colonne à bulles s'est faite à l'échelle du train de bulles, de façon globale. L'étude de la coalescence au sein d'un train s'est faite par exemple en mesurant à différentes hauteurs le nombre de bulles qui traversent pendant un intervalle de temps long. Dans cette série de trois chapitres, de nouveaux outils sont utilisés pour comprendre de façon plus précise ce qui se passe autour des bulles. Ces outils permettent de déterminer les champs de vitesses et de contraintes autour des bulles. La détermination du champ de vitesses permet de savoir si les différences observées sur le comportement du train de bulles et sur la forme de celles-ci, lors de l'utilisation de fluides de caractéristiques rhéologiques différentes, se traduisent par des changements dans le champ de vitesses autour des bulles et peuvent s'expliquer par le mouvement du fluide environnant.

En consultant la littérature, on se rend compte que la connaissance du champ de vitesses autour d'une bulle est encore très lacunaire. En fluide newtonien, pour de très grosses bulles isolées (nombres de Reynolds de 20 à 150), Bagha et Weber (1981) ont déterminé les lignes de courant par traçage à l'aide de micro-bulles d'oxygène. Les recirculations dans la traînée sont visualisées par cette technique.
Pour les fluides non-newtoniens viscoélastiques, les travaux d'Hassager (1979), ont établi qu'il existe une « traînée négative » derrière une bulle ou une sphère. Cette traînée négative a été mesurée par laser-doppler. Malgré différentes études, la connaissance de cette traînée négative reste encore très partielle. Du fait qu'une mesure par laser-doppler se fait ponctuellement, et qu'un balayage de toute une surface n'est pas possible, l'organisation spatiale de cette traînée négative ainsi que celle du champ de vitesses sont restées plus ou moins inconnues. Seules quelques images pas très nettes et très partielles du champ de vitesses ont été publiées par Coutanceau et Hajjam (1982).

De récents progrès dans la technique de visualisation des champs de vitesses comme la « Particles Image Velocimetry » (P.I.V.) permettent actuellement une détermination très précise de l'écoulement d'un fluide dans une section bidimensionnelle. Or l'ascension d'une bulle isolée ou dans un train, pour des fluides visqueux, dans la gamme des volumes de bulles étudiée, se fait sans oscillations de forme ni de trajectoire, de sorte que l'ascension d'une bulle est à symétrie axiale. L'axe de symétrie est vertical et passe par le centre de la bulle. De ce fait, tous les déplacements du fluide se font dans des plans verticaux passant par l'axe de symétrie de la bulle. La connaissance du champ de vitesses dans un plan passant par l'axe de symétrie des bulles permet donc une détermination complète du mouvement du fluide autour des bulles.

Fidèles à la démarche suivie jusqu'à présent, nous partirons de la situation la plus simple pour aller progressivement vers des situations plus complexes. Ainsi, dans le premier chapitre, nous étudierons des bulles isolées en ascension, de différentes tailles, dans différentes conditions expérimentales. Dans un deuxième chapitre, les interactions qui existent entre bulles seront vues par deux techniques différentes : la biréfringence d'écoulement qui donne le champ de contraintes et la P.I.V. qui donne le champ de vitesses. Enfin, un dernier chapitre, sera consacré au train de bulles dans son ensemble, en insistant sur deux points

importants : le déplacement du fluide induit par le train de bulles et la modification du champ de vitesses lors de l'approche de deux bulles en ligne menant à la coalescence.

VI.1 Montage expérimental de la P. I. V.

VI.1.1 Principe de la P.I.V.

Le principe de mesure de la P.I.V. est très simple : il s'agit de mesurer le déplacement de particules traçantes entre deux images successives. Connaissant leurs déplacements ainsi que l'intervalle de temps séparant les deux images successives, le champ de vitesses s'obtient immédiatement. La mise en œuvre est cependant moins facile qu'il n'y paraît : il faut reconnaître automatiquement les particules traçantes, il faut suivre ces particules, et calculer leurs déplacements respectifs sur une large gamme de vitesses. Il faut aussi effectuer ce calcul sur le plus grand nombre possible de particules pour obtenir le champ de vitesses le plus complet possible. Pour ce faire, les deux images successives sont divisées en petits carrés ou aires d'interrogations. Une corrélation croisée est effectuée entre les aires d'interrogation correspondantes des deux images successives.

VI.1.2 Description du montage

Le montage de la P.I.V. comprend 3 éléments distincts :

- deux lasers Yag pulsés. Ce sont des lasers de forte puissance, 5 kW, de largeur d'impulsion 5 à $10x10^{-9}$ s, émettant une lumière verte de longueur d'onde λ = 532 nm. Les deux faisceaux lasers traversent une lentille cylindrique qui les transforme en une nappe laser de forte puissance et de faible épaisseur. Les deux faisceaux sont focalisés sur la zone de mesure pour avoir une nappe laser très fine et une intensité constante autour des bulles. Chaque laser ne peut donner une impulsion que tout les 1/15 s.
- une caméra permet de prendre deux images successives très rapprochées (de 10^{-6} à $66,6x10^{-3}$ s). Le transfert des données se fait immédiatement sur un PC via une carte d'acquisition d'images. C'est une caméra CCD Kodak, de 768x484 pixels, en niveaux de gris de 256 niveaux (8 bytes).
- un « cross-corrélateur ». Il permet de calculer les corrélations croisées entre les deux images.

Le tout est synchronisé par un PC qui commande l'intervalle de temps entre les deux impulsions successives, la simultanéité de la prise d'images avec le maximum d'intensité de l'impulsion, l'acquisition de ces images, leur numérisation ainsi que le calcul du cross-corrélateur.

Pour éviter les réflexions de la nappe laser sur les bulles qui, d'une part détériorent la caméra CCD et d'autre part donnent une mauvaise qualité d'images, des particules fluorescentes sont utilisées. Ces particules fluorescentes ont leur maximum d'absorption pour la longueur d'onde proche de celle du laser $\lambda_{absorption}$ = 550 nm, et ont leur maximum d'émission à la longueur d'onde $\lambda_{émission}$ = 575 nm (masse molaire 1500kg/m^3, diamètre moyen 75 µm, Dantec Measurement Technology). Un filtre orange placé devant la caméra permet d'arrêter la lumière du laser, de sorte que seules les particules fluorescentes sont vues.

Pour ces expériences, nous avions l'intention d'utiliser les deux colonnes à bulles dans lesquelles le train de bulles a été étudié. Mais les solutions de PAAm sont légèrement blanchâtres et trop absorbantes pour que l'intensité lumineuse de la nappe laser au niveau des bulles soit suffisante. Le mauvais contraste sur les images ne rendait pas possible la cross-corrélation. Il a donc fallu construire une colonne en verre plus petite, de section carrée, sans double enveloppe et de dimension intérieure 0,06x0,06x0,5 m. La plupart des expériences de P.I.V. ont été réalisées dans cette colonne. Seule une série d'expériences a été effectuée dans une colonne plus grande, de section carré de 0,18 m de coté ; l'orifice a été placé à 0,03 – 0,05 et 0,09 m de la paroi pour vérifier si la présence des parois influait sur le champ de vitesses autour d'une bulle ou d'un train de bulles.
Les bulles isolées sont injectées au moyen du système micro contrôleur - électrovanne. La buse d'injection est en PVC et son orifice a un diamètre de 10^{-3} m.

La figure VI.1 montre le montage expérimental utilisé.

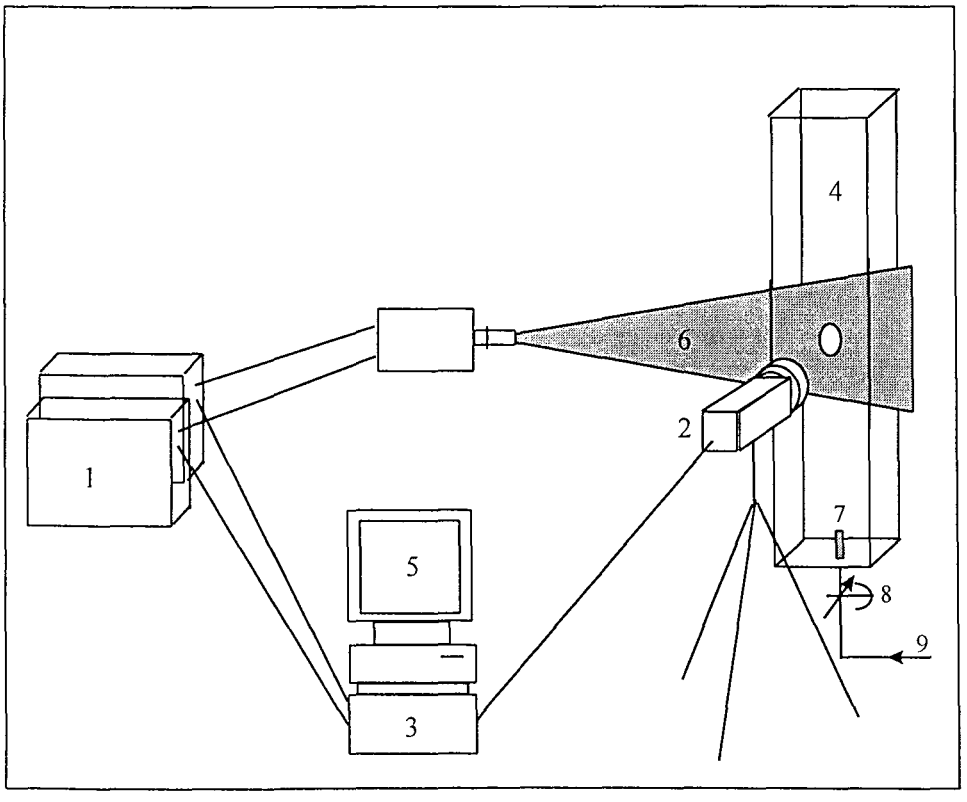


Figure VI.1 Montage expérimental

1 laser Yag
2 caméra
3 cross corrélateur
4 colonne
5 PC d'acquisition - contrôle - commande
6 nappe laser
7 orifice $\phi = 10^{-3}$ m
8 électrovanne
9 flux de gaz N_2

VI.1.3 Réglage des différents paramètres

En temps normal, le nombre de particules traçantes est ajusté au cours de l'expérience pour que deux ou trois particules soient contenues dans chaque aire d'interrogation. Ce fut le cas pour les solutions de glycérol et CMC. Par contre, dans le cas des solutions de PAAm, pour des questions de mélange, il n'est pas possible d'introduire les particules en cours d'expériences. Elles ont donc été introduites au départ, dans l'eau pure, avant dissolution du polymère.

La nappe laser est orientée verticalement et est centrée sur l'axe de symétrie vertical de la bulle ou du train de bulles. La lentille cylindrique est placée de telle sorte que la nappe laser ait la plus faible épaisseur possible dans la zone d'étude. De plus, il faut aussi placer le laser de telle sorte que la zone d'étude soit complètement éclairée. Mais pour avoir une puissance lumineuse maximale, le faisceau laser ne doit pas être plus large que cette zone d'étude.

La focalisation de la caméra se fait sur la nappe laser. L'ouverture du diaphragme est choisie pour avoir un optimum entre la luminosité des particules traçantes et leur netteté.

Le logiciel FlowManager 2.00, donne la possibilité de jouer encore sur trois paramètres :

- la taille des aires d'interrogation : 16x16, 32x32 ou 64x64 pixels. Dans chaque aire d'interrogation, un vecteur vitesse est calculé. Comme l'image est de 768x484 pixels, plus les aires d'interrogation sont petites, plus il y a de vecteurs. Dans quasiment toutes les expériences, la taille des aires d'interrogation choisie était de 16x16 pixels.
- le choix de « l'overlap » (ou recouvrement - chevauchement en français) : 0 – 25 – 50 ou 75 %. Par overlap de 25% par exemple, on entend l'extension de 25% de la zone de recherche du déplacement des particules traçantes par rapport aux aires d'interrogations. Un overlap de 50% a été choisi dans les expériences.
- le temps entre les deux images. Ce temps est ajusté de telle sorte que les particules les plus rapides ne se déplacent pas plus que de 25% de la taille des domaines de cross-corrélation.

Le logiciel FlowManager permet de visualiser le champ de vitesses obtenu, ainsi que d'effectuer un certain nombre d'opérations sur le champ de vitesses comme un filtrage, le traçage des lignes de courant ou le calcul de la vorticité du champ.

Dans notre étude, ce sont les fichiers bruts qui sont présentés, i.e. les données obtenues directement par la cross corrélation sans filtrage d'aucune sorte. Les vecteurs vitesses sont tous représentés sauf dans deux cas :

- lorsque la taille du premier pic de la cross-correlation (le pic à partir duquel le déplacement de la particule est calculé), ne dépasse pas 1,2 fois la taille du deuxième pic. Ces vecteurs vitesses correspondent presque toujours à de mauvais vecteurs.
- lorsque les vecteurs vitesses sont très grands (vecteurs correspondant à des déplacements de plus de 25 à 30% de la taille des aires d'interrogations). Ces vecteurs sont aussi très souvent des vecteurs aléatoires.

Ces deux cas de rejet des vecteurs sont recommandés par le constructeur.

VI.1.4 Plan des expériences effectuées et des paramètres étudiés

Pour pouvoir comparer l'influence de la rhéologie du fluide sur le champ de vitesses autour des bulles, comme précédemment, trois sortes de fluides sont utilisées dans cette série d'expériences :

- une solution newtonienne de glycérol 99,5%,
- une solution non-newtonienne rhéofluidifiante de CMC 2%,
- trois solutions non-newtoniennes rhéofluidifiantes et viscoélastiques de PAAm de concentration 0,25 - 0,5 et 0,75% dans de l'eau déminéralisées.

Dans ces expériences, les bulles sont injectées individuellement, à des périodes d'injection de 0,2 à 5 voire 15 s. Cela nous permet de voir si la période d'injection a une influence notable sur le champ de vitesses autour des bulles.

Pour chaque période d'injection, trois tailles de bulles ont été étudiées : de petites bulles de volume $100x10^{-9}$ m^3, des bulles moyennes de l'ordre de $200x10^{-9}$ m^3 et de grosses bulles ayant un volume de $1000x10^{-9}$ m^3 environ.

La plus grande partie des expériences a été effectuée dans la petite colonne carrée de 0,06 m de coté intérieur. Comme notre étude est centrée sur le champ autour des bulles en incluant la totalité ou tout au moins une grande partie de la traînée, une fenêtre d'observation d'environ 0,1x0,07 m est choisie pour toutes les expériences.

VI.2 Champ de vitesses autour d'une bulle isolée en ascension dans du glycérol

Le champ de vitesses autour d'une bulle isolée de $400x10^{-9}$ et $1100x10^{-9}$ m^3 respectivement est représenté sur les figures VI.2.a et b. Le profil de vitesses est mesuré en amont et en aval de la bulle, à différentes hauteurs (Z=30, Z=34,9 mm....), sur une section horizontale (sur toute la largeur de la colonne), comme montré sur la figure VI.2.a. Les composantes verticales de ces profils de vitesses sont représentées sur les figures VI.3.a et b et VI.4.a et b respectivement.

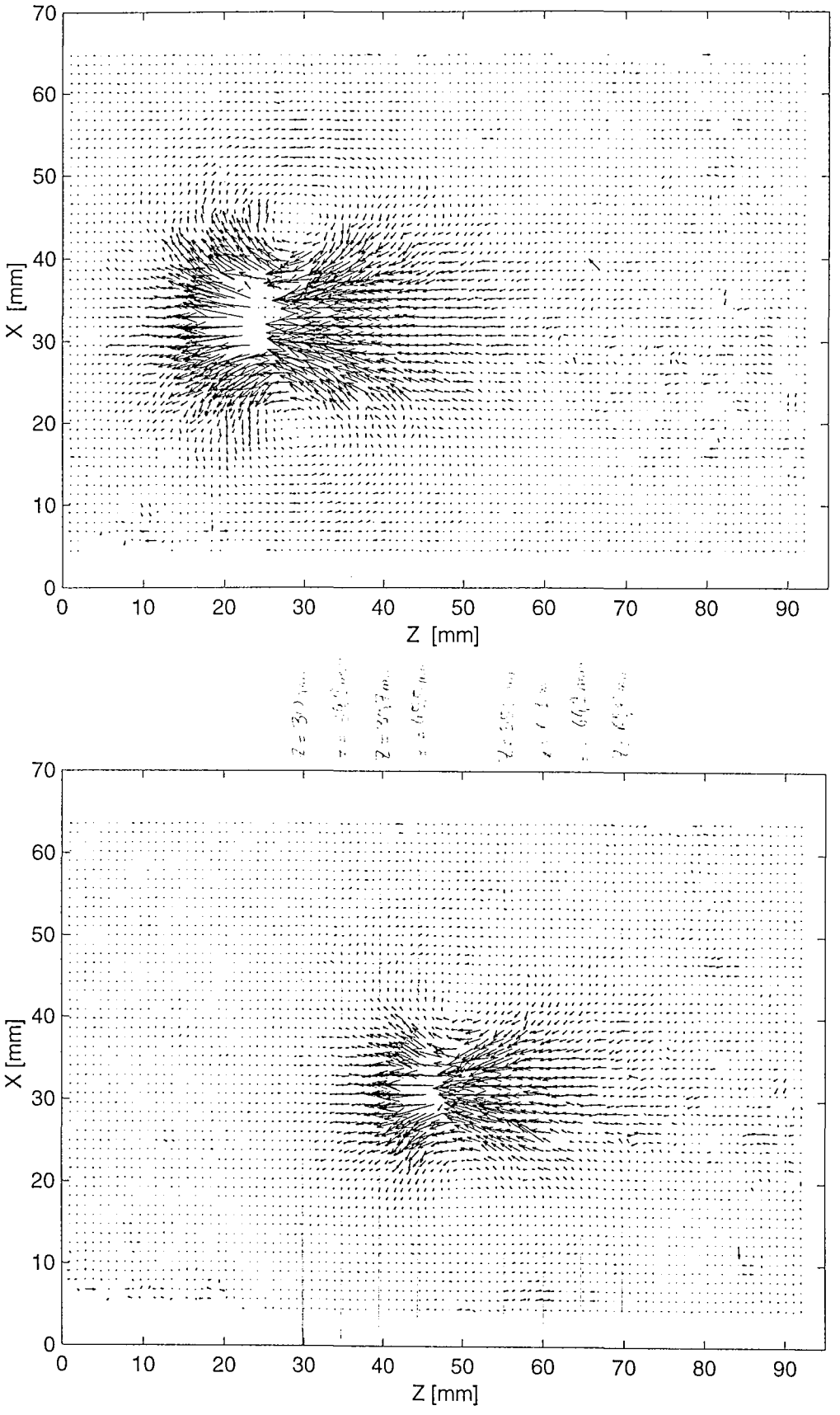


Figure VI.2.a et b : Ascension d'une bulle de 400 et 1100x10^{-9} m^3, dans du glycérol, vitesse ascensionnelle 0,063 et 0,11 m/s nombres de Reynolds 0,67 et 1,6 respectivement

Ces profils de vitesses sont obtenus à partir des images de P.I.V. sans effectuer de lissage ni de filtrage, ce qui explique la présence de quelques fluctuations dues à l'incertitude de mesure. Mais cela n'invalide ni la forme du profil de vitesses, ni la valeur de ces vitesses.

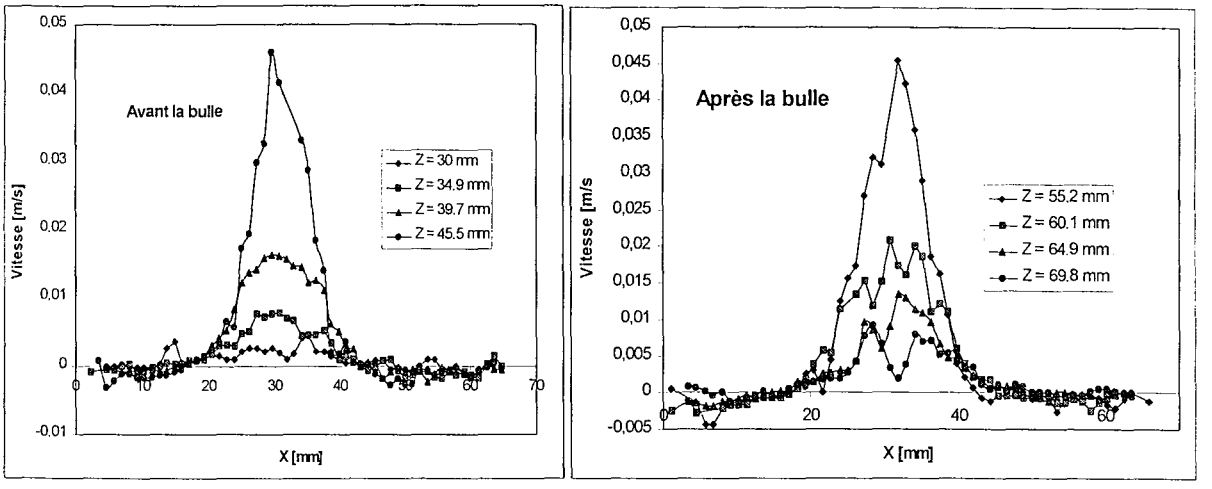


Figure VI.3.a et b : Profils de la composante verticale de la vitesse pour une bulle de 200x10^{-9} m^3 en ascension dans du glycérol 99,5% à différentes hauteurs, en amont et en aval de la bulle. Vitesse ascensionnelle 0,063 m/s, nombre de Reynolds Re = 0,67

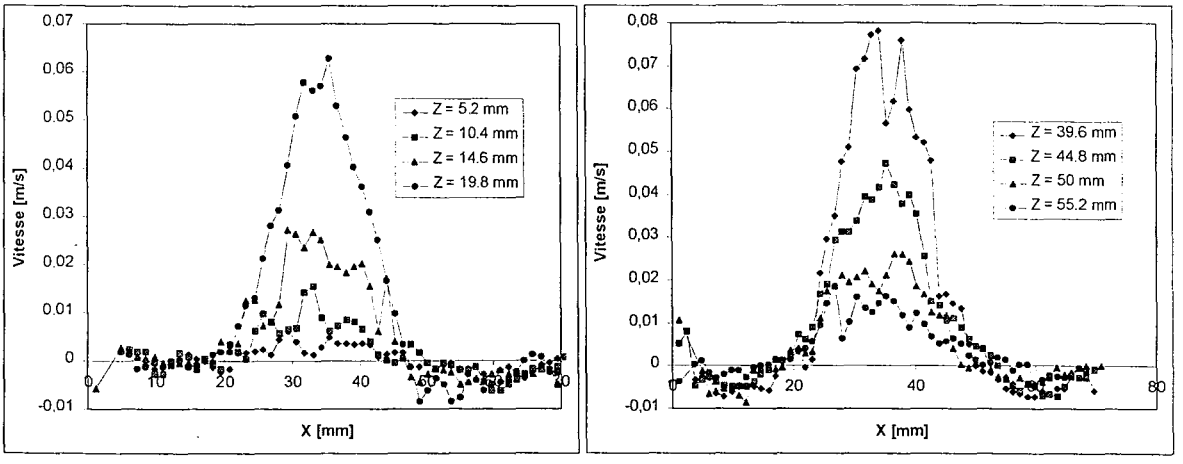


Figure VI.4.a et b : Profils de la composante verticale de la vitesse pour une bulle de 1100x10^{-9} m^3 en ascension dans du glycérol 99,5% à différentes hauteurs, en amont et en aval de la bulle. Vitesse ascensionnelle 0,11 m/s, Re = 1,6.

Comme dans le cas d'un écoulement autour d'une sphère en régime de Stokes, pour de petites bulles, tant qu'elles sont sphériques ou ellipsoïdales, le champ des vitesses possède (au sens des vecteurs vitesses près) un plan de symétrie horizontal passant par le centre de la bulle. Cette symétrie aussi bien qualitative que quantitative se voit sur les figures VI.2.a et VI.3.a et b.

Pour des bulles plus importantes, comme pour la bulle de 1100x10^{-9} m^3 représentée sur les figures VI.2.b et VI.4.a et b, cette symétrie est un peu perdue, surtout du fait de la présence d'une traînée plus longue à l'arrière de la bulle.

VI.3 Champ de vitesses autour d'une bulle isolée en ascension dans 2% CMC

Dans toute cette partie, ainsi que par la suite, les nombres de Reynolds donnés sont des nombres de Reynolds généralisés calculés avec les paramètres de la loi de puissance donnés dans le tableau III.6.

Le champ de vitesses autour de bulles de 200 et 900x10^{-9} m^3 est représenté sur les figures VI.5.a et b. La composante verticale du profil de vitesse est donnée à différentes hauteurs sur les figures VI.6.a et b et VI.7.a et b respectivement.

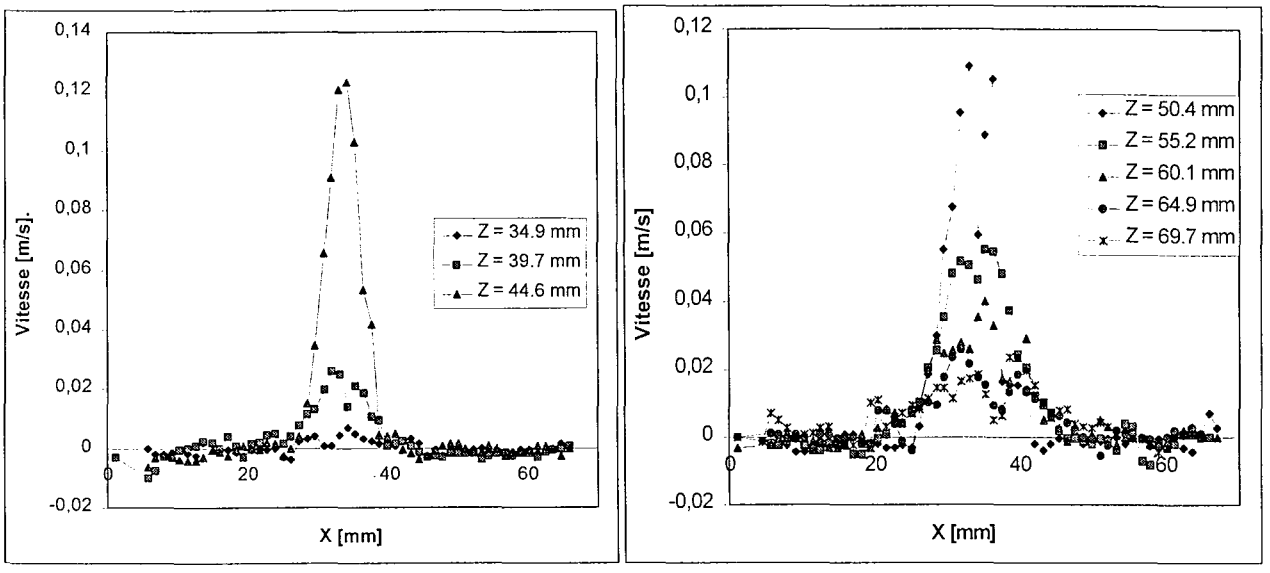


Figure VI.6.a et b : Profils de la composante verticale de la vitesse pour une bulle de 200x10^{-9} m^3 en ascension dans une solution de CMC 2% à différentes hauteurs en amont et en aval de la bulle

Vitesse ascensionnelle 0,13 m/s, Re = 2,31

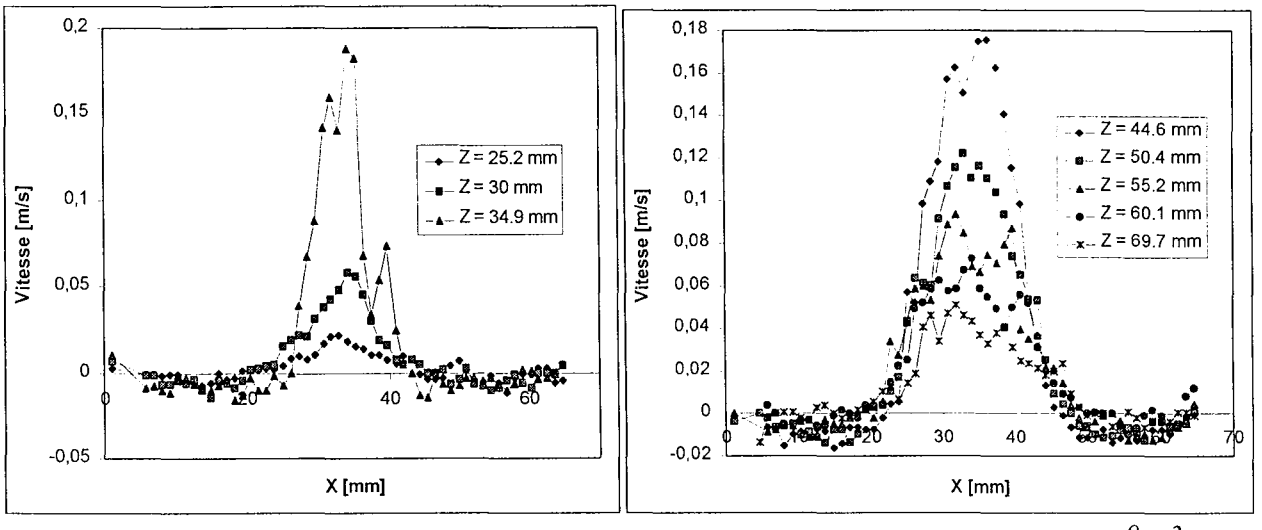


Figure VI.7.a et b Profils de la composante verticale de la vitesse pour une bulle de 900x10^{-9} m^3 en ascension une solution de CMC 2% à différentes hauteurs, en amont et en aval de la bulle.

Vitesse ascensionnelle 0,2 m/s, Re = 5,63

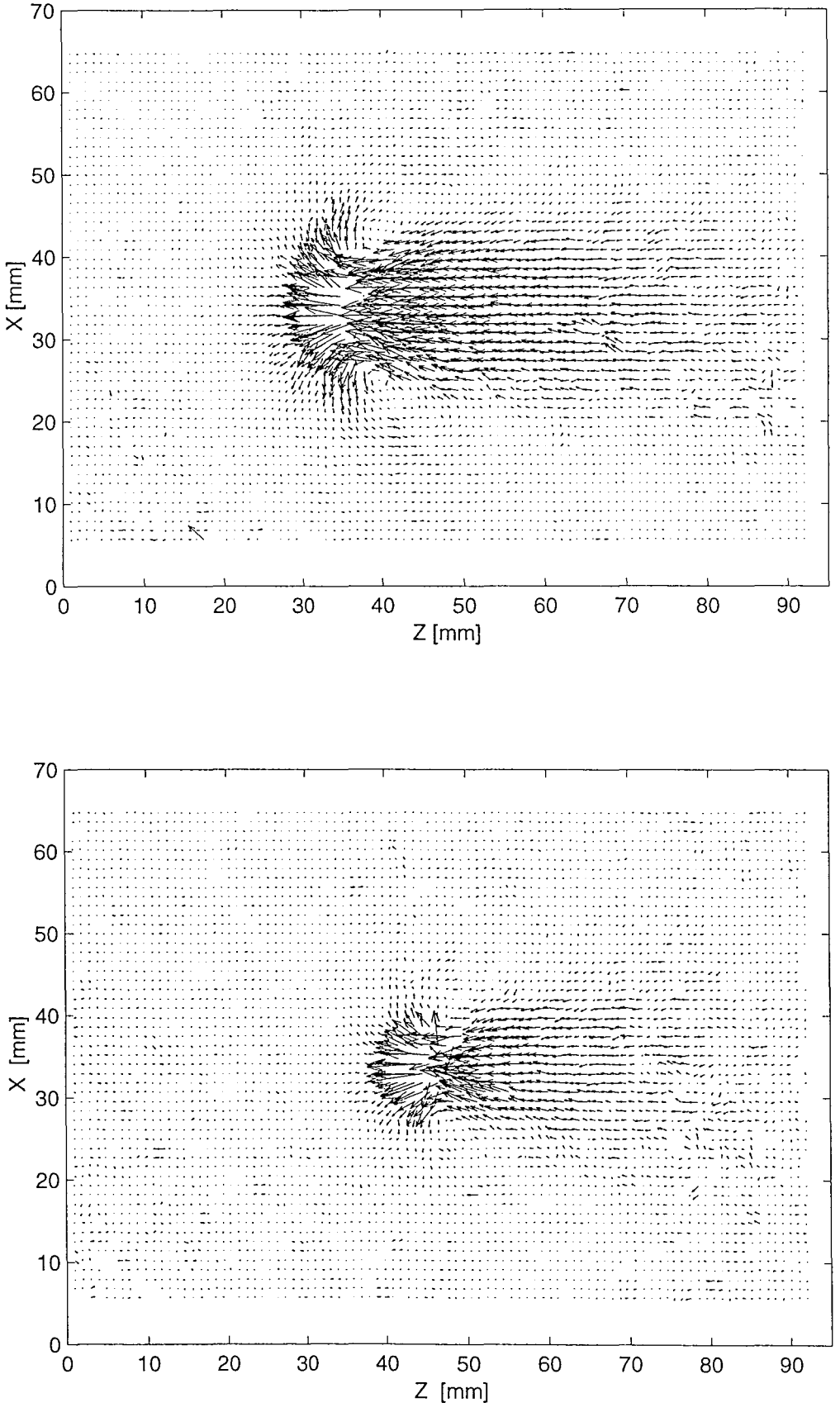


Figure VI.5.a et b : Ascension d'une bulle de 200 et 900x10^{-9} m^3, dans une solution de CMC 2%, vitesse ascensionnelle 0,13 et 0,2 m/s, nombres de Reynolds 2,31 et 5,63 respectivement

La solution de CMC 2% est rhéofluidifiante (mais moins que les solutions de PAAm), et très légèrement élastique. Ce fluide a somme toute un comportement rhéologique pas très éloigné d'un fluide newtonien visqueux, ce qui se traduit par un champ de vitesses pas très différent de celui obtenu pour la solution newtonienne de Glycérol. Néanmoins, le sillage à l'arrière de la bulle est plus long et plus important dans le cas de la solution de CMC 2% que dans le cas newtonien.

VI.4 Champ de vitesses autour d'une bulle isolée en ascension dans une solution de PAAm

Pour les trois solutions de PAAm de différentes concentrations, le champ de vitesses est donné pour chaque fluide et pour trois tailles de bulles différentes : une petite bulle de volume environ $100x10^{-9}$ m^3, une bulle de taille moyenne d'environ $200x10^{-9}$ m^3, et une grosse bulle d'environ $1000x10^{-9}$ m^3.

VI.4.1 Solution de PAAm 0,25%

Comme précédemment, les champs de vitesses autour des bulles et la composantes verticale des profils de vitesses à différentes hauteurs sont représentés pour différentes tailles de bulles.

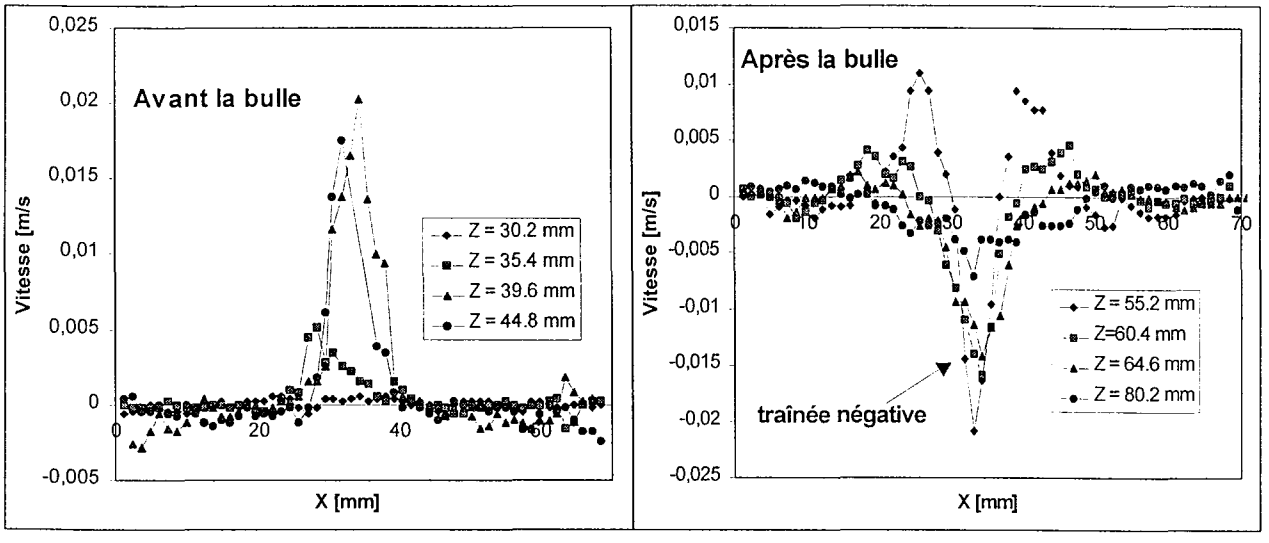


Figure VI.9.a et b : Profils de la composante verticale de la vitesse pour une bulle de $90x10^{-9}$ m^3 en ascension dans une solution de PAAm 0,25% à différentes hauteurs, en amont et en aval de la bulle. Vitesse ascensionnelle 0,17 m/s, Re = 8.2

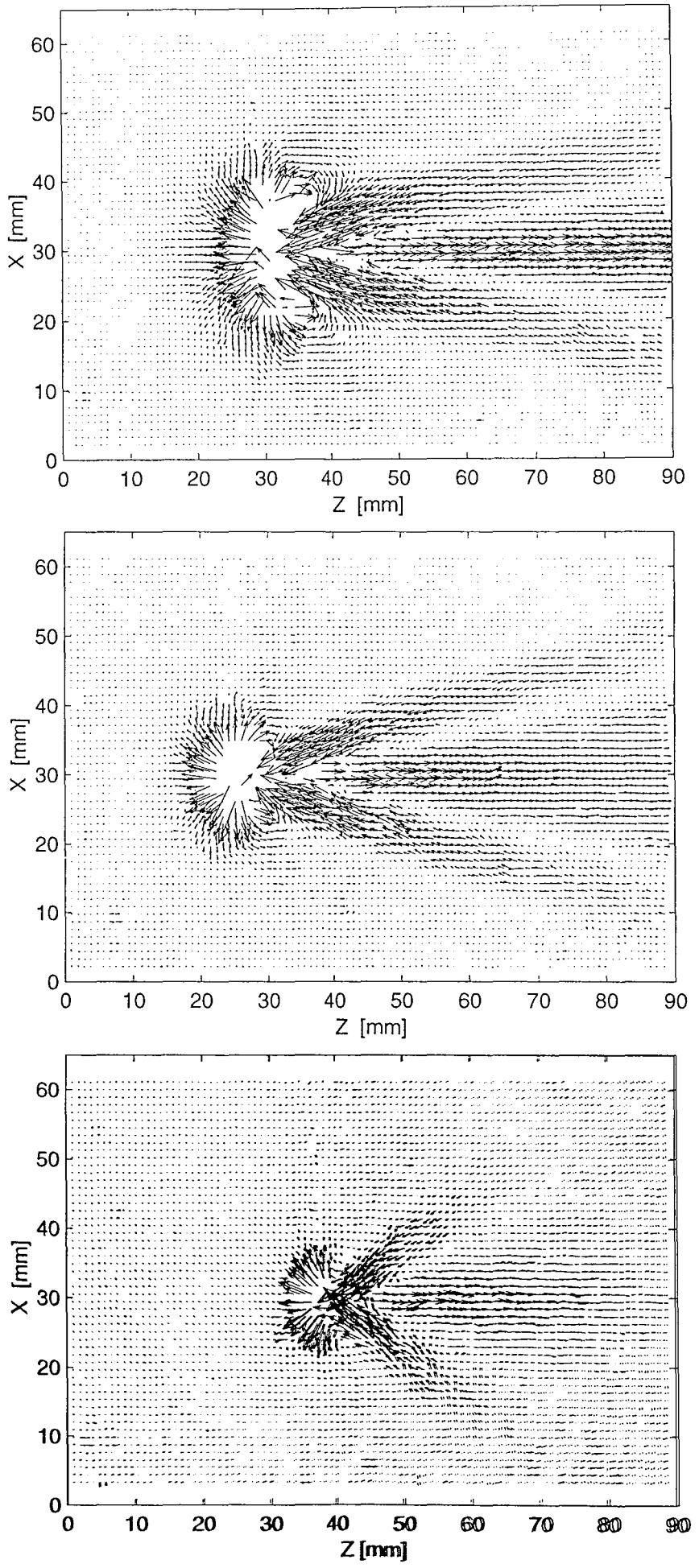


Figure VI.8.a, b et c : Ascension d'une bulle de 90 - 200 et 700x10^{-9} m^3, dans une solution de PAAm 0,25%, vitesse ascensionnelle 0,17 - 0,23 et 0,25 m/s, nombres de Reynolds 8,2 - 15 et 19,6 respectivement

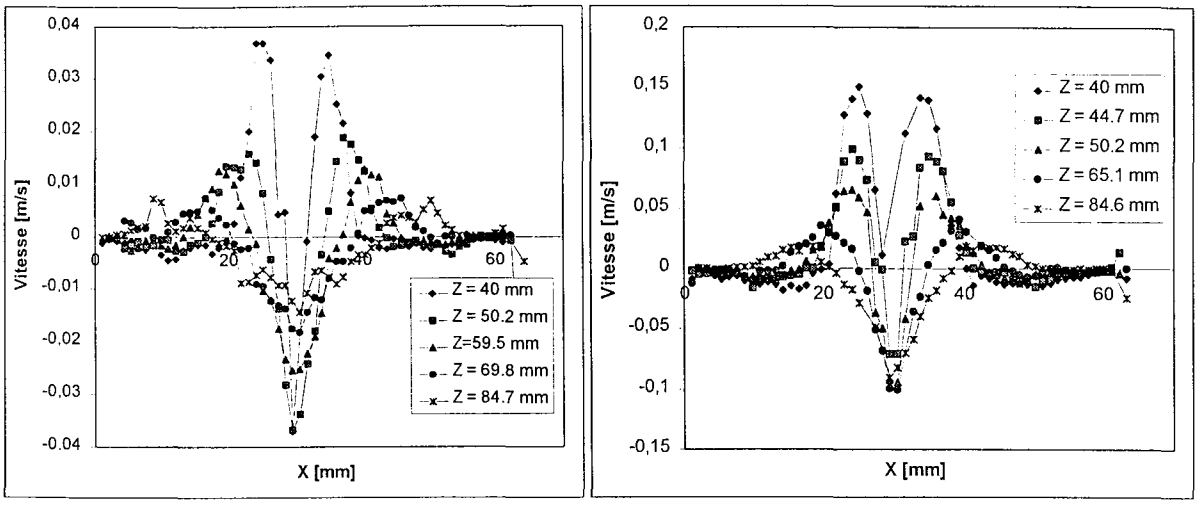


Figure VI.10 et VI.11: Profils de la composante verticale de la vitesse pour des bulles de 200 et 700x10^{-9} m^3, en ascension dans une solution de PAAm 0,25% à différentes hauteurs, en aval de la bulle. Vitesses ascensionnelles 0,23 et 0,25 m/s Re=15 et 19,6 respectivement.

Le sillage négatif apparaît nettement aussi bien sur les champs de vitesses que sur les profils de vitesses.

VI.4.2 Solution de PAAm 0,5%

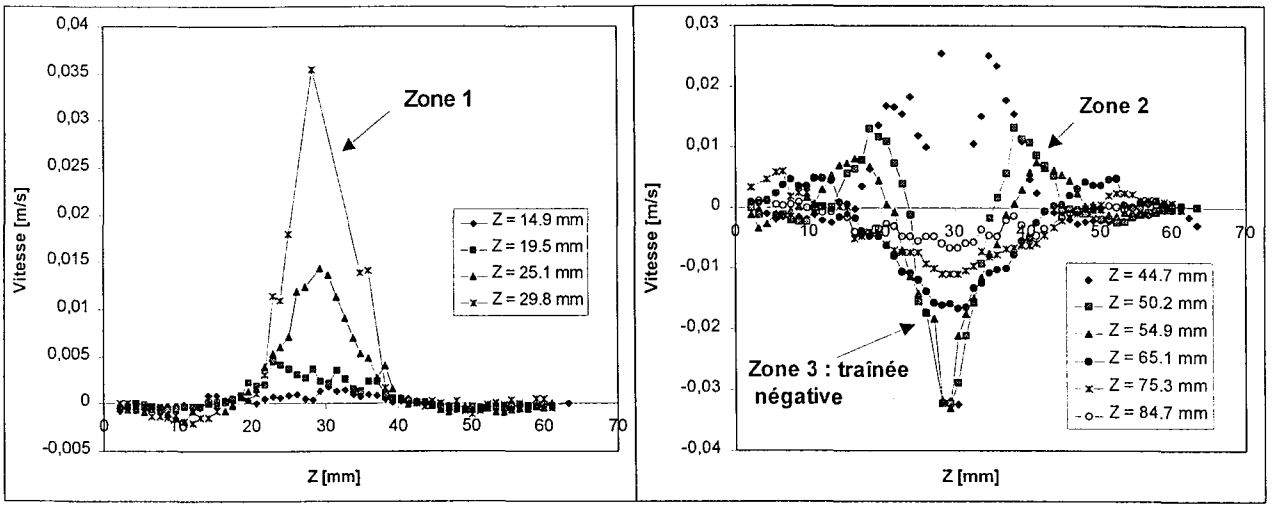


Figure VI.13.a et b : Profils de la composante verticale de la vitesse pour une bulle de 190x10^{-9} m^3 en ascension dans une solution de PAAm 0,5% à différentes hauteurs, en amont et en aval de la bulle. Vitesse ascensionnelle 0,17 m/s, Re = 4,38

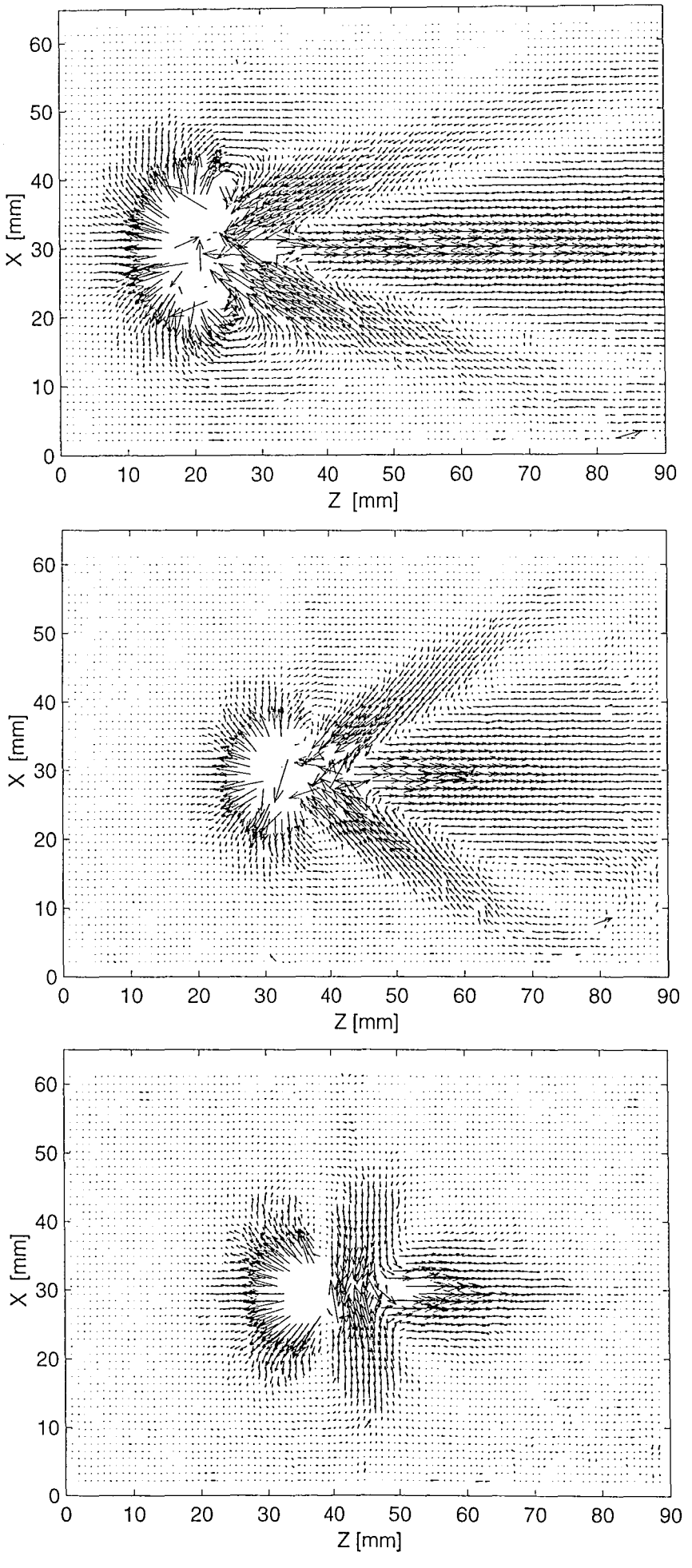


Figure VI.12.a, b et c : Ascension d'une bulle de 80 - 190 et 1000x10^{-9} m^3, dans une solution de PAAm 0,5%, vitesse ascensionnelle 0,09 - 0,17 et 0,25 m/s, nombres de Reynolds 1,4 - 4,38 et 9,5 respectivement

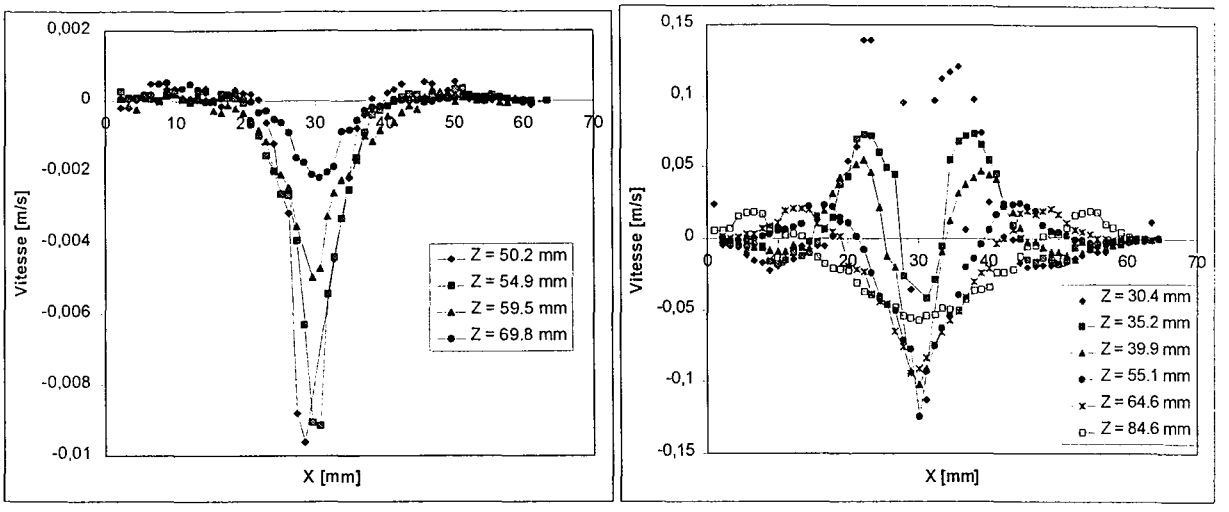


Figure VI.14 et VI.15 : Profils de la composante verticale de la vitesse pour des bulles de 80 et 1000x10^{-9} m^3 en ascension dans une solution de PAAm 0,5% à différentes hauteurs, en aval de la bulle. Vitesses ascensionnelles 0,09 et 0,25 m/s, Re= 1,4 et 9,5 respectivement.

VI.4.3 Solution de PAAm 0,75%

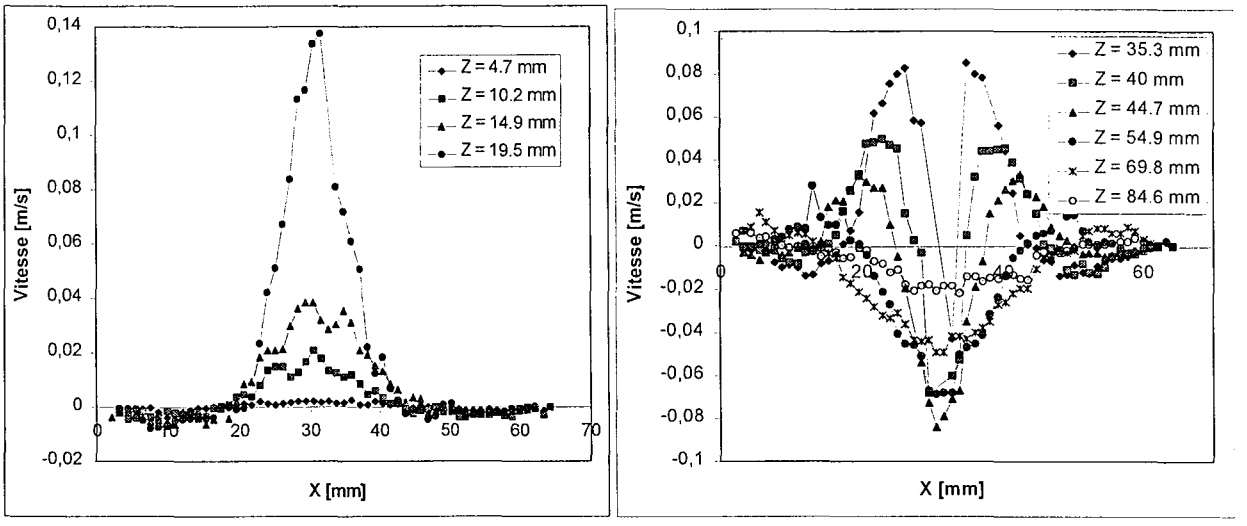


Figure VI.17 : Profils de la composante verticale de la vitesse pour une bulle de 1200x10^{-9} m^3 en ascension dans une solution de PAAm 0,75% à différentes hauteurs, en amont et en aval de la bulle respectivement. Vitesse ascensionnelle 0,25 m/s, Re = 4,7

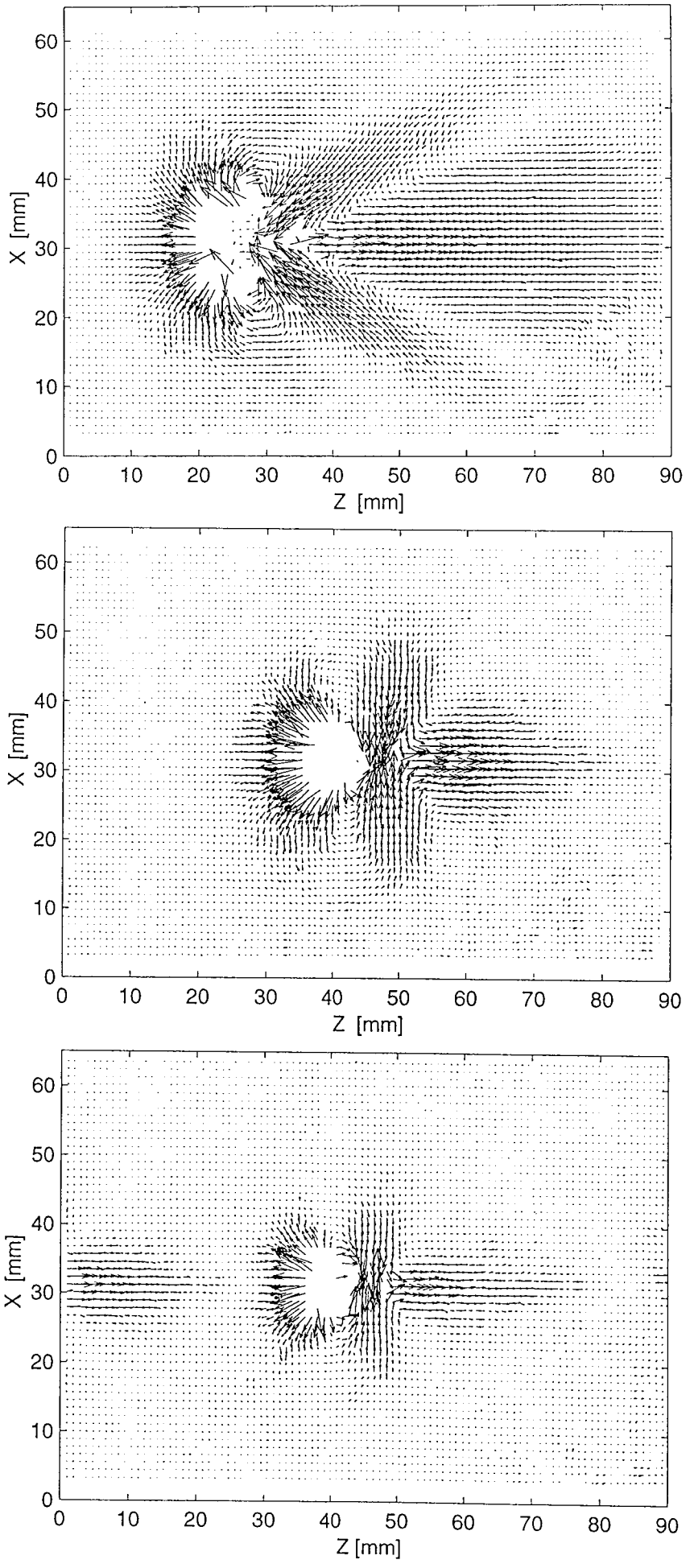


Figure VI.16.a, b et c : Ascension d'une bulle de 100 - 250 et 1200x10^{-9} m^3, dans une solution de PAAm 0,75%, vitesse ascensionnelle 0,02 - 0,1 et 0,25 m/s, nombres de Reynolds 0,047 - 0,84 et 4,7 respectivement

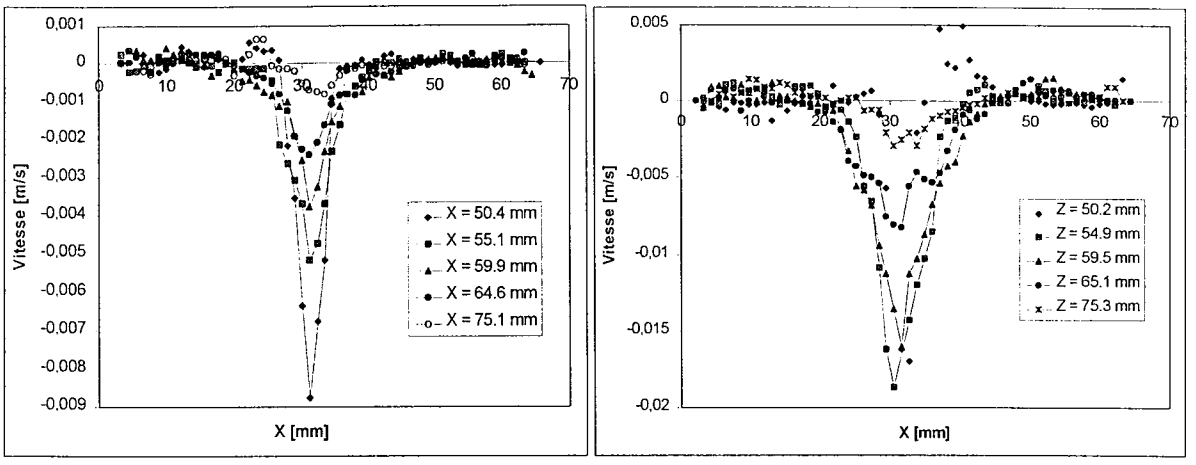


Figure VI.18 et VI.19 : Profils de la composante verticale de la vitesse pour des bulles de 100 et 250x10^{-9} m^3 en ascension dans une solution de PAAm 0,75% à différentes hauteurs en aval de la bulle. Vitesses ascensionnelles 0,02 et 0,1 m/s, Re= 0,047 et 0,836 respectivement.

Les caractéristiques des différents champs de vitesses et des conditions expérimentales données précédemment sont résumées dans le tableau VI.1.

Solution	N° figure	Volume	Vitesse	Reynolds
		x10^{-9} [m^3]	[m/s]	
Glycérol 99,5%	VI.2.a et VI.3	400	0,063	0,67
	VI.2.b et VI.4	1100	0,11	1,6
CMC 2%	VI.5.a et VI.6	200	0,13	2,31
	VI.5.b et VI.7	900	0,2	5,63
PAAm 0,25%	VI.8.a et VI.9	90	0,17	8,2
	VI.8.b et VI.10	200	0,23	15
	VI.8.c et VI.11	700	0,25	19,6
PAAm 0,5%	VI.12.a et VI.13	80	0,09	1,4
	VI.12.b et VI.14	190	0,17	4,38
	VI.12.c et VI.15	1000	0,25	9,5
PAAm 0,75%	VI.16.a et VI.17	100	0,02	0,047
	VI.16.b et VI.18	250	0,1	0,836
	VI.16.c et VI.19	1200	0,25	4,7

Tableau VI.1 : Conditions expérimentales et caractéristiques des différents champs de vitesses

VI.5 Interprétation des résultats

VI.5.1 Forme générique du champ de vitesses autour des bulles

Cas d'un fluide newtonien

Pour les fluides newtoniens, dans la gamme des nombres de Reynolds étudiée, le champ de vitesses prend la forme générique du schéma VI.20.

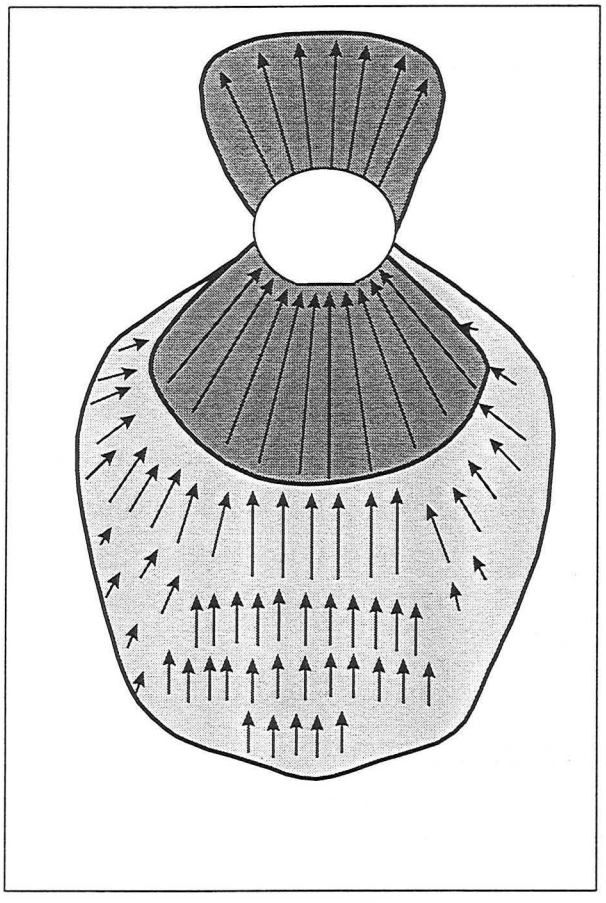


Figure VI.20 Forme générique du champ des vitesses autour d'une bulle en ascension dans un fluide newtonien

A très faible nombre de Reynolds (Re < 0,1), le champ des vitesses est symétrique en amont et en aval de la bulle (au sens des vecteurs près). Pour les bulles plus importantes, les profils de vitesses en amont et en aval de la bulle restent du même ordre de grandeur.

Par augmentation du nombre de Reynolds, le sillage devient plus important et plus long.

D'après les profils de vitesses représentés sur les figures VI.3 a et b et VI.4.a et b, la vitesse du fluide décroît progressivement de façon monotone avec l'éloignement de la bulle. De plus, la vitesse du fluide directement autour de la bulle est proche de la vitesse ascensionnelle de la bulle.

Cas d'un fluide rhéofluidifiant

Pour la solution de CMC 2%, le champ de vitesses ne diffère pas notablement du cas d'un fluide newtonien, mise à part l'existence d'un sillage plus long et plus important. Les vitesses maximales dans le profil de vitesses en amont et en aval de la bulle, sont comparables. A nouveau, la vitesse du fluide décroît de façon monotone avec l'éloignement de la bulle. Sur les profils de vitesses VI.6.a et b et VI.7.a et b, on constate qu'en amont de la bulle, la croissance de la vitesse du fluide est un peu plus brutale que pour la solution de glycérol, et que dans la traînée, la décroissance est plus lente que pour la solution de glycérol.

Comme dans le cas de la solution de glycérol, la vitesse du fluide directement autour de la bulle est proche de la vitesse ascensionnelle de la bulle.

Cas d'un fluide viscoélastique rhéofluidifiant

La forme générique du champ de vitesses autour d'une bulle en ascension dans un fluide viscoélastique est représentée sur la figure VI.21.

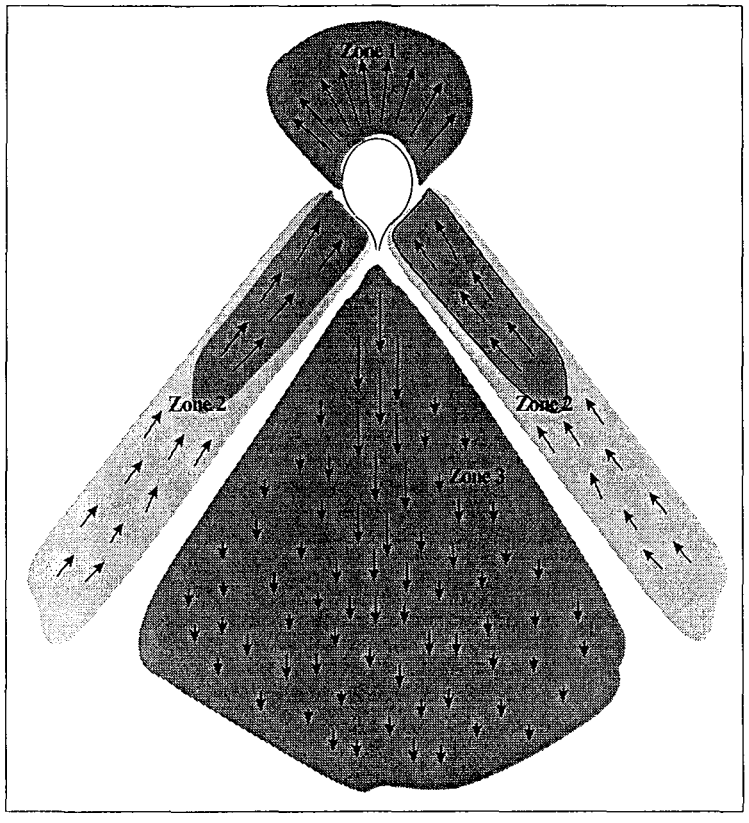


Figure VI.21 : Forme du champ de vitesses autour d'une bulle en ascension dans une solution de PAAm.

On distingue trois zones autour de la bulle. Ce découpage en trois zones existe dans tous les cas de figure étudiés, pour toutes les tailles de bulles et dans les trois solutions de PAAm 0,25 - 0,5 et 0,75%.

- la zone 1 est située en amont de la bulle. Dans cette zone, le fluide est repoussé vers l'avant. Cette zone est appelée parfois zone de compression. Dans cette zone, la forme du champ de vitesses ne diffère pas beaucoup de celle obtenue pour un fluide newtonien. Ceci se voit aussi bien sur les représentations graphiques du champ de vitesses que sur les profils de vitesses.

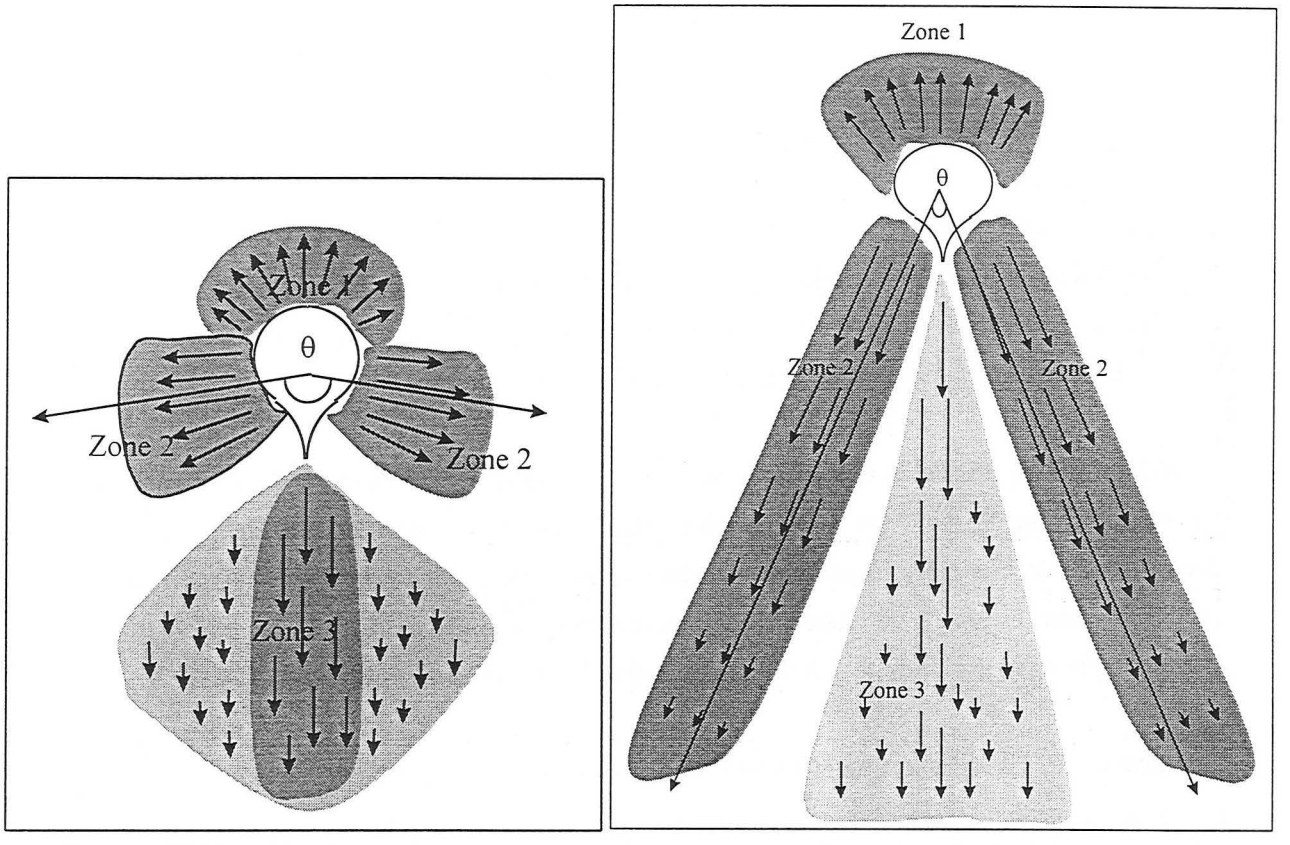
- la zone 2 a la forme d'un cône creux. Elle s'appuie sur les flancs de la bulle et s'étend de plus en plus largement à mesure que l'on s'en éloigne. Dans cette zone, les vecteurs vitesses sont dirigés vers la bulle.

- une dernière zone située à l'intérieur de la zone 2 correspond au sillage négatif. Cette zone 3 a la forme d'un cône de révolution parfait. Elle débute peu après la fin de la queue de la bulle. Dans cette zone, le fluide se déplace vers le bas, dans le sens opposé à l'ascension de la bulle.

Les différentes zones se retrouvent sur les profils de vitesses amont et en aval de la bulle. Ces profils de vitesses montrent que la vitesse dans le sillage négatif est du même ordre de grandeur que celle du fluide environnant (cf. figures VI.9.a et b, VI.13.a et b et VI.17.a et b). Ainsi, aux alentours de la bulle, la norme des vitesses dans le sillage négatif (zone 3) et dans la zone 2 sont équivalentes, et sont légèrement plus faibles que celles en amont de la bulle (zone 1).

Dans la littérature, l'existence d'un sillage négatif est souvent relatée, mais jamais l'existence de la deuxième zone pourtant très nette sur nos figures, n'a été mentionnée. La forme conique du sillage négatif n'est pas non plus mentionnée.

L'angle θ du cône creux correspondant à la zone 2 varie beaucoup avec la taille des bulles et la viscosité du fluide comme le montrent les figures VI.22 et VI.23 dans deux cas extrêmes. Plus les bulles sont grosses, plus l'angle du cône est petit. De même, pour une même taille de bulle, plus la concentration en polymère est importante, donc plus le niveau de viscosité et d'élasticité sont importants, plus l'angle du cône est grand.



Figures VI.22 et 23 : champ de vitesses respectivement autour d'une petite bulle dans une solution viscoélastique concentrée et autour d'une grosse bulle dans une solution viscoélastique moins concentrée

En fait, d'après les figures, les champs de vitesses peuvent être classés suivant le nombre de Reynolds indépendamment de la solution de PAAm utilisée et de la taille des bulles (voir similarité des champs de vitesses des figures VI.12.b et VI.16.c, $Re \approx 4,5$, ou VI.12.a et VI.16.b $Re \approx 0,1$). L'angle θ du cône creux de la zone 2, qui d'ailleurs est aussi l'angle du cône que forme le sillage négatif (sauf lorsque le nombre de Reynolds est inférieur à 2), est inversement proportionnelle au nombre de Reynolds. Ainsi, le nombre de Reynolds semble être un critère tout à fait adapté pour caractériser la forme du sillage derrière une bulle, même pour un fluide viscoélastique.

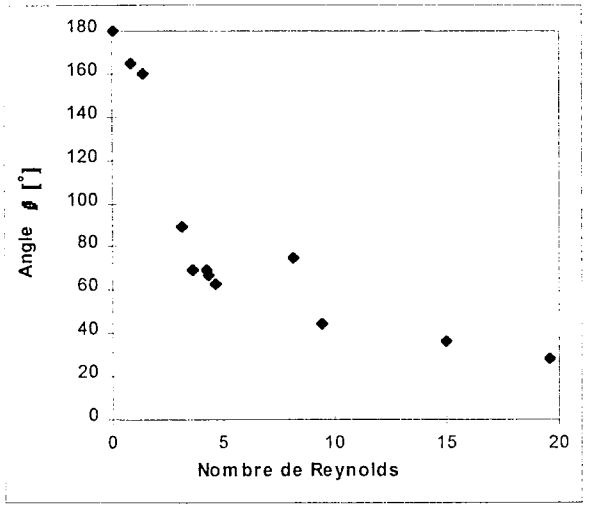


Figure VI.24 : angle du cône creux en fonction du nombre de Reynolds

Sur la figure VI.24, l'angle θ du cône creux est représenté en fonction du nombre de Reynolds pour des bulles en ascension dans les solutions de PAAm. D'après ce diagramme, il semblerait que l'angle θ soit bien une fonction décroissante et monotone du nombre de Reynolds, et qu'en conséquence il existe bien une relation bijective entre l'angle θ et le nombre de Reynolds.

Aussi bien sur les profils de vitesses que sur les représentations du champ de vitesses, on constate que dans les solutions de PAAm, les vitesses décroissent très rapidement en s'éloignant de la bulle. Cette décroissance est bien plus importante que dans le glycérol ou la CMC. Hassager (1979) a fait la même observation sur les profils de vitesses verticaux mesurés par anénométrie laser doppler dans une solution de glycérol 99% et une solution de PAAm 1% dans du glycérol (voir figures I.9 et I.10).

Remarque 1 : La vitesse ascensionnelle des bulles est donnée dans le tableau VI.1. Le profil de la composante verticale de la vitesse du fluide entourant ces bulles est donné sur les figures VI.3 - 4 - 6 - 7 - 9 - 10 - 11 - 13 - 14 - 15 - 17 - 18 et 19. Pour les solutions de Glycérol et CMC, le maximum de la vitesse du fluide environnant la bulle est proche de la vitesse de la bulle.

Pour les solutions de PAAm, en comparant les profils de vitesses et la vitesse ascensionnelle des bulles, on constate que lorsque les bulles sont grosses (environ 1000×10^{-9} m^3), leurs vitesses et la vitesse du fluide environnant sont du même ordre de grandeur.

Par contre, pour les bulles petites et moyennes, à une même distance de la bulle, le fluide les entourant a une vitesse bien plus faible que celle des bulles. Le rapport (vitesse des bulles)/(vitesse maximale du fluide environnant) atteint des valeurs de 3 à 4. Cette observation est commune aux trois solutions de PAAm. La compréhension de ce phénomène nécessiterait plus d'expériences, et surtout de porter une attention plus grande au champ très proche des bulles.

Remarque 2 : Les vecteurs vitesses du sillage négatif obtenus par la méthode PIV dans les fluides viscoélastiques sont bien sûr orientés vers le bas, mais ils ont aussi l'étonnante particularité d'être tous verticaux avec une très grande précision. On pourrait s'attendre à ce que sur les bords, les vecteurs soient inclinés et orientés plus ou moins vers la bulle, mais ce n'est pas le cas.

VI.5.2 Influence du milieu infini ou non infini sur la forme du champ de vitesses

Pour connaître l'influence de la proximité des parois sur le champ de vitesses, des expériences ont été effectuées dans la grande colonne carrée de 0,18 m de côté intérieur, à différentes distances d'une paroi comme présenté en annexe VI.A. Les champs de vitesses sont comparés à ceux obtenus dans la petite colonne. D'après ces expériences effectuées pour une grosse bulle ($900x10^{-9}$ m^3), donc dans le cas le plus défavorable, l'influence des parois sur le champ de vitesses semble négligeable dans le cas de la petite colonne de côté intérieur 0,06 m.

VI.5.3 Evolution de la forme du champ de vitesses avec la période d'injection

Dans le chapitre IV, on a vu que, dans des solutions viscoélastiques de PAAm, la période d'injection avait une forte influence sur la vitesse ascensionnelle et la forme des bulles. Pour savoir si la période d'injection avait aussi une influence sur le champ de vitesses autour des bulles, le champs de vitesses a été mesuré par la méthode P.I.V pour des bulles de volume à peu près identiques et pour différentes périodes d'injections.

Dans l'annexe VI.B, la modification du champ de vitesses, en fonction de la période d'injection est donnée dans trois cas :

- pour des bulles de volume environ $200x10^{-9}$ m^3 pour une solution de PAAm 0,5%
- pour des bulles d'environ $300x10^{-9}$ m^3 pour une solution de PAAm 0,75%
- pour des bulles d'environ $1000x10^{-9}$ m^3 dans une solution de PAAm 0,75%

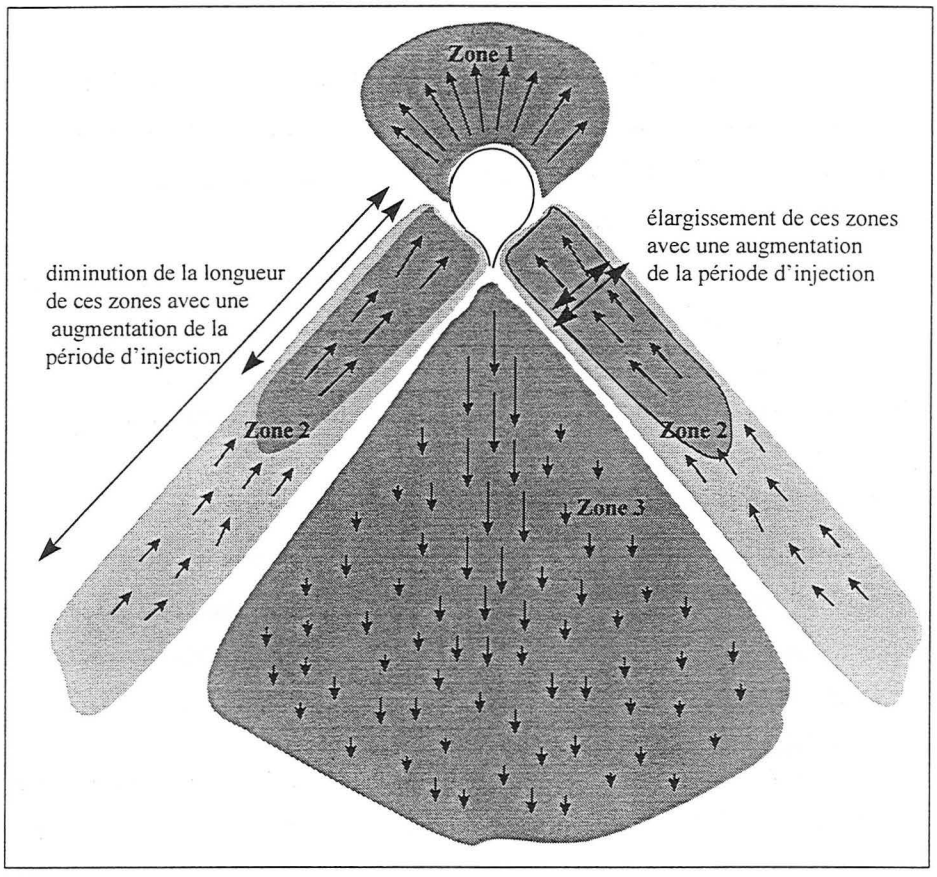


Figure VI.25 : Modification du champ de vitesses par augmentation de la période d'injection dans les solutions de PAAm 0,5 et 0,75%

Sans pouvoir être très affirmatif, une tendance se dégage. Cette tendance joue surtout dans la zone 2 du champ de vitesses. Comme montré sur la schéma VI.25, en augmentant la période d'injection, on observe simultanément une diminution de la longueur de la zone 2 et une augmentation de la largeur de cette zone 2. Dans le cas d'une petite bulle, on observe une augmentation de l'angle θ avec la période d'injection. Mais nous pensons que dans ce cas, l'augmentation de l'angle θ est plutôt due à la diminution de la vitesse ascensionnelle.

VI.5.4 Relation forme des bulles - forme du champ de vitesses

Au cours du chapitre IV, nous avons vu que pour des fluides viscoélastiques, l'excentricité des bulles, c'est à dire le rapport de leur largeur sur leur hauteur, augmentait avec leur volume. Au paragraphe VI.2, nous avons vu que le champ de vitesses changeait avec le volume des bulles. En particulier, la zone 2 fait un angle de plus en plus faible quand le volume des bulles augmente.

Les vecteurs vitesses de la zone 2 entourant directement la bulle ont une direction perpendiculaire à la surface de la bulle comme nous pouvons le voir dans l'annexe VI.C, où le contour des bulles et le champ de vitesses sont superposés.

Sur ces figures, on voit que le sillage négatif débute très près de la queue de la bulle et qu'ils sont tous deux parfaitement alignés verticalement. La comparaison des formes de bulles et des champs de vitesses les entourant dans le cas du glycérol et des solutions de PAAm suggère l'existence d'une relation entre le sillage négatif et la présence d'une queue à la bulle.
De plus, dans le chapitre qui va suivre, une solution d'Hydroxy Propyl Cellulose (HPC), est utilisée. Cette solution présente une élasticité un peu plus importante que les solutions de CMC. Dans cette solution, les bulles ont une queue et un faible sillage négatif existe. Ceci confirmerait l'existence d'une relation entre la présence d'une queue en aval de la bulle et la présence d'un sillage négatif. Le cas des solutions de CMC et d'HPC apparaîtrait alors comme un cas intermédiaire entre les fluides viscoélastiques de PAAm et les fluides newtoniens, où la légère élasticité des solutions d'HPC, même si elle n'arrive pas à créer un sillage négatif, créée un sillage de très faible vitesse, ce qui expliquerait la présence d'une queue.

VI.6 Conclusion

Dans les fluides viscoélastiques, le champ de vitesses autour des bulles a une forme très particulière et assez inattendue. Ce champ de vitesses est très différent de celui obtenu dans un fluide newtonien ou rhéofluidifiant.
D'un point de vue qualitatif, on distingue trois zones dans le champ de vitesses autour des bulles :

- Une zone amont de la bulle qui ne diffère guère de celles de fluides newtoniens.
- Une deuxième zone en forme de cône creux, s'appuyant sur les flancs de la bulle, et dont les vecteurs vitesses sont dirigés vers la bulle.
- Une troisième zone de forme conique située à l'intérieur de la zone 2. Cette zone appelée sillage négatif, s'étend sur plusieurs fois le diamètre des bulles, ce qui montre l'importance de l'élasticité du fluide dans le comportement des bulles. Dans cette zone, la vitesse du fluide est dans le sens opposé à l'ascension de la bulle, d'où le nom sillage négatif.

La forme des deux zones situées dans le sillage dépend du fluide et de la taille des bulles. En particulier, l'angle θ, angle commun au cône creux et au sillage négatif, varie avec le nombre de Reynolds. Ainsi, une relation directe peut être faite entre le nombre de Reynolds et la forme du champ des vitesses dans les solutions de PAAm. Le nombre de Reynods semble donc être un critère tout à fait adapté pour caractériser le champ de vitesses.

D'un point de vue quantitatif, le champ de vitesses est caractérisé par un certain nombre de profils mesurés aussi bien en amont qu'en aval de la bulle. Ces profils sont l'image exacte des représentations des champs de vitesses. Ils soulignent l'importance du sillage négatif : les normes des vecteurs vitesses dans ce sillage est du même ordre de grandeur que celles du fluide entourant la bulle.

Chapitre VII : Biréfringence d'écoulement autour de bulles isolées et dans un train

Introduction

Lors de son ascension, une bulle interagit avec une partie du fluide environnant et le met en mouvement. Aussi, deux bulles, si elles ne sont pas trop éloignées, interagissent au travers du fluide. Dans notre colonne, certaines bulles du train de bulles rattrapent les précédentes, ce qui mène à leur coalescence. Lors de cette approche, comme l'ont observé Crabtree et Bridgwater (1971), Narayanan et al. (1974) et d'autres, la vitesse de « la bulle qui suit » augmente jusqu'au moment où les deux bulles entrent en contact. Ce processus d'approche est expliqué généralement par l'entrée de « la bulle qui suit » dans le sillage de la « bulle en tête » sans donner de justification.
Dans ce chapitre, les contraintes qui existent autour des bulles isolées ou en interaction avec d'autres bulles sont visualisées par des expériences de biréfringence d'écoulement pour essayer de comprendre les interactions qui sont en jeu. Ces observations qualitatives sont complétées par la donnée du champ de vitesses autour des bulles dans des conditions expérimentales identiques. Ce champ de vitesses a été mesuré par la méthode P.I.V.

Dans une première partie, on présente quelques notions de biréfringence d'écoulement. Le montage expérimental utilisé est présenté dans une deuxième partie. La troisième partie est consacrée aux champs de vitesses et de contraintes autour d'une bulle isolée. La quatrième partie, suite directe de la partie précédente, présente les interactions entre bulles vues par les deux techniques de visualisation. Enfin, dans une dernière partie, quelques conclusions sont tirées de ces expériences. Des améliorations possibles du montage de biréfringence ainsi que des perspectives pour la poursuite de ce travail sont présentées.

VII.1 Notions de biréfringence d'écoulement

VII.1.1 Définition de la biréfringence

Certains matériaux présentent une anisotropie de l'indice de réfraction. Cette anisotropie induit une différence dans la vitesse de propagation de la lumière suivant l'orientation de celle-ci. Cette propriété d'un matériau de posséder différentes vitesses de propagation de la lumière est appelée biréfringence. L'anisotropie de l'indice de réfraction peut avoir deux sources :

- soit une orientation permanente des molécules comme dans le spath d'Islande (ces molécules sont elles-mêmes anisotropes)
- soit une orientation momentanée des molécules sous l'effet de l'écoulement. Dans ce cas, l'indice de réfraction dans la direction des chaînes des molécules est différent de l'indice de réfraction suivant la direction perpendiculaire à ces chaînes.

Dans ce dernier cas, la biréfringence est appelée biréfringence d'écoulement. L'étude de la biréfringence d'écoulement est particulièrement intéressante, car une loi photoélastique relie le tenseur des indices de réfraction avec le tenseur des contraintes (travail de synthèse Macosko 1994) :

$$n - \langle n \rangle I = C(\tau + pI) \qquad \text{VII.1}$$

$\langle n \rangle$ tenseur des indices de réfraction moyens

τ tenseur des contraintes [Pa]

I tenseur identité

p pression hydrostatique [Pa]

C coefficient de Brewster

L'annexe VII.A, est consacrée à des rappels d'électromagnétisme, aux fondements théoriques de la biréfringence ainsi qu'aux applications qui en découlent.

VII.1.2 Principe d'un montage de biréfringence

Le matériau à étudier est placé entre deux polaroïds. Il est éclairé par une lumière polarisée obtenue par passage d'un faisceau lumineux parallèle à travers le premier polaroïd appelé polariseur. La lumière qui traverse le matériau arrive sur le deuxième polaroïd appelé analyseur. La direction de polarisation de l'analyseur fait un angle de 90° avec la direction de polarisation du polariseur (Figure VII.1). L'observation du matériau à travers ces deux polaroïds croisés permet de localiser les zone de contraintes. Deux cas se présentent :

- soit le faisceau lumineux traverse une zone isotrope du matériau. L'orientation de la lumière polarisée qui a traversée le matériau est inchangée. A la sortie de l'analyseur l'extinction est totale, cette zone apparaît noire.
- soit le faisceau lumineux traverse une zone où, sous l'effet de l'écoulement, le matériau est anisotrope. Cette anisotropie change l'orientation de la lumière polarisée arrivant sur l'analyseur. Il n'y a plus extinction totale à la sortie de l'analyseur. Cette zone apparaît comme lumineuse, et son intensité est proportionnelle à la différence d'indices, donc à la contrainte exercée.

Lorsque les contraintes exercées ou le coefficient contrainte-optique sont importants, le déphasage entre les deux composantes de la lumière polarisée induit par l'anisotropie du matériau peut dépasser plusieurs périodes, ce qui se traduit par l'existence de franges alternativement sombres et lumineuses. Le passage d'une frange à une autre indique un niveau de contrainte différent.

VII.1.3 Domaines d'application

La biréfringence d'écoulement est une technique couramment utilisée dans deux domaines : l'étude des matériaux polymères, et l'étude de la viscosité (et souvent aussi des conformations des macromolécules) par des rhéomètres optiques.

- Dans les écoulements de polymères à l'état fondu : dans une filière ou à travers une restriction, les contraintes sont très importantes et donnent par biréfringence de nombreuses franges. Les contraintes résiduelles dans les matériaux amorphes, sont aussi visualisables par cette technique.
- Les rhéomètres optiques mesurent la viscosité par biréfringence. L'information obtenue est beaucoup plus locale que dans les rhéomètres classiques et permet de connaître dans certains cas l'évolution des conformations locales des molécules.

Notre but est de visualiser le champ de contraintes autour d'une bulle. Ceci diffère des cas d'application courants. En effet, d'une part, l'utilisation de polymères fondus ne permet pas l'ascension des bulles, car leur viscosité est trop importante. D'autre part, la fenêtre d'observation des rhéomètres optiques est très petite. Ils utilisent un appareillage d'une autre échelle : une lumière laser, des instruments d'optique, des lames quart d'onde et des polaroïdes de très petite taille et de bonne qualité. Pour concevoir et réaliser notre montage, il nous a fallu tenir compte de ces différents problèmes.

VII.2 Montage expérimental et techniques de mesure

VII.2.1 Montage expérimental

Le montage de biréfringence d'écoulement utilisé est des plus simple : il s'agit d'un montage à Nicols croisés (ou polaroïds croisés, figure VII.1). Les feuilles de polaroïd provenant de la société Optilas ont été découpées et ont été insérées dans des supports circulaires de diamètre utile 0,20 m. Ces supports permettent de faire varier l'orientation des polaroïds. Pour éviter que les axes principaux des contraintes ne se superposent avec l'orientation de la lumière polarisée, il nous aurait fallu introduire sur le trajet lumineux des lames quart d'onde ($\lambda/4$) orientées à 45°, ce qui aurait permis d'avoir une polarisation circulaire donc isotrope. Malheureusement ces lames $\lambda/4$ se sont révélées de qualité insuffisante pour que l'on ait une extinction lumineuse correcte en absence de contraintes. Comme les parois de la colonne en plexiglass contenaient beaucoup de contraintes résiduelles, une petite colonne en verre de section carrée 0,06x0,06 m et de hauteur 0,50 m a été construite dans les ateliers du LSGC.

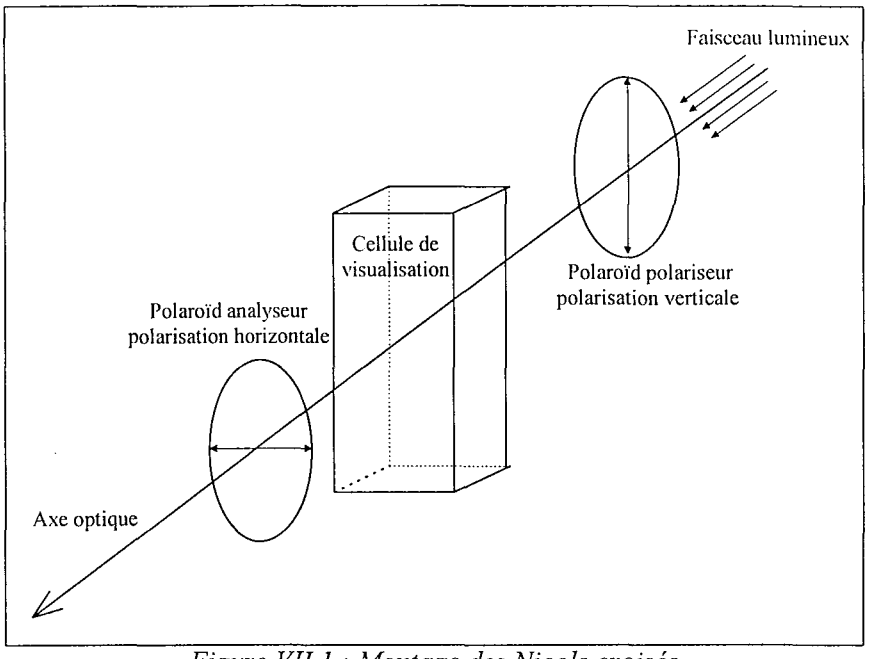


Figure VII.1 : Montage des Nicols croisés

La source lumineuse

Pour une observation correcte de la biréfringence, le montage doit être éclairé par un faisceau de lumière parallèle de forte intensité. Ce faisceau peut être obtenu, soit par un miroir parabolique avec à son foyer la source lumineuse, soit par un système de lentilles. Nous avons opté pour la deuxième possibilité. La figure VII.2 représente le montage dans sa totalité.

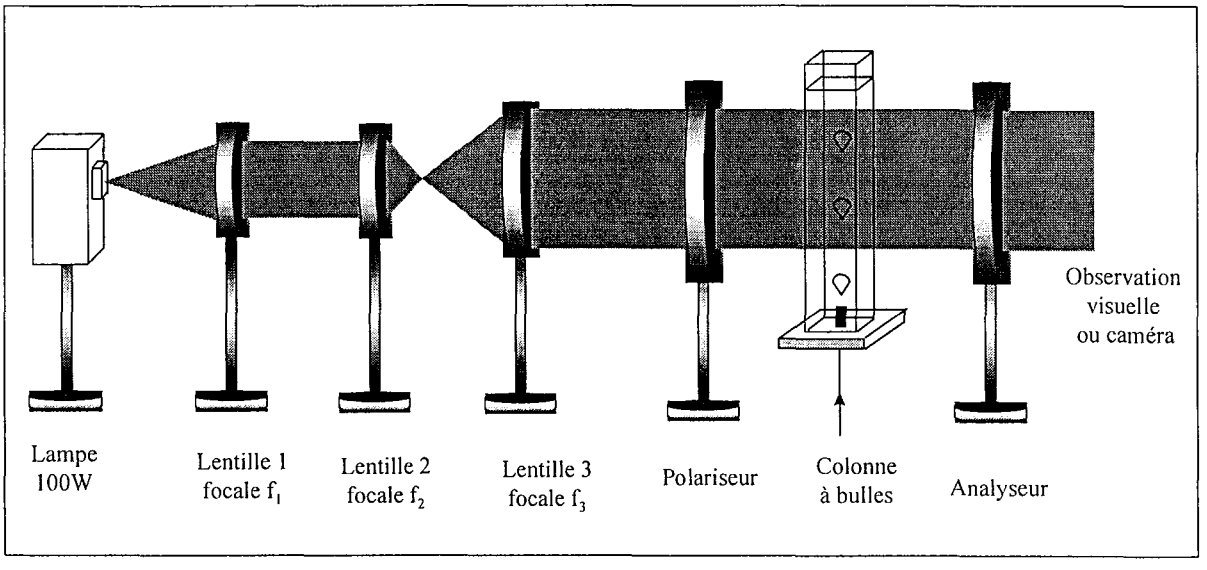


Figure VII.2 : Schéma général du montage de biréfringence d'écoulement avec le système optique

La source lumineuse considérée comme ponctuelle, est placée au foyer de la lentille 1. A la sortie de cette première lentille, on obtient un faisceau de lumière parallèle. Ce faisceau lumineux n'est pas suffisamment étendu pour éclairer le montage. Ainsi, l'adjonction d'un doublet afocal constitué des lentilles 2 et 3 permet d'avoir un faisceau de lumière parallèle plus étendu. Son principe est le suivant : le faisceau de lumière parallèle arrivant sur la lentille 2 passe par le foyer image de cette

lentille, en plaçant la lentille 3 telle que son foyer objet se superpose au foyer image de la lentille 2, un doublet afocal est constitué. A la sortie de ce doublet, le faisceau lumineux est à nouveau parallèle mais est plus étendu : son grandissement est f_3/f_2.

L'observation se fait soit visuellement, soit par enregistrement par caméscope. Etant donné la faible intensité lumineuse traversant les polaroïds, le temps de pose est important : 1/100 ou 1/250s. L'acquisition des images se fait grâce au logiciel Visilog 4.1.3 de la société Noesis Vision Inc.

VII.2.2 Mesure ponctuelle de la biréfringence par laser-diode

Pour pouvoir quantifier la biréfringence d'écoulement autour des bulles, le système de détection du passage des bulles de la grande colonne est utilisé (voir chapitre II). Il comporte un petit laser, une diode et une carte électronique conditionnant le signal. Le faisceau lumineux fin issu d'un laser est une lumière parallèle, ce qui le rend approprié pour une mesure de biréfringence d'écoulement. La figure VII.3 donne le montage mesurant la biréfringence par laser.

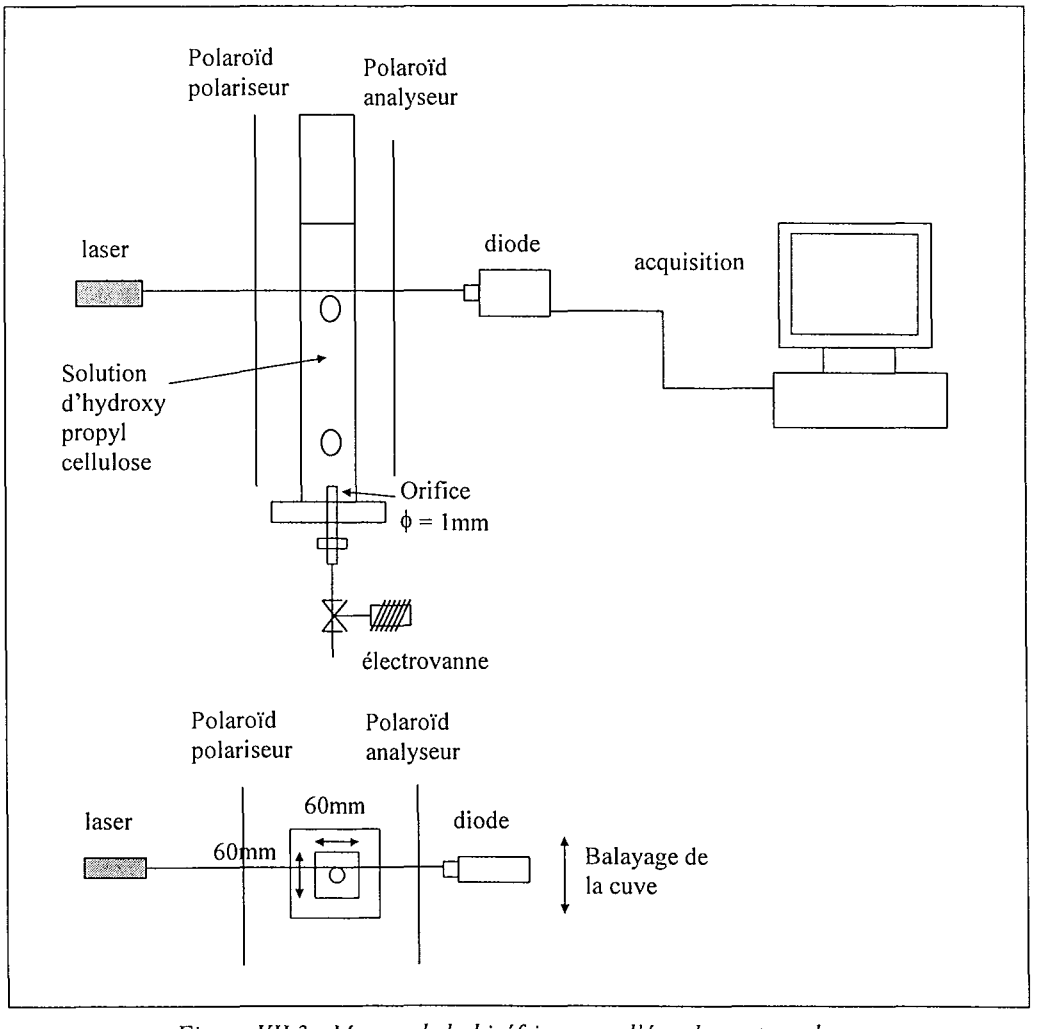


Figure VII.3 : Mesure de la biréfringence d'écoulement par laser

VII.2.3 Solution biréfringente

Le but de cette expérience est de connaître le champ de contraintes dans notre colonne à bulles pour des solutions de PAAm. Malheureusement, ces solutions rhéofluidifiantes et élastiques n'ont pas de coefficient de contrainte optique (ou coefficient de Brewster) suffisant pour que la biréfringence d'écoulement soit détectable par notre montage. Par contre, une solution d'Hydroxy Propyl Cellulose (HPC d'Aldrich Chemical Company, M_W = 10^6 g/mol), est une solution rhéofluidifiante, moyennement élastique et fortement biréfringente. La forte biréfringence des solutions d'HPC peut s'expliquer par la rigidité des chaînes des macromolécules qui doivent avoir une forme proche de celles de bâtonnets. Une solution de 1% d'HPC dans de l'eau est utilisée lors des expériences. La rhéologie de cette solution est donnée en annexe VII.B.
Lors d'expériences de biréfringence d'écoulement, la lumière polarisée est déviée au niveau de l'interface des grains de poussières et des impuretés, ce qui les fait apparaître très lumineux. Pour éliminer ces poussières, ces solutions hautement visqueuses sont filtrées sur un lit fixe de billes de verre supporté par un fritté, et sous aspiration par trompe à eau.

VII.3 Champs de contraintes et de vitesses autour d'une bulle isolée

VII.3.1 Biréfringence d'écoulement autour d'une bulle isolée

Les figures VII.4 a, b, c et d montrent la biréfringence d'écoulement pour une bulle de 925×10^{-9} m^3 en ascension dans la solution d'HPC 1%. Les deux nicols sont toujours croisés, mais sur les figures a et b, la direction de polarisation du polariseur et de l'analyseur sont verticaux et horizontaux respectivement, tandis que sur les figures c et d, l'axe de polarisation du polariseur et l'analyseur font un angle de 45° avec la verticale. La similarité des images de biréfringence prises pour des bulles différentes dans des conditions expérimentales identiques montre une bonne reproductibilité des expériences.
Sur les figures VII.5 a et b, les bulles ont un volume de 250×10^{-9} m^3, sur les figures VII.5 c et d, elles ont un volume de 560×10^{-9} m^3. L'orientation des axes de polarisation sont indiqués sur les figures.

Les bords de la colonne carrée de largeur intérieure 0,06 m sont visibles sur les images. Ils donnent un ordre de grandeur de la taille des bulles.

Sur les figures VII.4 a et b et VII.5 a, c et d, deux lignes sombres apparaissent : une ligne verticale correspondant à l'axe de symétrie de la bulle, et une ligne horizontale coupant la bulle en deux parties à peu près égales. De même, sur les figures VII.4 c et d, et VII.5 b les lignes passant par le centre de

bulles et faisant un angle d'environ 45° avec la verticale sont aussi sombres. Sur ces lignes, la direction de la lumière polarisée incidente se superpose à peu près aux directions des

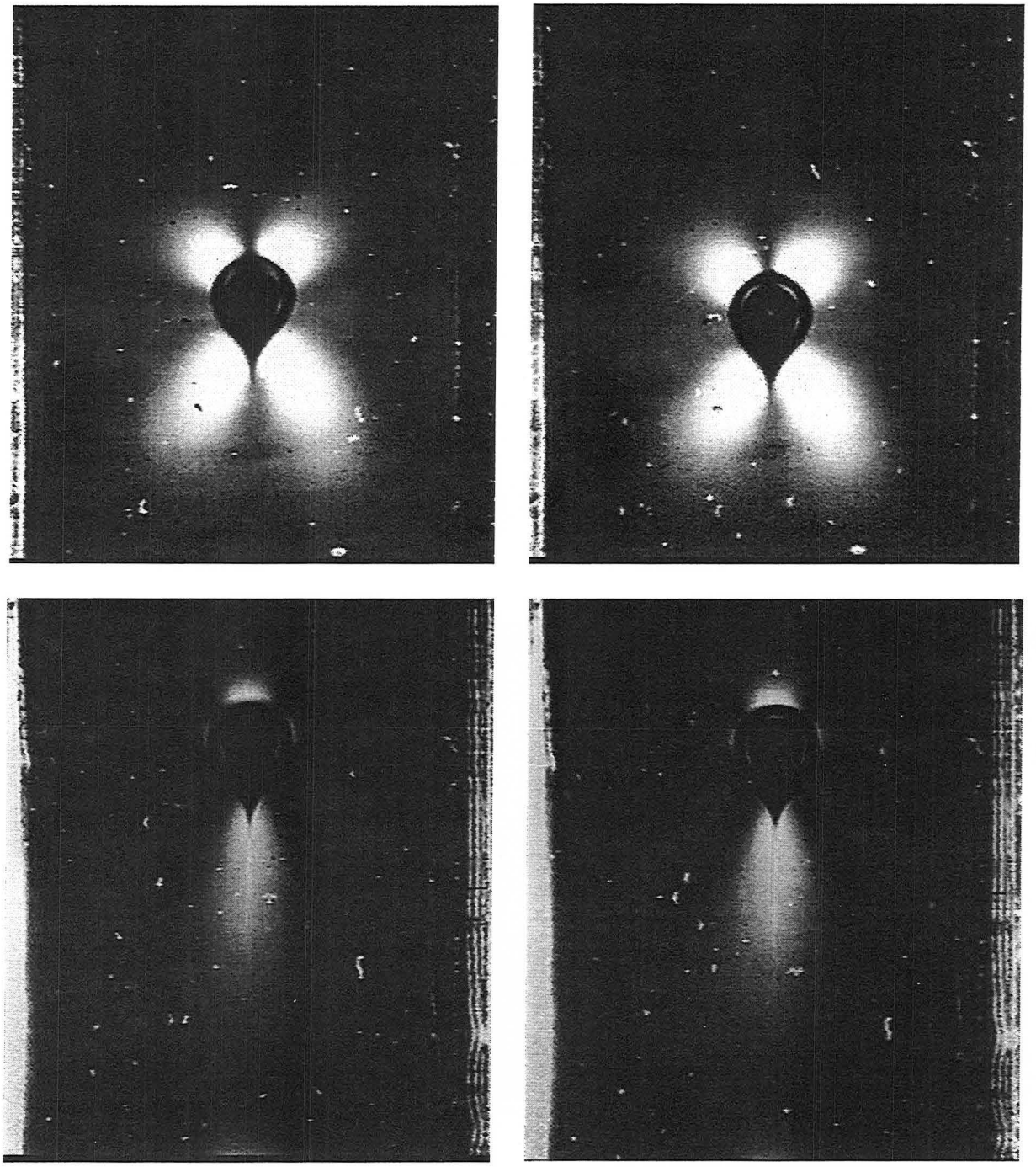


Figure VII.4.a, b, c et d : bulle de 925x10^{-9} m^3, vitesse ascensionnelle de 0,13 m/s - nombre de Reynolds de 1,78 - pour les images.a et b, directions de polarisation des polariseurs et analyseurs verticaux et horizontaux respectivement - pour c et d directions de polarisation des polariseurs et analyseurs orientées à 45% avec la verticale

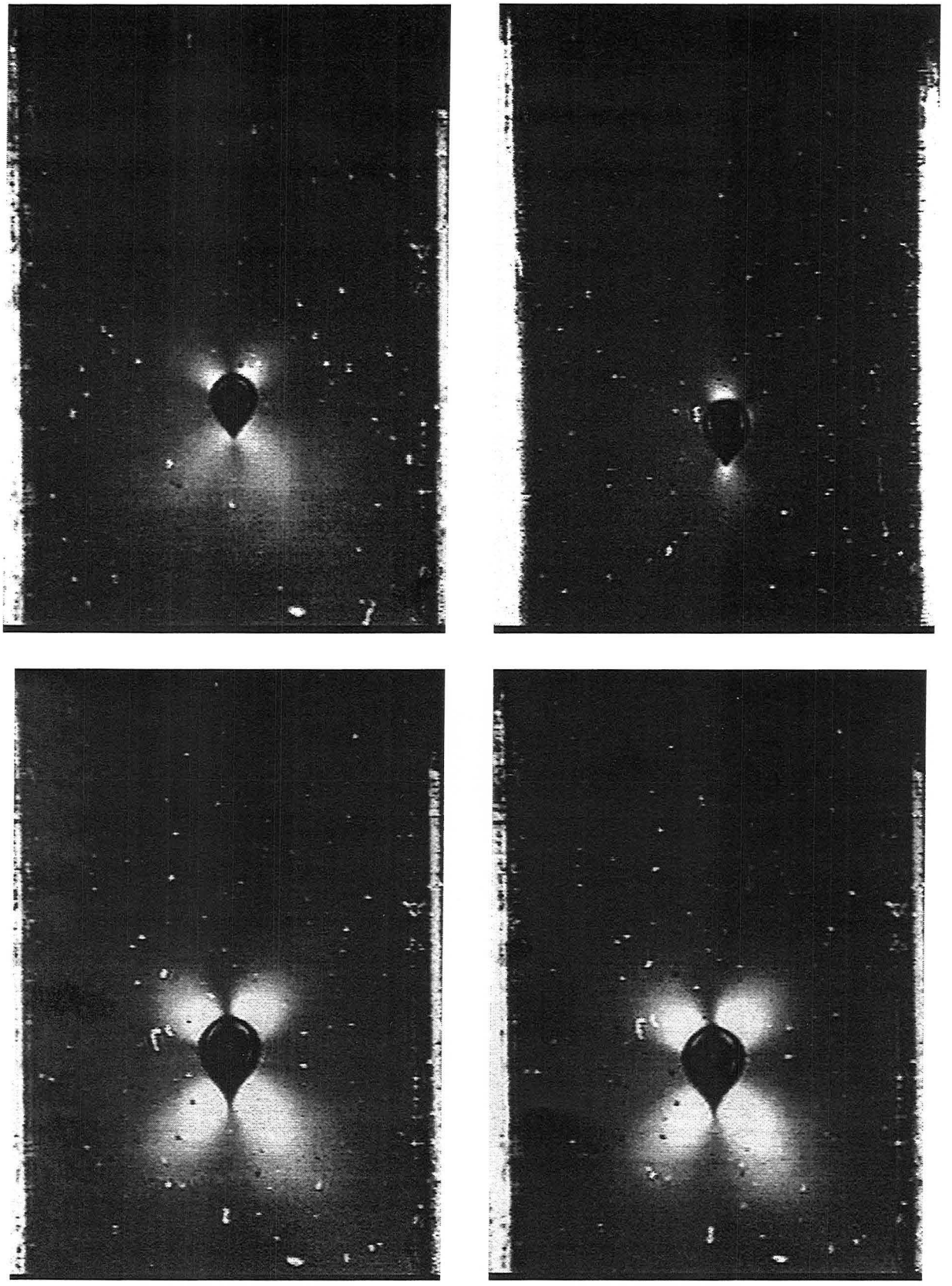


Figure VII.5 a, b, c et d : bulle de 250x10^{-9} m^3 pour a et b - de 560x10^{-9} m^3 pour c et d - vitesse ascensionnelle des bulles 0,06 et 0,1 m/s - nombres de Reynolds 0,43 et 1,07 respectivement - pour l'image VII.5.b, direction de polarisation du polariseur et de l'analyseur à 45° avec la verticale - pour l'image VII.5.a, c et d, direction de polarisation des polariseurs et analyseurs verticaux et horizontaux respectivement

contraintes principales, ce qui fait que la biréfringence induite par l'écoulement agit comme une ligne neutre sur la lumière polarisée incidente. Ces lignes apparaissent donc comme sombres (voir Annexe VII.A).

Le tableau VII.1 résume les conditions expérimentales des différentes expériences. Il faut noter que les vitesses ascensionnelles ont été mesurées à partir des images, ce qui explique qu'elles soient moins précises que celles effectuées dans les chapitres IV et V où un système laser - diode était utilisé.

Nom figure	Volume bulle	Vitesse	Reynolds	Polariseurs
	[m^3]	[m/s]		
VII.4.a et b	$925x10^{-9}$	0,133	1,78	verticaux
VII.4.c et d	$925x10^{-9}$	0,133	1,78	45°
VII.5.a	$250x10^{-9}$	0,06	0,43	verticaux
VII.5.b	$250x10^{-9}$	0,06	0,43	45°
VII.5.c et d	$560x10^{-9}$	0,1	1,07	verticaux
VII.6.a et b	$200x10^{-9}$	0,06	0,41	
VII.7.a et b	$1000x10^{-9}$	0,167	2,56	
VII.8	$1000x10^{-9}$	0,167	2,56	

Tableau VII.1 : Ascension de bulles isolées

Dans les écoulements bidimensionnels, la biréfringence d'écoulement donne une mesure quantitative des contraintes existantes. Les rhéomètres optiques sont basés sur cette technique. Ils utilisent souvent une géométrie Couette avec un faisceau laser vertical traversant une zone de cisaillement uniforme.

Le champ de contraintes créé par l'ascension d'une bulle est axisymétrique mais non bidimensionnel, ce qui ne nous permet pas de relier directement la luminosité observée aux contraintes dans le fluide. König et Bruggisch (1998) ont étudié par biréfringence d'écoulement le champ de contraintes autour d'une goutte sphérique en croissance. La biréfringence totale observée en un point est l'intégrale de la biréfringence dans chaque tranche d'épaisseur infinitésimale traversée. La symétrie sphérique du système rend le calcul du champ de contraintes possible. La biréfringence est calculable en tout point par la loi rhéo-optique, et le temps de retard total que connaît le rayon lumineux s'en déduit. Ainsi, ils ont pu comparer la biréfringence calculée numériquement aux observations expérimentales. La complexité de notre système est plus importante, parce que les bulles ainsi que le champ de vitesses environnant sont axisymétriques et non à symétrie sphérique. Le principe de résolution utilisé par König et Bruggisch (1998) n'est pas applicable ici.

Quelques remarques sont à faire au vu des images de biréfringence :

- le champ de contraintes est plus étendu en aval de la bulle qu'en amont
- le champ de contraintes est axisymétrique et est plus important pour de grosses bulles que pour de petites bulles

- les contraintes en aval de la bulle semblent être moins importantes dans une zone centrale qu'autour de cette zone centrale
- au niveau du plus grand diamètre de la bulle, les contraintes ne sont pas très importantes, ce qui confirme l'existence d'une interface libre. Cette observation est surtout visible lorsque les directions de polarisation de polaroïds sont à 45° de la verticale.

Remarque : Sur les figures VII.4 c et d, sur l'axe de symétrie de la bulle, une raie lumineuse très fine et particulièrement intense apparaît dans la traînée. Cette observation n'est pas sans rappeler l'étude de Cressely (1975) sur le point d'arrêt après une sphère. Pour eux, une luminosité très intense après un point d'arrêt montre l'existence d'élongations en ce point, ce qui permettrait d'étirer les chaînes macromoléculaires qui étaient sous forme de pelotes au départ, et donc d'avoir une importante biréfringence. Par la suite, Harlem et al. (1990) ont modélisé ce qui se passe au niveau de divers points d'arrêt.

VII.3.2 Champ de vitesses autour d'une bulle isolée déterminé par P.I.V.

Les figures VII.6 a et b représentent le champ de vitesses autour d'une bulle de $200x10^{-9}$ m^3 en ascension dans la solution d'HPC 1%. Les figures VII.6.a et b représentent respectivement le champ de vitesses autour de la bulle et une des deux images à partir desquelles le champ a été calculé par une corrélation croisée. Les figures VII.7.a b et VII.8 représentent l'ascension de bulles de $1000x10^{-9}$ m^3. La figure VII.8 permet de voir un sillage négatif.

Plusieurs zones peuvent être distinguées dans le champ de vitesses :
- une zone en amont de la bulle. Dans cette zone, le champ de vitesses diffère peu de celui observé dans des fluides newtoniens. Dans cette zone, le champ de vitesses ne semble donc pas beaucoup dépendre de la rhéologie du fluide.
- deux zones en aval de la bulle :
  - une zone centrale de forme conique où la vitesse est faible voire négative. Cette zone commence après la fin de la queue de la bulle (figure VII.8, sillage négatif pour une bulle de $1000x10^{-9}$ m^3)
  - entourant cette zone, une zone en forme de cône creux, possède des vecteurs vitesses importants. Cette zone débute aux flancs de la bulle, et s'élargit en s'éloignant de la bulle.

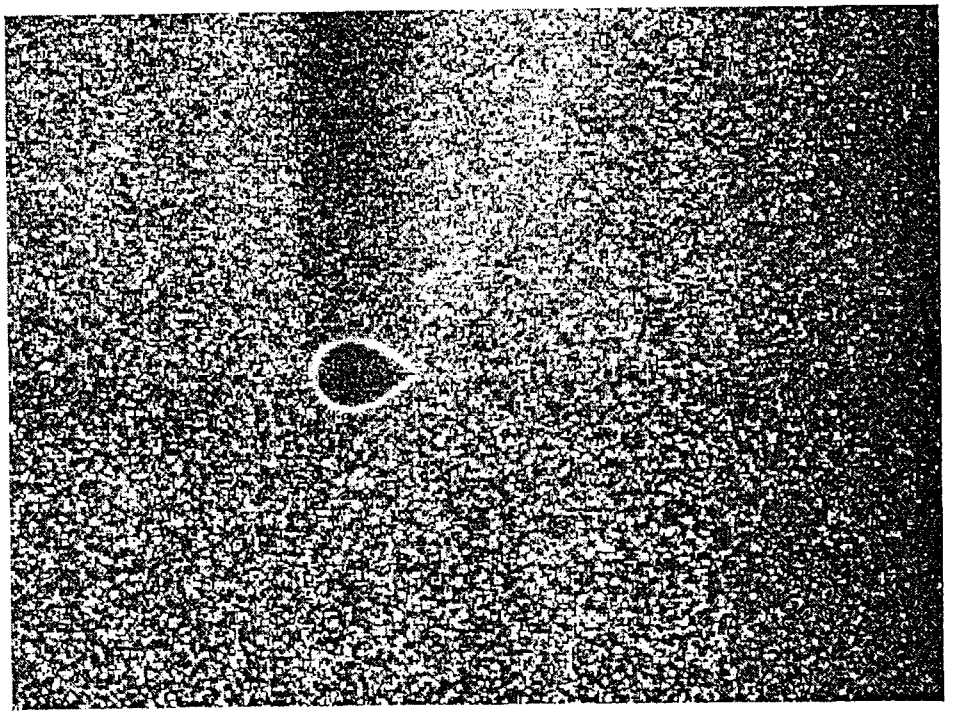
Cette distribution du champ de vitesses n'est pas très différente de la distribution des vitesses autour d'une bulle dans les solutions hautement viscoélastiques de PAAm. Du fait d'une viscoélasticité moindre, le champ de vitesses dans l'HPC 1% possède les caractéristiques d'un champ de vitesses dans un fluide viscoélastique, mais en nettement moins prononcé : l'important sillage négatif est remplacée par des vitesses quasiment nulles voire négatives, et la zone en forme de cône creux, de fortes vitesses dirigées vers les flancs de la bulle, est largement amoindrie, mais est encore présente.

VII.3.3 Mesure ponctuelle de l'intensité lumineuse par laser-diode

L'intensité lumineuse variable apparue sur les images de biréfringence d'écoulement est mesurée par un système laser - diode. Les acquisitions sont effectuées à une hauteur fixe en balayant horizontalement une section de la colonne (voir figure VII.3). Les diagrammes obtenus sont représentés sur les figures VII.9 pour l'ascension d'une bulle de $1100x10^{-9}$ m^3 dans une solution de HPC 1%.

Ces mesures retracent fidèlement les résultats obtenus sur les images. Près de la paroi, deux pics de l'intensité lumineuse sont visibles. Le premier, très bref, correspond au déplacement vertical du fluide lors de l'injection brutale d'une bulle dans la colonne à bulle suite à l'ouverture de l'électrovanne. Le second correspond aux contraintes sur les parois lors du passage d'une bulle. En se déplaçant progressivement vers le centre de la colonne, ces mesures permettent de comparer l'intensité lumineuse, donc les contraintes, en amont et en aval de la bulle. On peut voir qu'en dehors d'une zone centrale, cette intensité est plus importante en amont de la bulle qu'en aval.

Le faisceau laser est réfléchi par la surface de la bulle. Ainsi, lors de la traversée de la bulle, l'intensité lumineuse mesurée par la diode est inférieure à la ligne de base. Ceci permet de connaître le temps de passage de la bulle. On constate que les contraintes sont présentes pour un temps bien plus long que le temps de passage de la bulle, et que, dans le sillage, elles ne se relaxent que lentement.



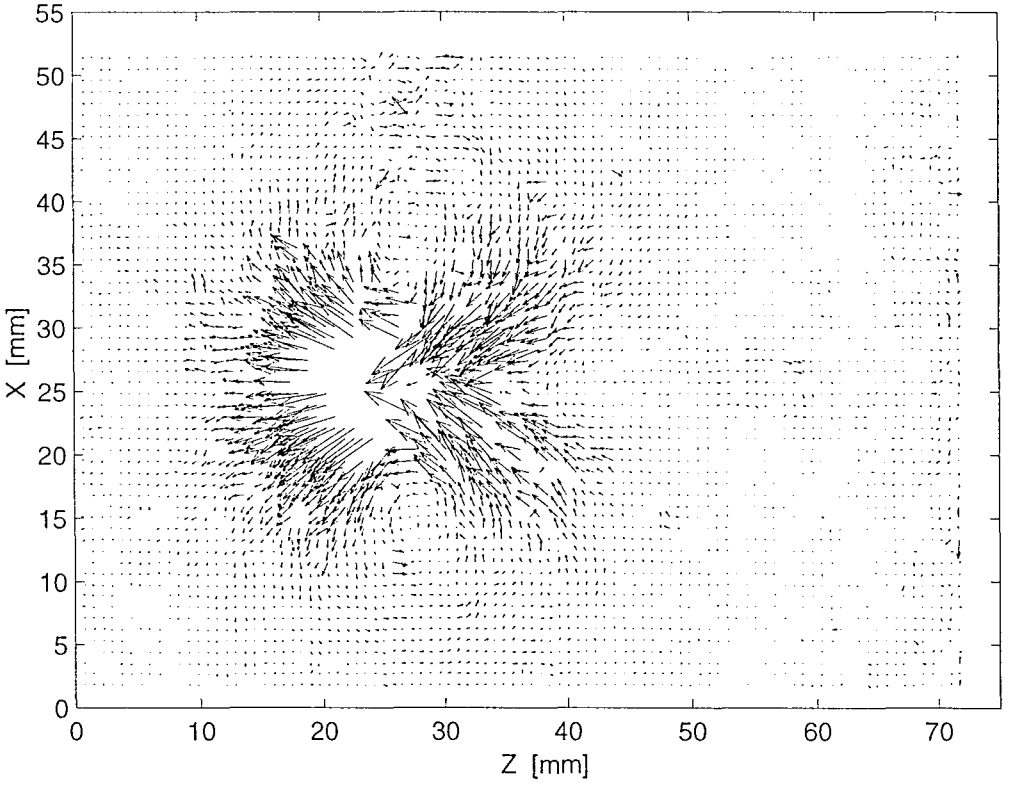
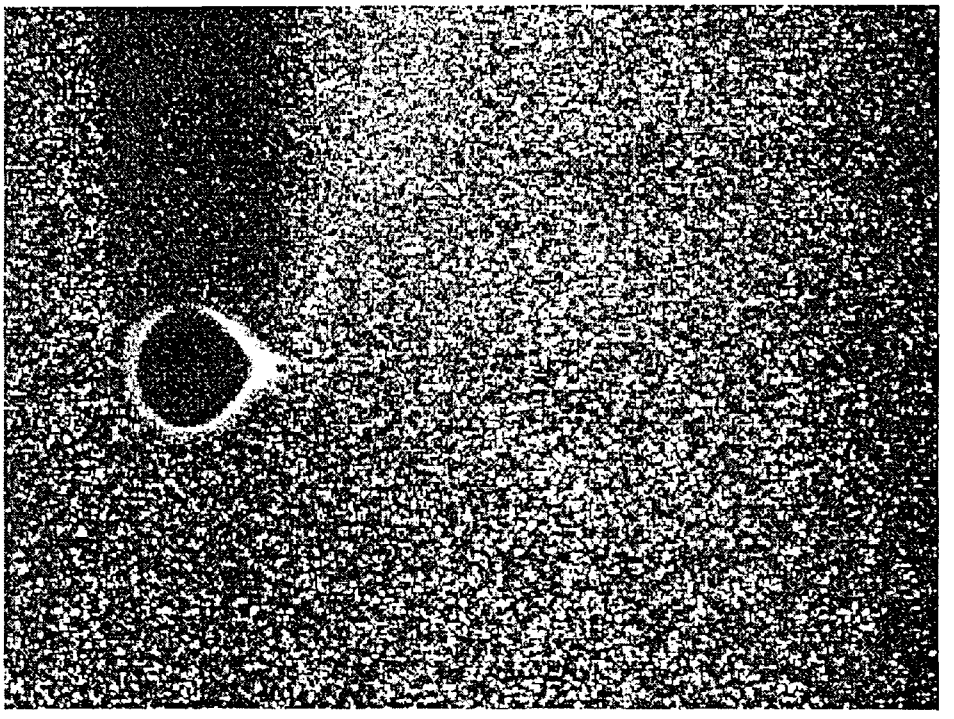


Figure VII.6.a et b : Bulle isolée de 200x10^{-9} m^3 en ascension dans une solution d'HPC 1%. Vitesse ascensionnelle 0,06 m/s, nombre de Reynolds 0,41. Champ de vitesses et image correspondante



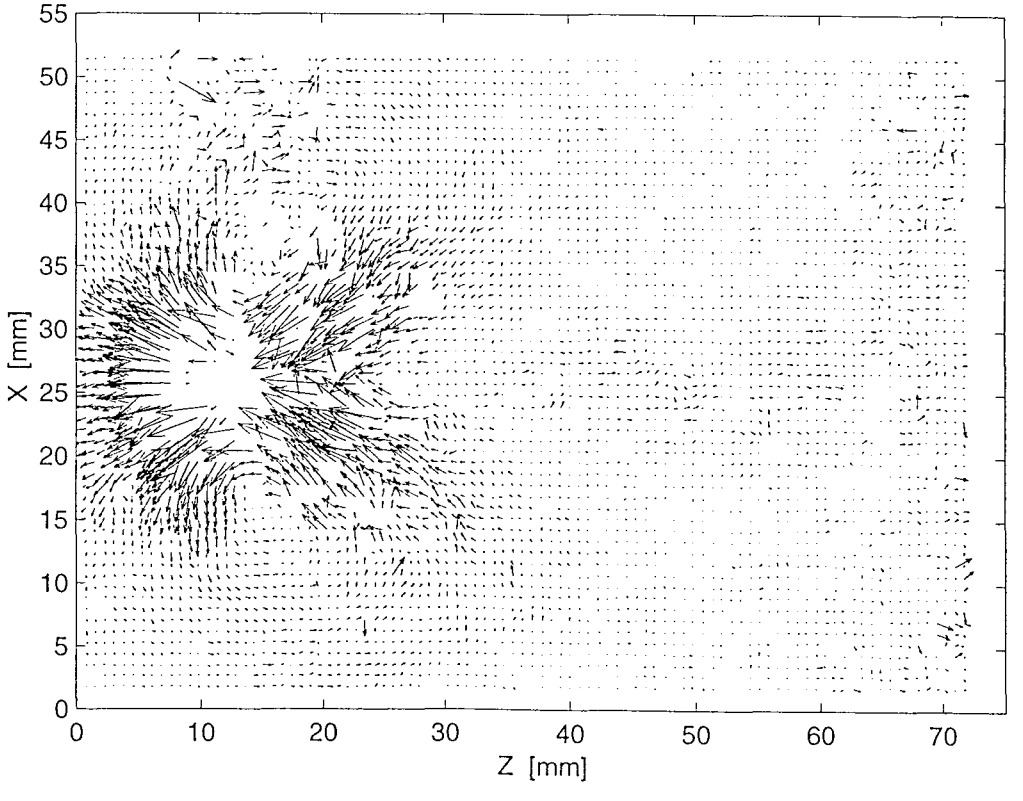


Figure VII.7.a et b : Bulle isolée de 1000x10^{-9} m^3 en ascension dans une solution d'HPC 1%. Vitesse ascensionnelle 0,167 m/s, nombre de Reynolds 2,56.

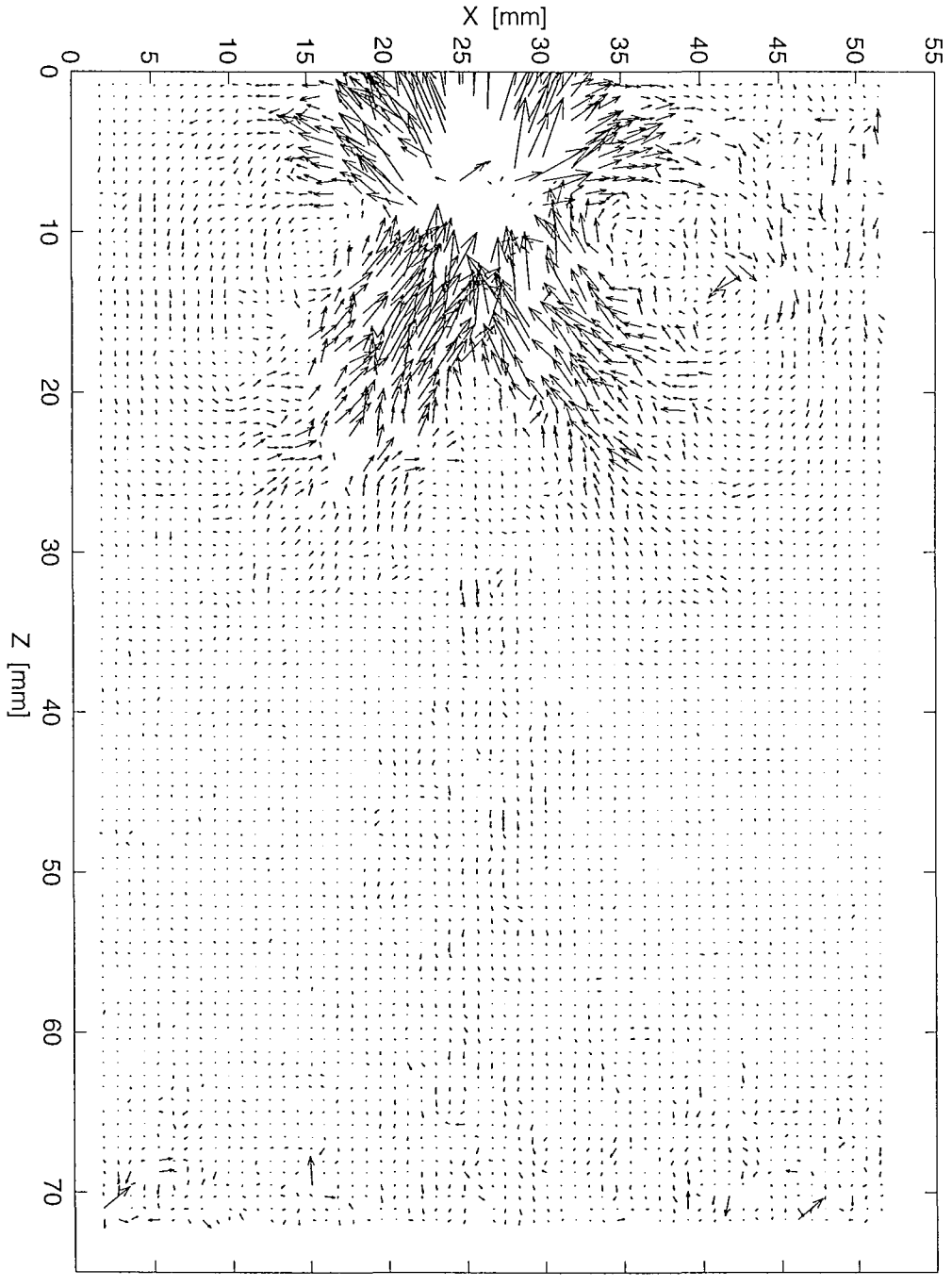


Figure VII.8 : Bulle isolée de 1000x10^{-9} m^3 en ascension dans une solution d'HPC 1%. Vitesse ascensionnelle 0,167 m/s, nombre de Reynolds 2,56

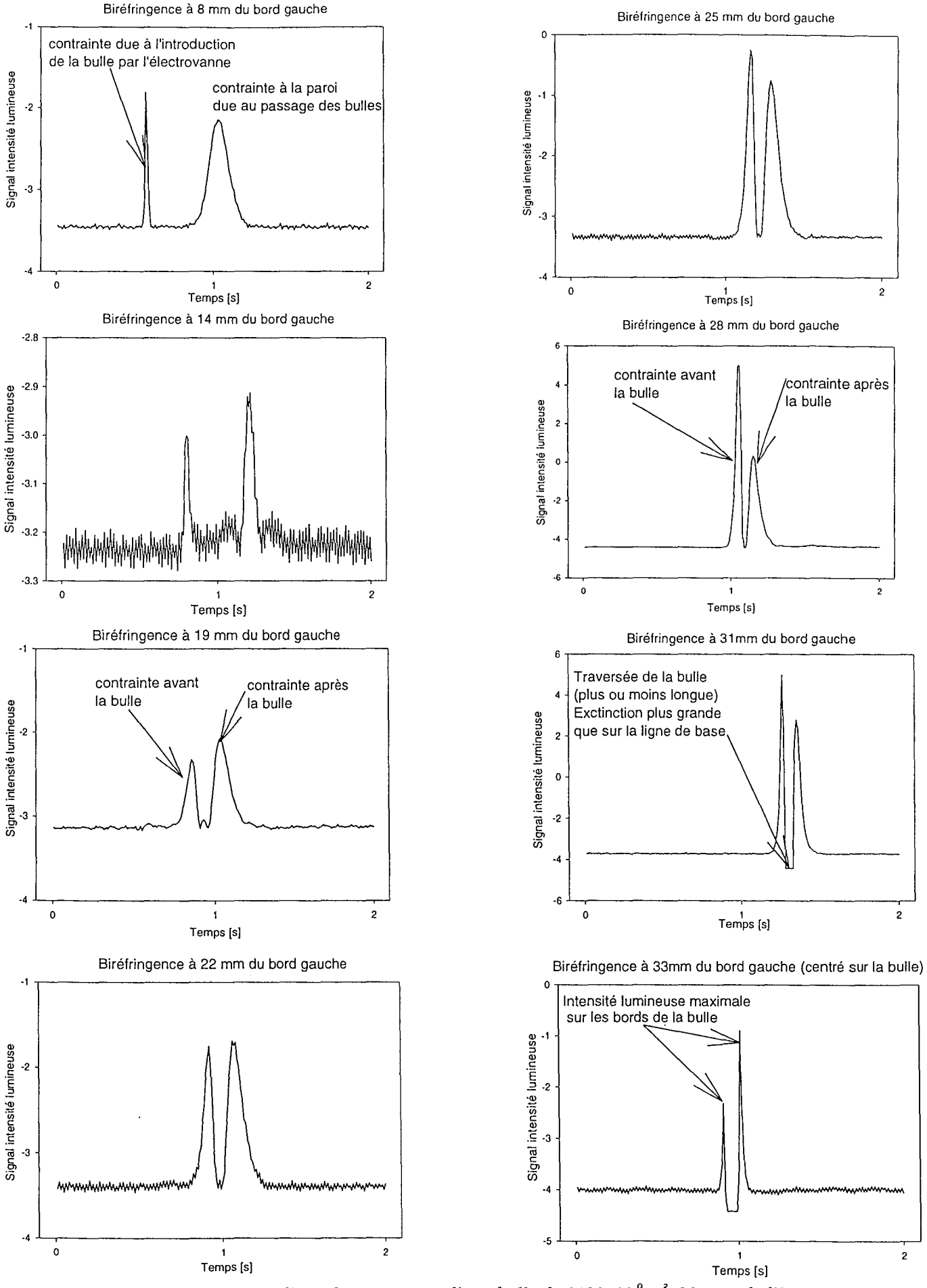


Figure VII.9 : Biréfringence d'écoulement autour d'une bulle de 1100x10^{-9} m^3. Mesure de l'intensité lumineuse par un système laser - diode. Balayage à partir du bord gauche.

VII.3.4 Conclusion

La superposition des champs de contraintes et de vitesses est bonne : les zones les plus lumineuses sur les images de biréfringence correspondent aux zones de cisaillement et de vitesses les plus importantes. Le champ de contraintes est largement développé à l'arrière de la bulle et s'étend sur une longueur nettement supérieure à la taille de la bulle.

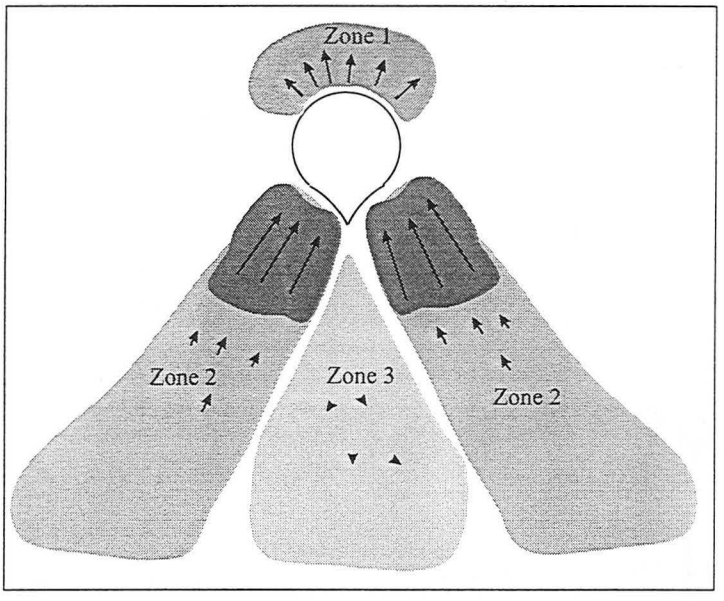


Schéma VII.10 Champ de vitesses et de contraintes autour d'une bulle isolée en ascension

Le schéma VII.10 résume la forme du champ de vitesses autour d'une bulle en ascension :

- la zone 1 correspond à une zone de compression de fluide à la suite de quoi le fluide est mis en mouvement et chassé devant la bulle
- la zone 2 a la forme d'un cône creux s'appuyant sur les flancs de la bulle. Elle correspond a des contraintes et vitesses importantes dirigées vers la bulle
- la zone 3 est entourée par la zone 2. Dans cette zone, les vitesses sont faibles voire légèrement négatives.

VII.4 Champ de contraintes et de vitesses autour d'un train de bulle

VII.4.1 Biréfringence d'écoulement autour d'un train de bulles

Comme pour les bulles isolées, un certain nombre d'images montrant le champ de contraintes autour de bulles ont été prises. Les figures VII.11, VII.12 représentent l'évolution du champ de contraintes lors de l'approche d'une « bulle qui suit » vers la « bulle en tête » jusqu'à la coalescence. Des images successives sont prises toutes les 40 et 120 ms respectivement, pour des bulles de 560×10^{-9} m^3 injectées régulièrement toutes les 0,2s dans le premier cas, et des bulles de 150×10^{-9} m^3 injectées

toutes les 0,5s dans le deuxième cas. Les figures VII.13.a et b représentent des bulles de $400x10^{-9}$ m^3 injectées toutes les 0,5s. L'image VII.13.a a été prise avec une direction de polarisation du polariseur verticale et une direction de polarisation de l'analyseur horizontale, alors que l'image VII.13.b a été prise avec des directions de polarisation orientées à 45°.

Sur la figure VII.12, la déformation de la « bulle en tête » et de la « bulle qui suit » est particulièrement visible. Peu à peu il se forme une jonction de la zone lumineuse entre les bulles. Au fur et à mesure de l'approche, les contraintes entre les bulles s'intensifient et forment une zone continue très lumineuse entre les deux bulles. La coalescence s'accompagne d'un dégagement de contraintes important.

VII.4.2 Champ de vitesses autour d'un train de bulles

Pour ces expériences, l'intervalle de temps entre les bulles injectées est de 0,2s. Sur les figures VII.14 et VII.15, les bulles ont un volume de $400x10^{-9}$ et $600x10^{-9}$ m^3 respectivement. Les figures VII.14.a et VII.15.a représentent le champ de vitesses autour des bulles, les figures VII.14.b et VII.15.b donnent les images à partir desquelles la cross corrélation a été faite.

Nom figure	Volume bulle	Vitesse	Reynolds	Polariseurs	T injection
	[m^3]	[m/s]			[s]
VII.11	$560x10^{-9}$	0,11	1,23	verticaux	0,2
VII.12	$150x10^{-9}$	0,034	0,167	verticaux	0,5
VII.13.a	$400x10^{-9}$	0,08	0,72	verticaux	0,5
VII.13.b	$400x10^{-9}$	0,08	0,72	45°	0,5
VII.14	$400x10^{-9}$	0,1	1,02		0,2
VII.15	$600x10^{-9}$	0,14	1,8		0,2

Tableau VII.2 Conditions expérimentales des expériences avec des trains de bulles.

Comme des coalescences ont lieu, les vitesses ascensionnelles et les nombres de Reynolds donnés sont ceux d'avant les premières coalescences. De plus, comme les bulles accélèrent avant de coalescer, les vitesses et les nombres de Reynolds donnés ne sont que des valeurs moyennes.

Pour de petites bulles, les vecteurs du champ de vitesses du fluide passent d'une bulle à l'autre. Comme dans le cas des bulles isolées, les vitesses sont plus importantes à l'arrière de la bulle, dans une zone en forme de cône creux.

Pour de plus grosses bulles, le champ de vitesses est différent. A l'arrière de la bulle, les vecteurs vitesses sont faibles. Mais, autour de cette zone, de part et d'autre de l'axe de symétrie du train de bulles, deux zones d'importants vecteurs vitesses en forme de deux arcs de cercle symétriques relient une bulle à la suivante (figure VII.15). Quand les bulles s'approchent, ces zones en forme d'arc de cercle sont plus marquées, et la zone centrale qui correspond à de faibles vitesses diminue de taille jusqu'à disparaître. Quand les bulles sont proches, les champs de vitesses se confondent pour ne former plus qu'un champ vertical ascendant pratiquement uniforme.

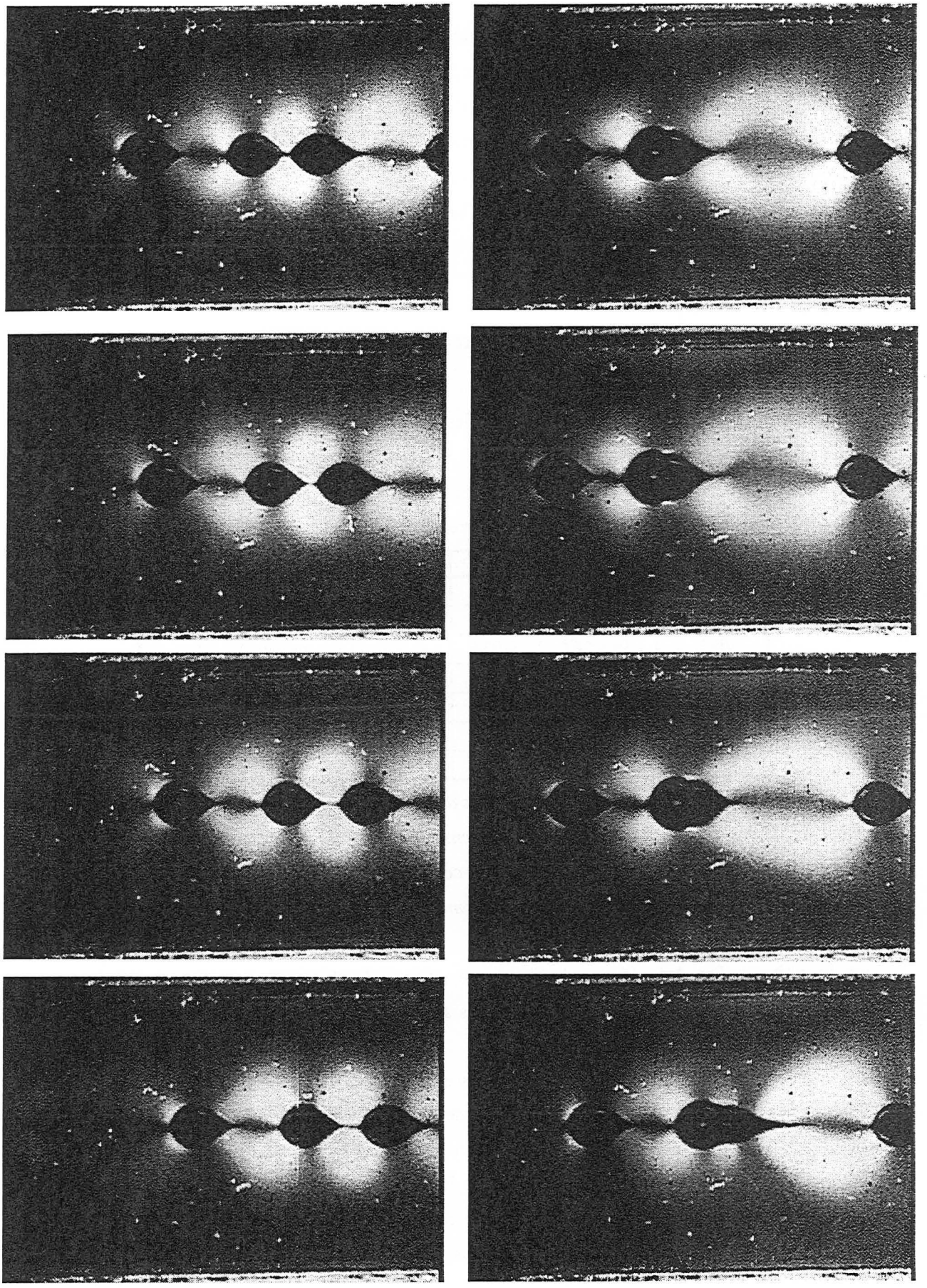


Figure VII.11 : bulles de 560x10^{-9} m^3 en interaction dans un train, période d'injection 0,2s, temps entre images 40x10^{-3} s

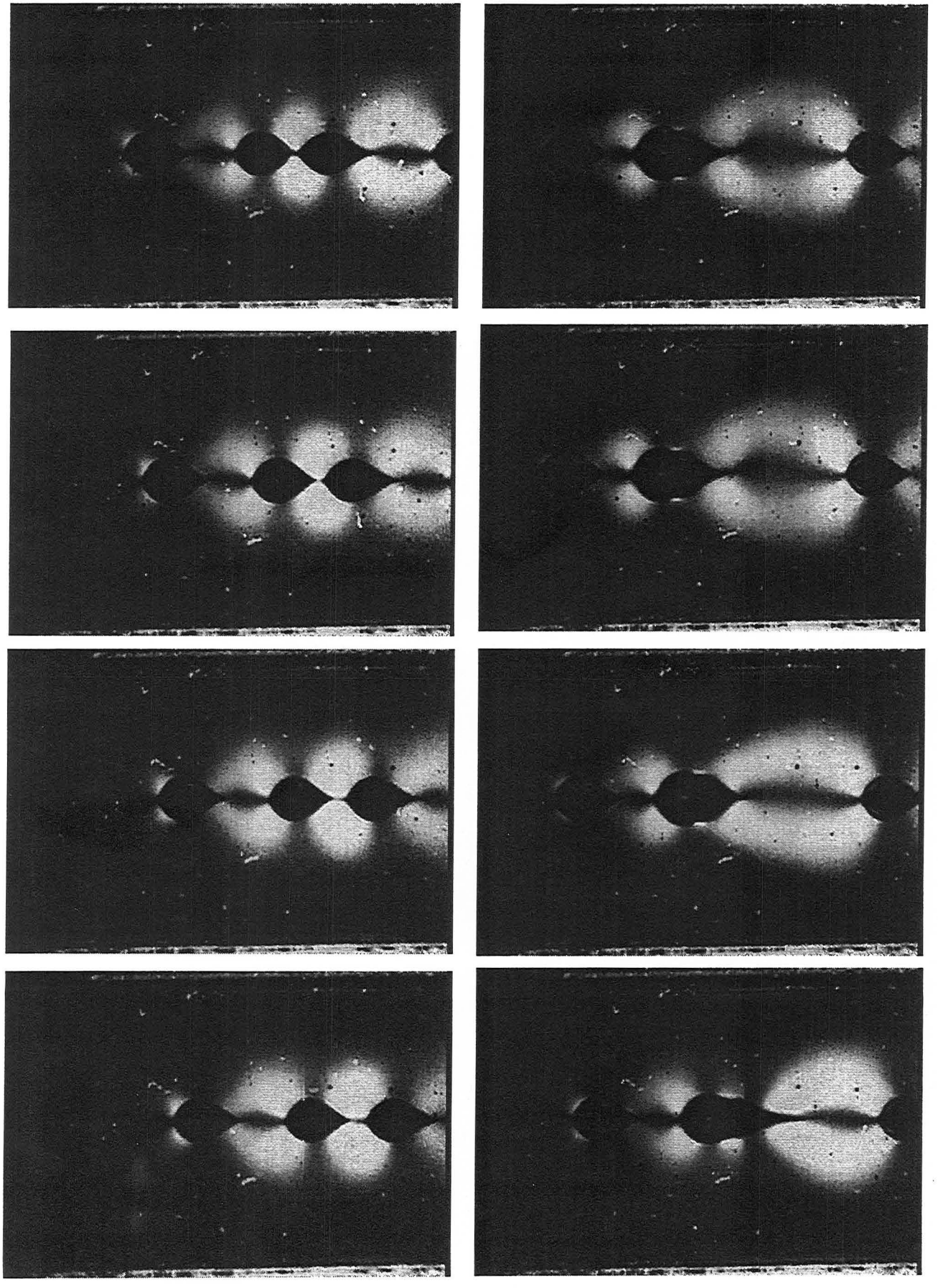


Figure VII.11 : bulles de $560x10^{-9}$ m^3 en interaction dans un train, période d'injection 0,2s, temps entre images $40x10^{-3}$ s

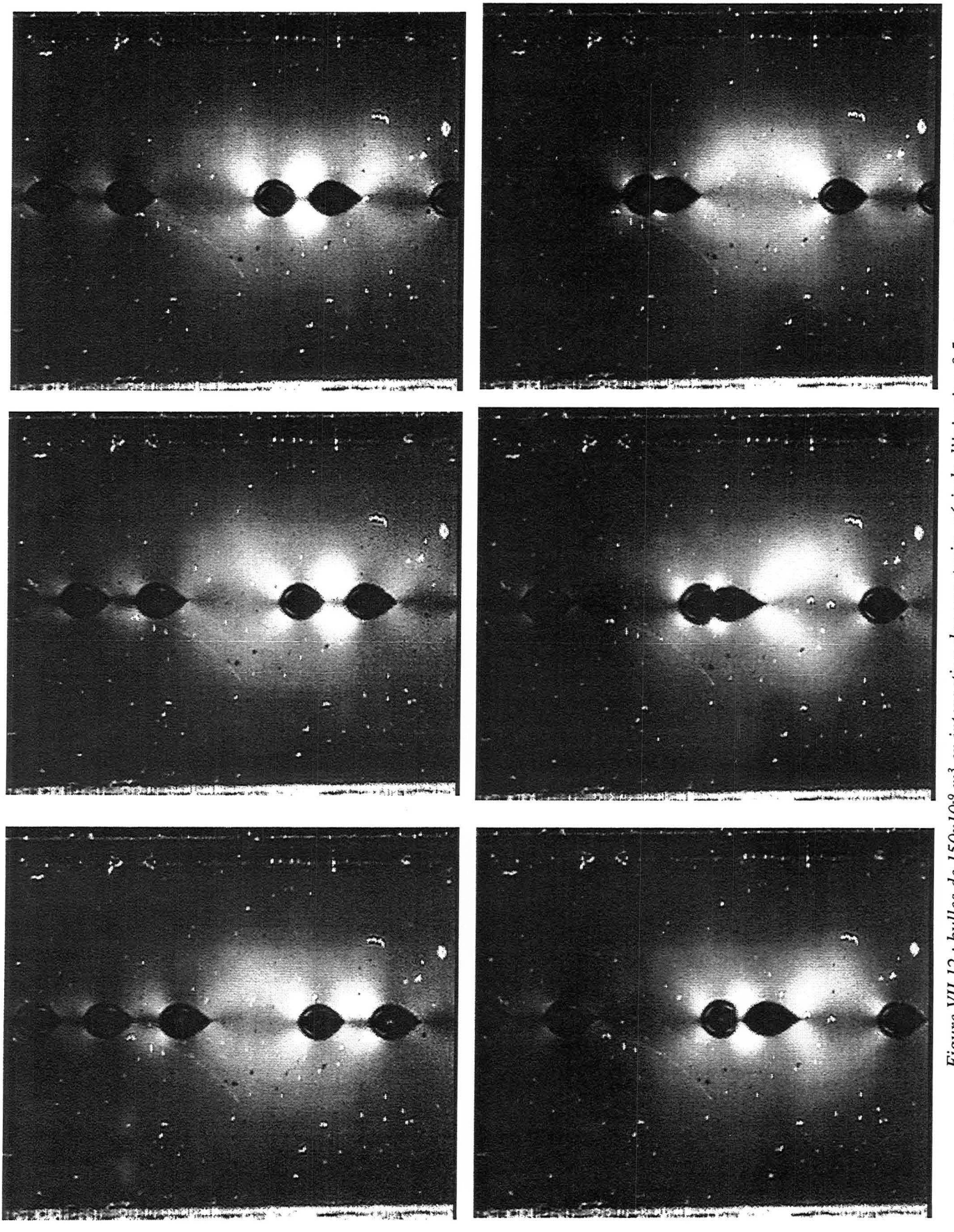


Figure VII.12 : bulles de 150x10^{-9} m^3 en interaction dans un train, période d'injection 0.5s, temps entre images 120x10^{-3} s

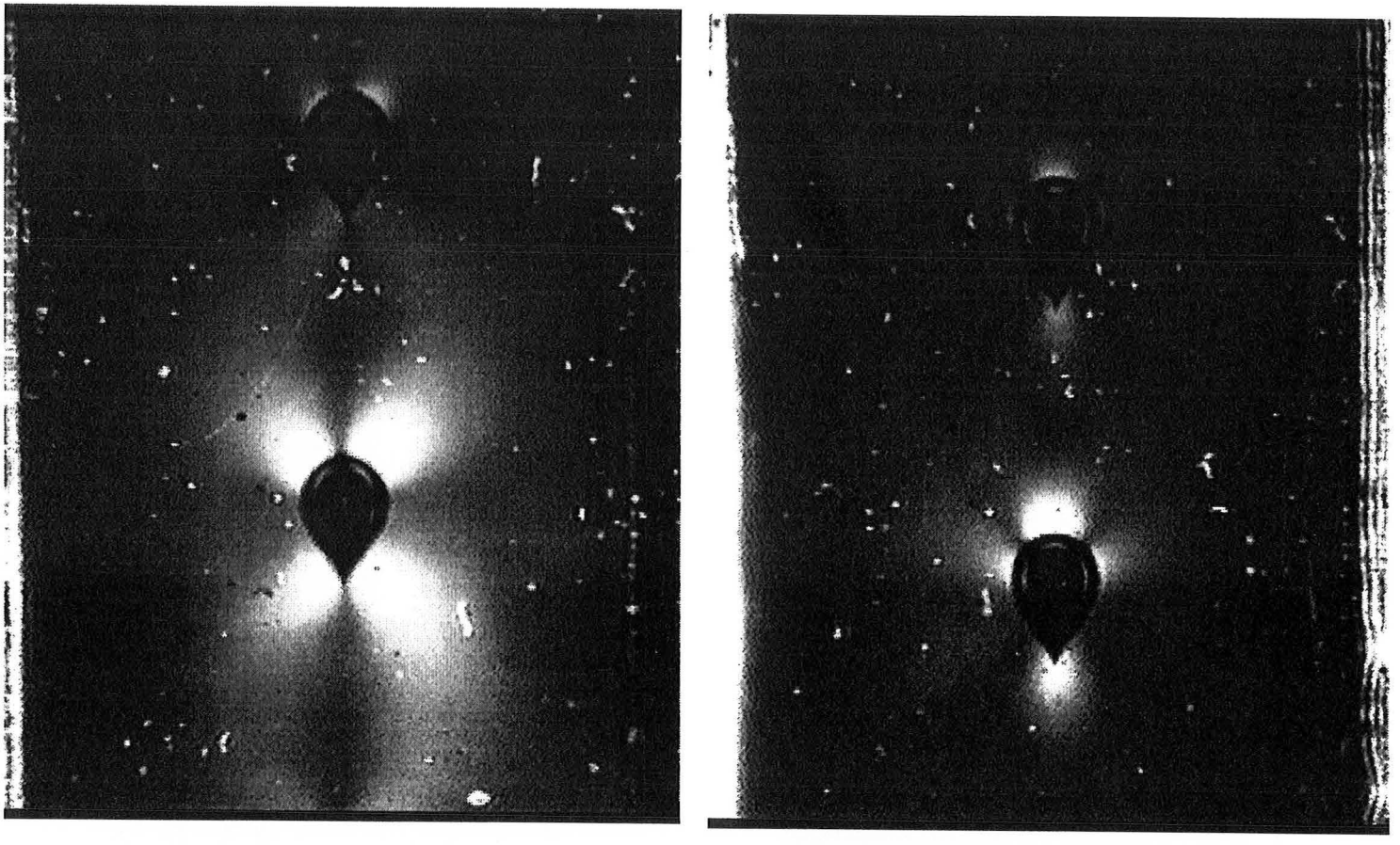
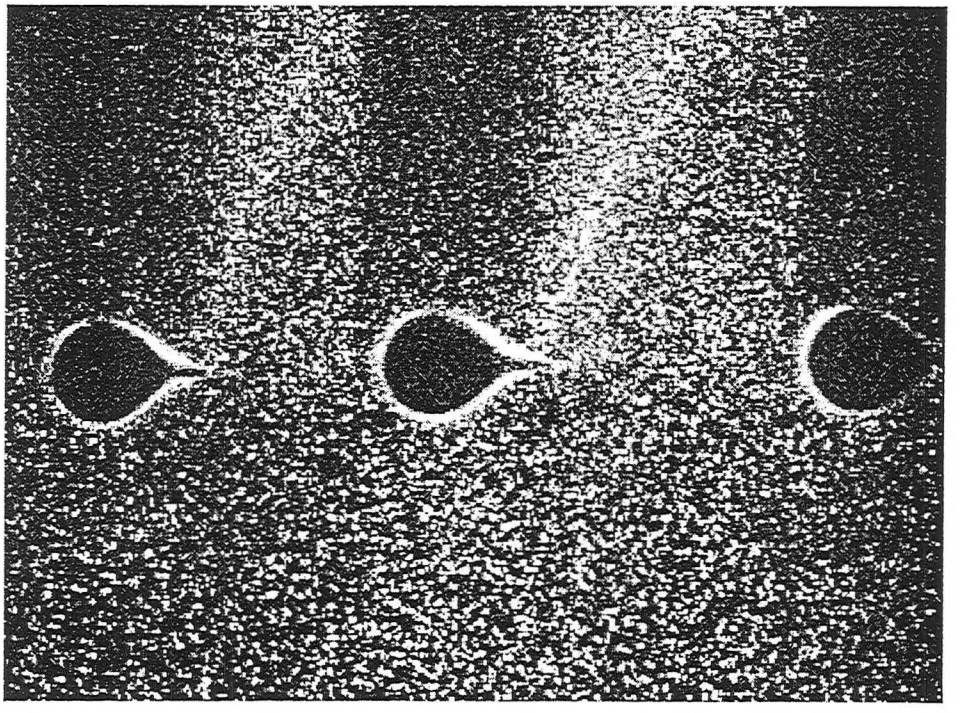


Figure VII.13 : Bulles de $400x10^{-9}$ m^3 pour des polaroïdes verticaux et horizontaux pour la 1ére image, à 45° pour la 2ème image, période d'injection 0,5s

Figure VII.14.a et b : bulles de $400x10^{-9}$ m^3 - période d'injection 0,2 s - solution d'HPC 1%.
Avant coalescence, vitesse ascensionnelle de l'ordre de 0,1 m/s - nombre de Reynolds d'environ 1



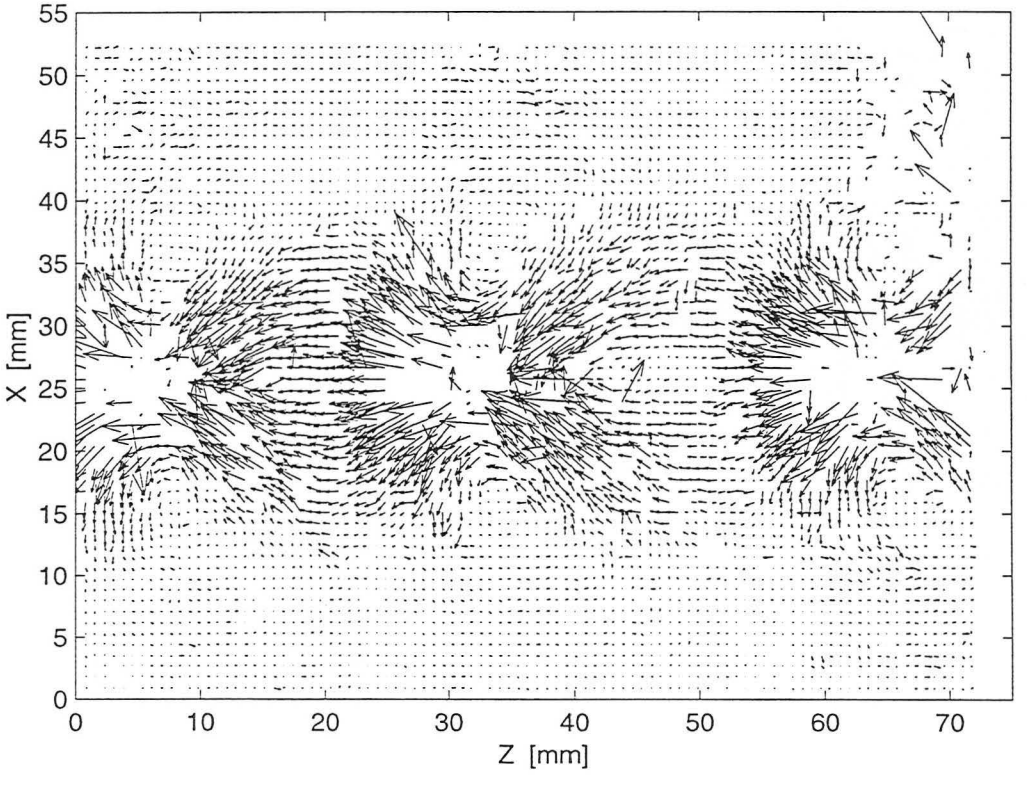
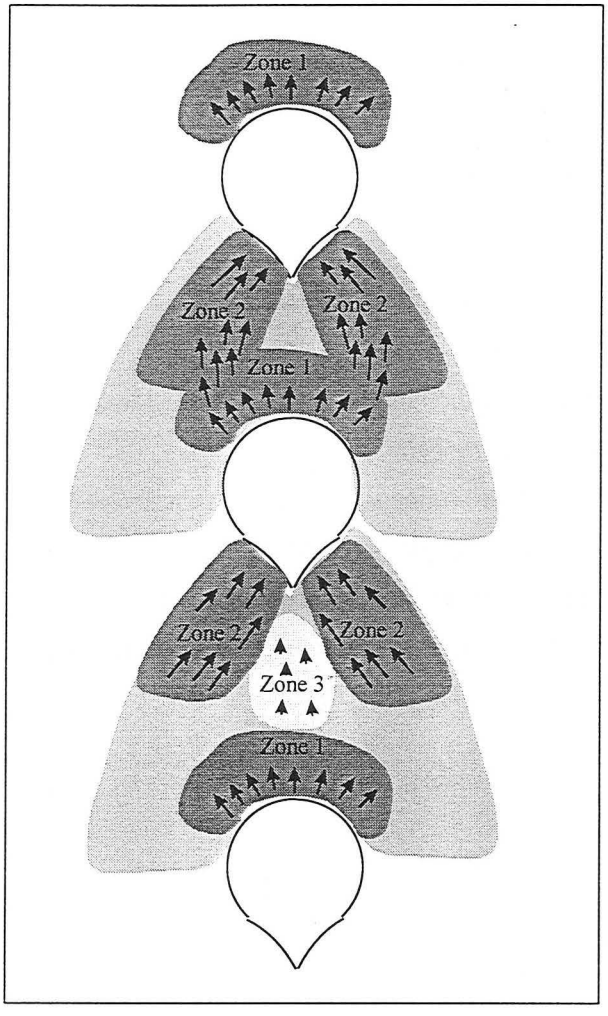


Figure VII.15.a et b : bulles de 600x10^{-9} m^3 - période d'injection 0,2 s - solution d'HPC 1%. Avant coalescence, vitesse ascensionnelle de l'ordre de 0,14 m/s - nombre de Reynolds d'environ 1,8

VII.4.3 Discussion

Les mesures de biréfringence d'écoulement et de P.I.V. concordent pour démontrer l'existence d'interactions fortes entre bulles dans un train. Ces interactions s'intensifient lors du rapprochement des bulles. Cette intensification des interactions se traduit pour le champ de vitesses par la jonction des zones de forts vecteurs vitesses entre les bulles, comme représenté sur la figure VII.16.



Entre la première et la deuxième bulle, les vecteurs vitesses effectuent une jonction entre elles. Cette jonction explique la moindre résistance à l'avancement rencontrée par la bulle qui suit.

La zone 1 correspond à des vitesses importantes du fluide qui est chassé devant la bulle.

Dans la zone 3, la vitesse du fluide est faible, cette zone tend à disparaître lorsque les bulles se rapprochent.

Figure VII.16 Champ de vitesses et de contraintes dans un train de bulles

VII.5 Conclusions et perspectives

Conclusions

La mesure du champ de vitesses et du champ de contraintes autour de bulles isolées donne une image de la traînée qui existent dans le sillage de la bulle.

La biréfringence d'écoulement complétée par des mesures de P.I.V. ont permis de voir l'existence d'interactions fortes entre les bulles dans un train de bulles. Lors de l'approche, l'intensification des contraintes entre bulles ainsi que la jonction des champs de vitesses entre les bulles donnent une

explication de l'accélération de la bulle qui suit lors de la dernière phase d'approche peu avant la collision.

Perspectives

Un outil comme la biréfringence d'écoulement associé à une caméra rapide permettrait d'étudier plus précisément la dernière phase d'approche.

Il serait aussi intéressant d'envisager une étude plus précise de l'amincissement du film liquide entre les deux bulles, de voir les contraintes présentes ainsi que l'important dégagement d'énergie qu'accompagne la rupture du film liquide et d'observer la modification de la forme des bulles une fois coalescées jusqu'à ce qu'elles retrouvent une forme stable.

Améliorations possibles

Pour connaître les contraintes autour de bulles plus petites ou pour pouvoir utiliser des fluides moins biréfringents, quelques améliorations peuvent être faites :

- un miroir parabolique avec en son centre la source lumineuse permettrait d'avoir un faisceau de lumière plus intense, plus parallèle et plus homogène,
- des polaroïds donnant une meilleure extinction lumineuse augmenteraient le contraste,
- des lames quart d'onde $\lambda/4$ de précision, éclairées par une lumière monochrome de longueur d'onde λ, permettraient d'éliminer les lignes neutres dans le champ optique
- un éclairage en lumière blanche, et l'utilisation d'un filtre lumineux pourrait améliorer le contraste.

Chapitre VIII : Champ de vitesses autour de bulles en interactions

Introduction

Dans le chapitre précédent, les interactions entre bulles ont été étudiées par la méthode de biréfringence et par la PIV dans le cas d'une solution d'Hydroxy Propyl Cellulose. Ces solutions sont rhéofluidifiantes et légèrement élastiques. Dans ce chapitre, les interactions entre bulles dans un train sont étudiées dans des solutions très viscoélastiques de PAAm.

Notre étude comporte deux parties :

- La première partie s'intéresse à la modification du champ de vitesses lors de l'approche de deux bulles menant à une coalescence dans une solution viscoélastique de PAAm.
- La deuxième partie est consacrée à une étude comparative des champs de vitesses autour de trains de bulles dans des fluides newtonien, rhéofluidifiant et viscoélastiques. En particulier, la recirculation du fluide induite par un train de bulles y est analysée. Quelques conclusions sur l'efficacité du transfert de matière induit par un train de bulles seront faites au vu de ces résultats.

VIII.1 Evolution du champ de vitesses lors de l'approche de deux bulles

VIII.1.1 Observations expérimentales

Le montage expérimental de la P.I.V. permet de mesurer le champ de vitesses en continu à une fréquence de 15 Hz. Cette possibilité offerte par l'appareillage de Dantec Measurement Technology est mise à profit pour visualiser la façon dont le champ de vitesses est modifié lors de l'approche de deux bulles jusqu'à la coalescence de celles-ci.

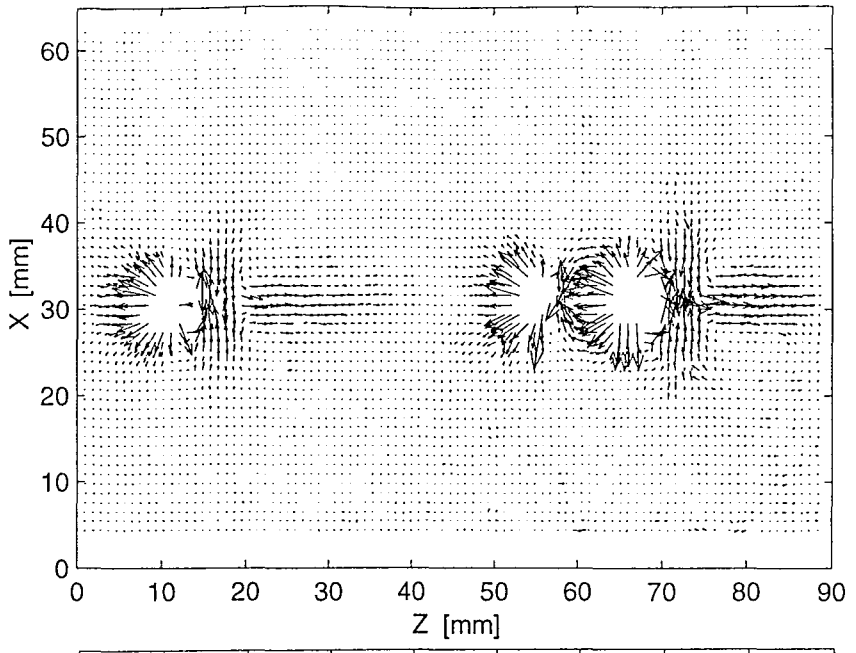
Les différentes séquences montrent une grande reproductibilité dans le mécanisme d'approche. Deux d'entre elles ont été choisies :

- la première séquence a lieu dans une solution de PAAm de 0,75%, pour un débit de $0{,}1 \times 10^{-6}$ m^3/s (bulles de 70×10^{-9} m^3). L'intervalle de temps séparant deux prises de vue est de 1/15s. Les champs de vitesses sont représentés sur les figures VIII.1.a à VIII.1.l.

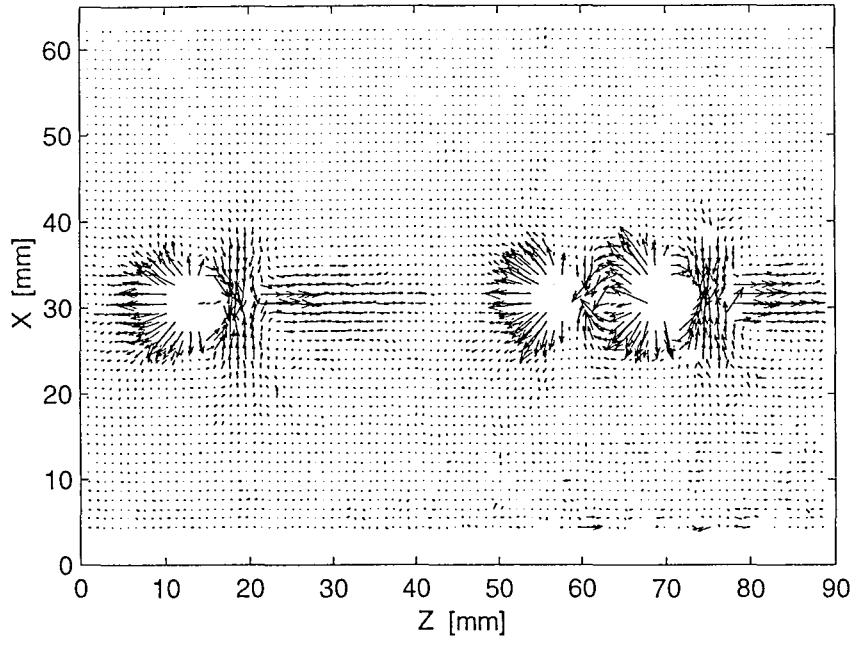
Cette séquence montre en détail la jonction des deux bulles (figure f), la rupture du film liquide séparant les deux bulles (figures i à j) ainsi que les conséquences sur le mouvement du fluide environnant.

Dans la technique de mesure de P.I.V., le champ de vitesses est déterminé à partir de deux images successives séparées de 40×10^{-6} s. En annexe VIII.A, la première de ces deux images montrant le contour des bulles est superposée au champ de vitesses (figures VIII.A.1.a à VIII.A.1.l).

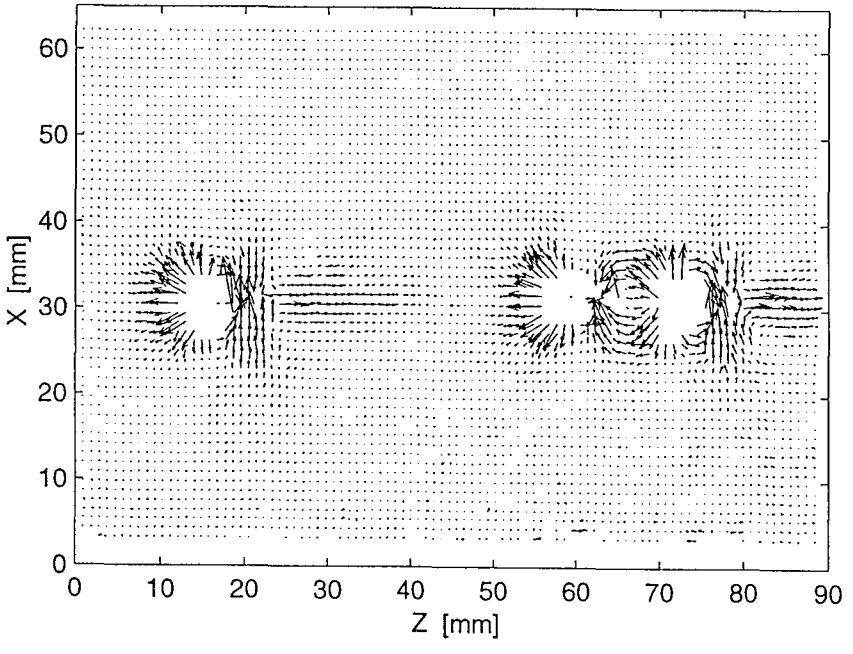
La rupture du film a lieu très précisément entre les deux images successives séparées de 40×10^{-6} s utilisées pour déterminer le champ de vitesse i. Ainsi, sur cette figure VIII.1.i, le champ de vitesses est particulièrement important dans toutes les zones entourant la bulle.



VIII.1.c

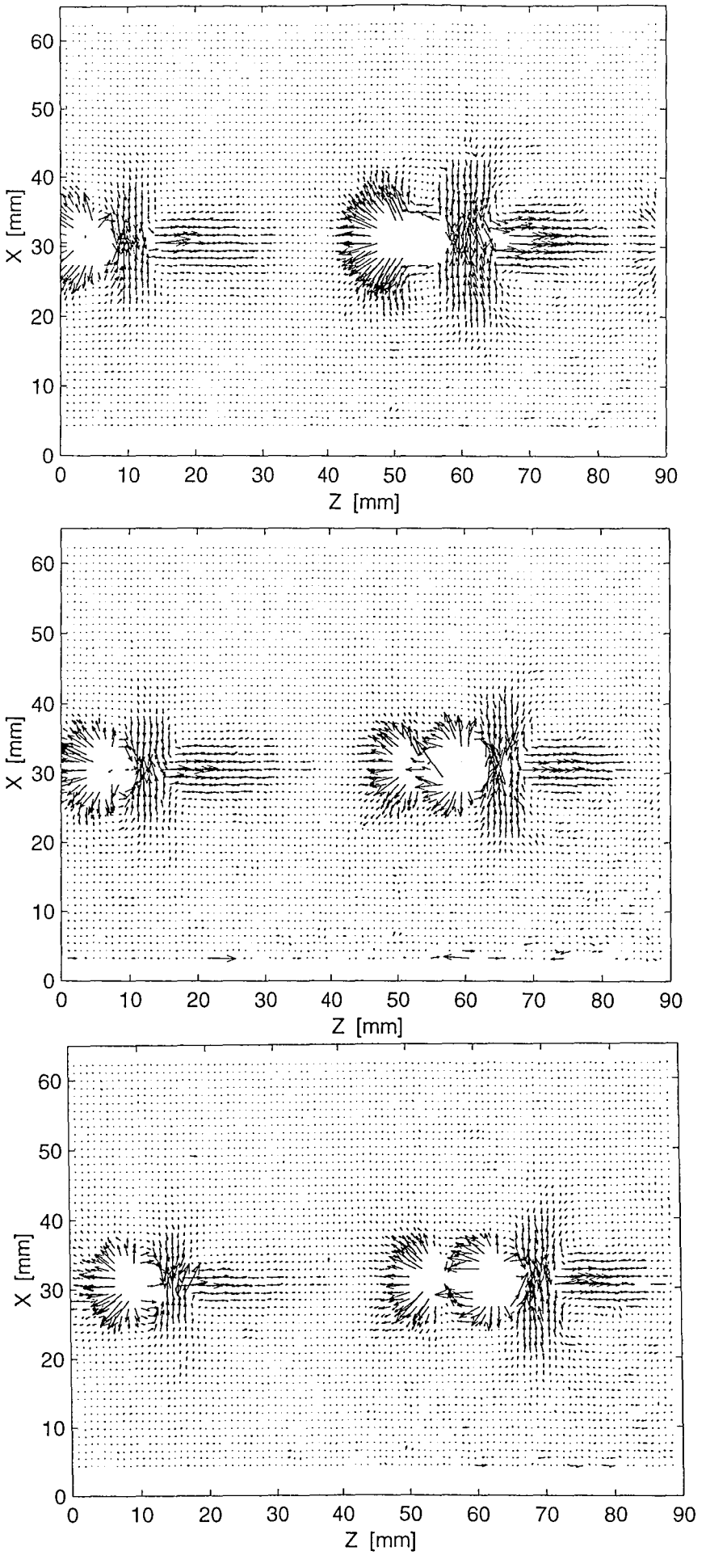


VIII.1.b



VIII.1.a

Figure VIII.1.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,75%, pour un débit de 0,1x10^{-6} m^3/s. Temps entre images 1/15s

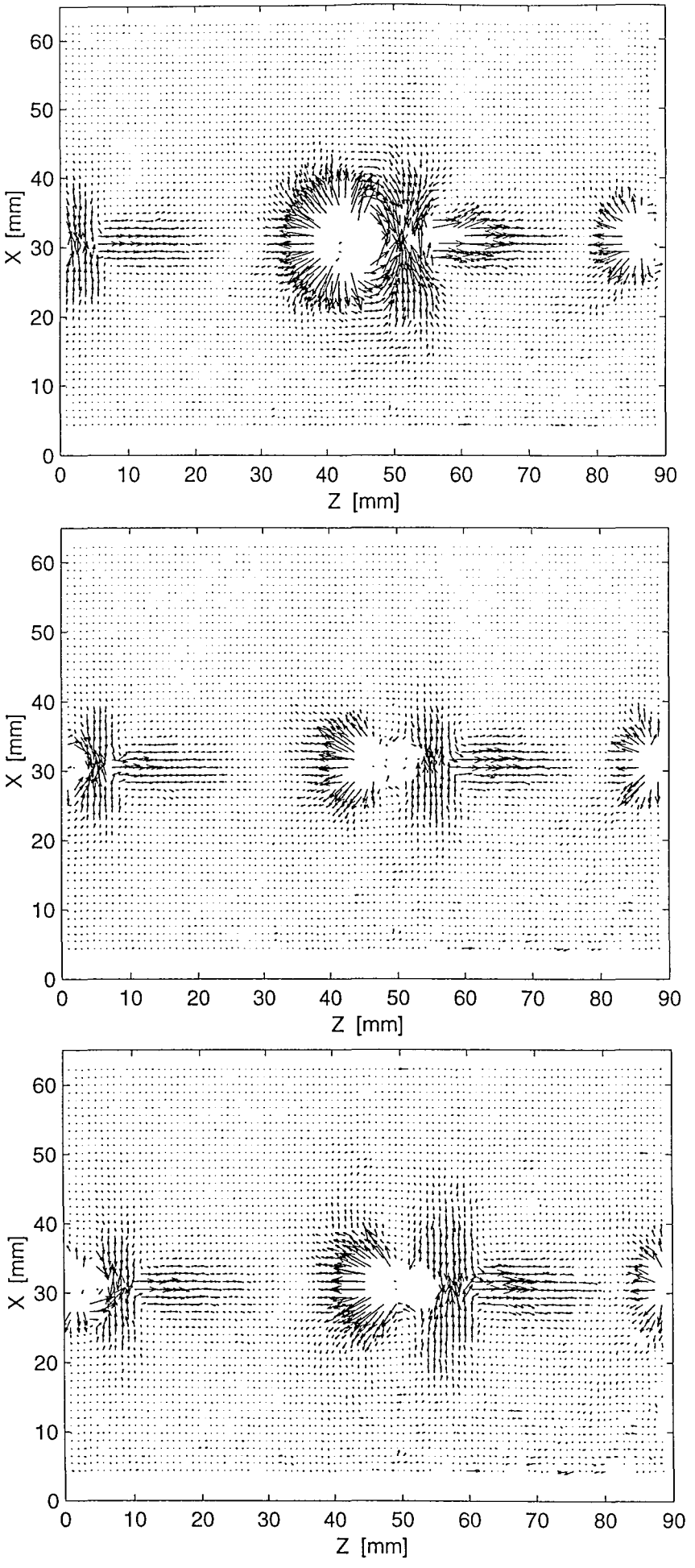


VIII.1.f

VIII.1.e

VIII.1.d

Figure VIII.1.d - e et f : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,75%, pour un débit de 0,1x10⁻⁶ m³/s. Temps entre images 1/15s

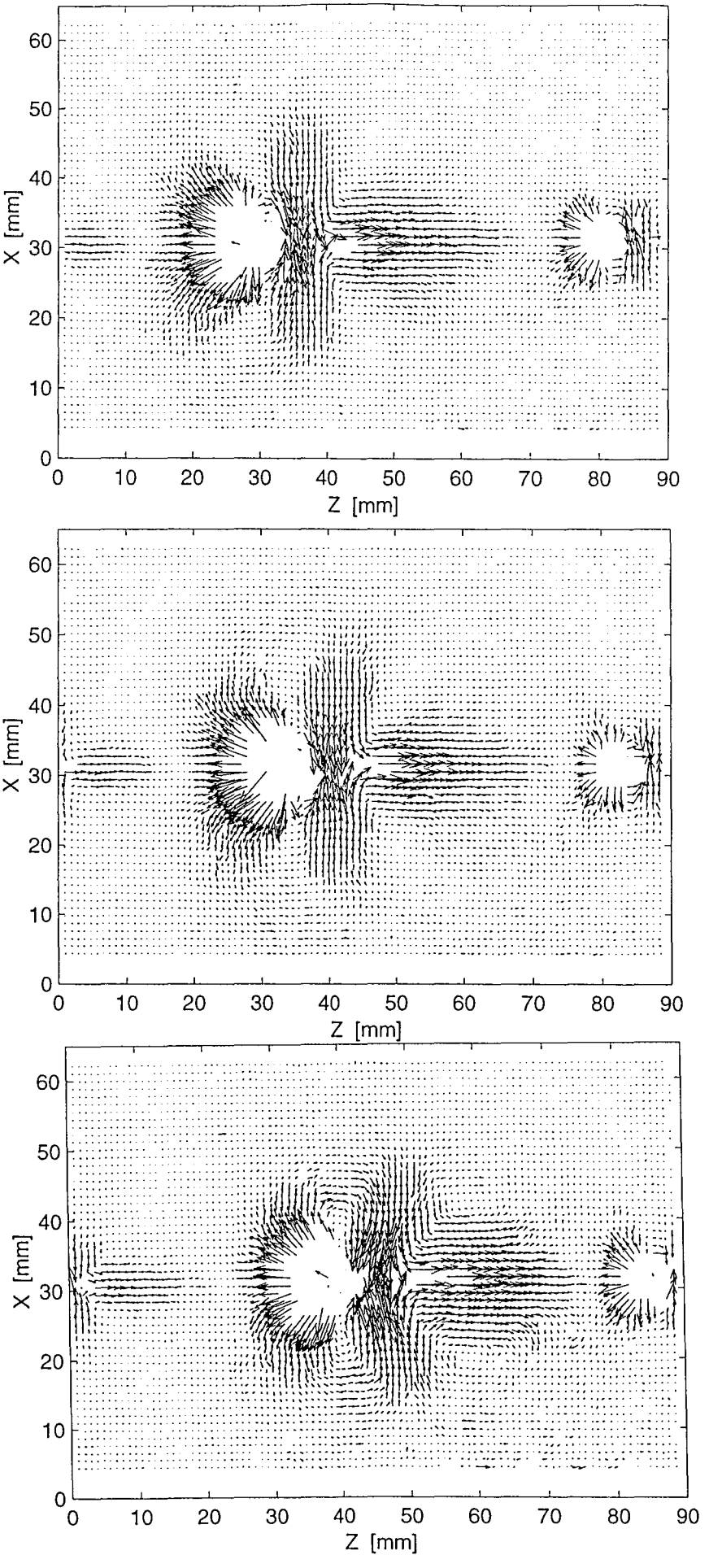


VIII.1.i

VIII.1.h

VIII.1.g

Figure VIII.1.g - h et i : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,75%, pour un débit de 0,1x10^{-6} m^3/s. Temps entre images 1/15s

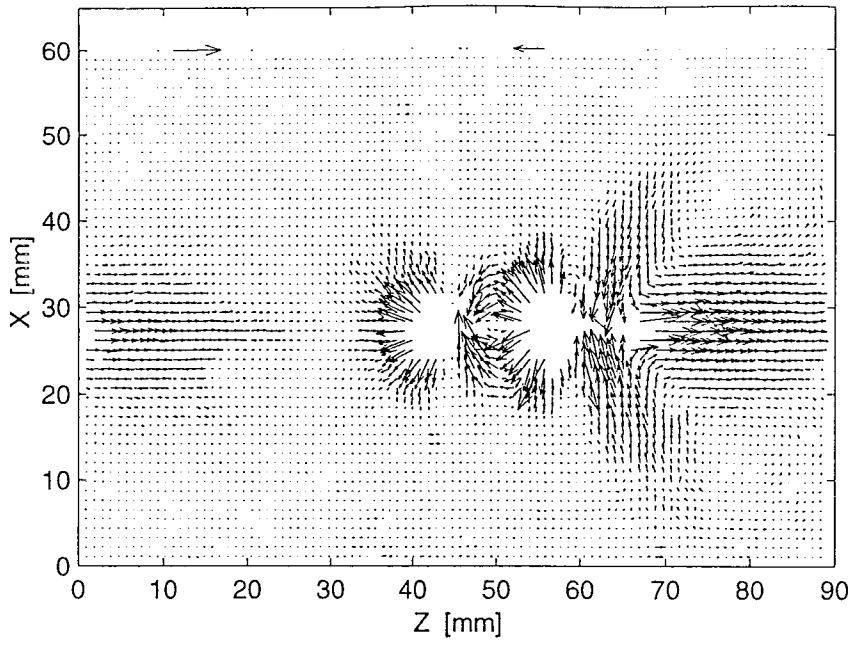


VIII.1.l

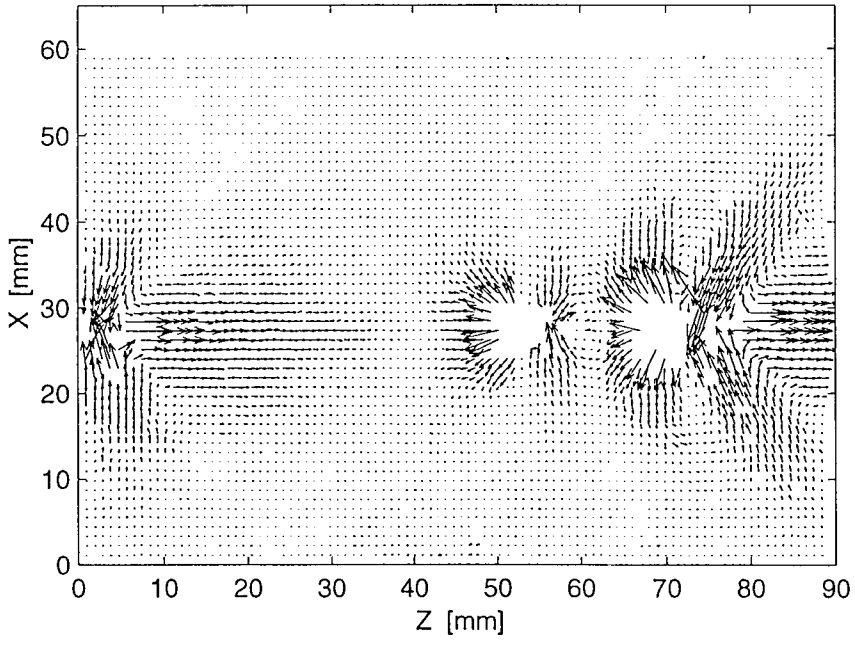
VIII.1.k

VIII.1.j

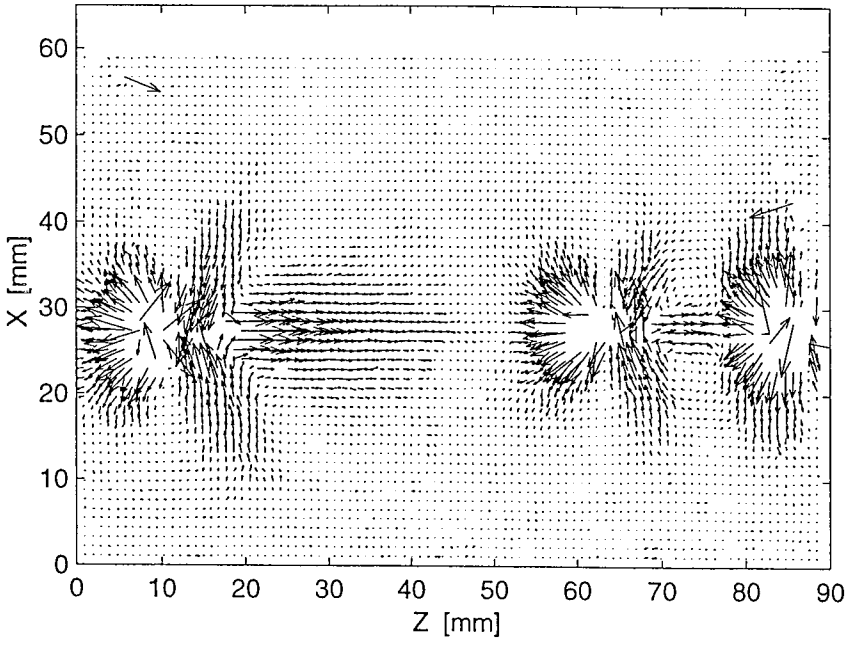
Figure VIII.1.j - k et l : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,75%, pour un débit de 0,1x10^{-6} m^3/s. Temps entre images 1/15s



VIII.2.c

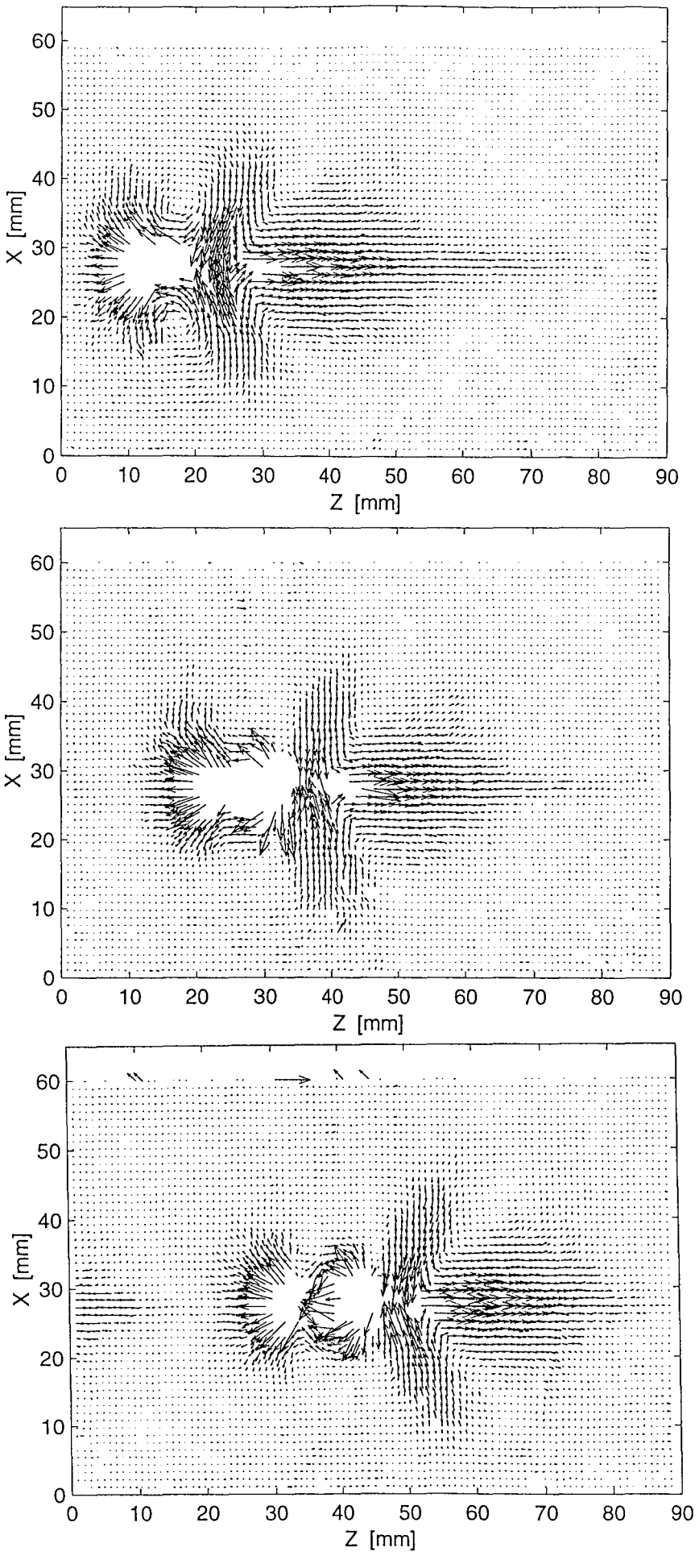


VIII.2.b



VIII.2.a

Figure VIII.2.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,5%. Bulles de $80x10^{-9}$ m^3 injectées à une période de 0,5s. Temps entre images 2/15s.



VIII.2.f

VIII.2.e

VIII.2.d

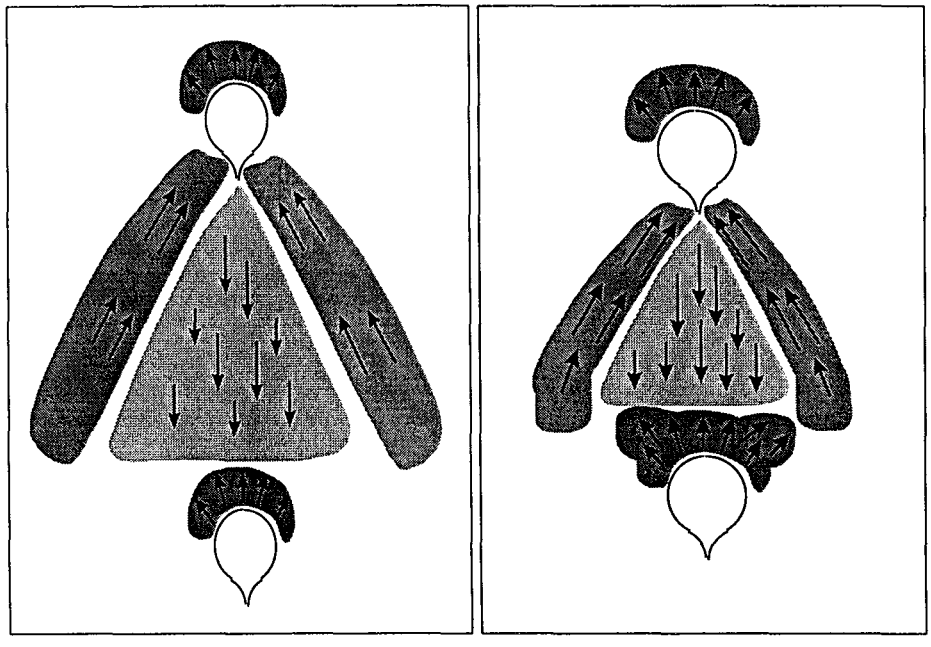
Figure VIII.2.d - e et f : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,5%. Bulles de 80x10^{-9} m^3 injectées à une période de 0,5s. Temps entre images 2/15s.

L'énergie de tension interfaciale libérée par la rupture du film est dissipée sous forme d'énergie cinétique. Sur la figure j, 1/15s plus tard, un sillage négatif plus important est présent. Ce sillage plus large sur cette image fait suite à une réduction de la longueur du système que formaient les deux bulles en contact avant la rupture du film (voir annexe VIII.A). Le fait que le sillage négatif apparaisse avec un retard montre une fois de plus que son origine est à chercher dans l'élasticité du fluide.

- la deuxième séquence a lieu dans une solution de PAAm 0,5%. Les bulles de $80x10^{-9}$ m^3 sont cette fois injectées individuellement à une période de 0,5s par le dispositif utilisant l'électrovanne. Cette séquence montre clairement la modification du champ de vitesses lorsque les bulles encore éloignées se rapprochent (figures VIII.2.a à VIII.2.f). Dans cette séquence, l'intervalle de temps entre deux images est de 2/15s. La disparition du sillage négatif se voit entre les images a et b. La superposition du champ de vitesses et des contours des bulles sont données dans l'annexe VIII.A sur les figures VIII.A.2.a à VIII.A.2.f.

VIII.1.2 Discussion

Suite à l'analyse de ces séquences, l'évolution du champ de vitesses lors de l'approche de deux bulles jusqu'à la coalescence peut se schématiser comme suit (figures VIII.3.a à VIII.3.d) :



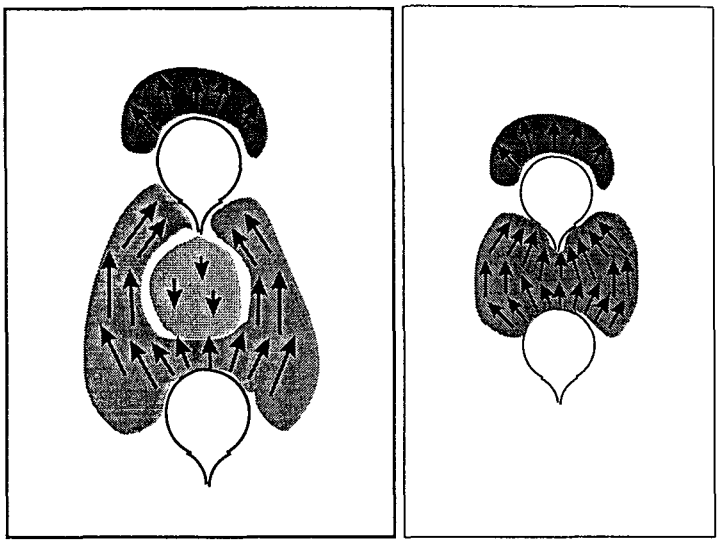


Figure VIII.3.a - d : Evolution du champ des vitesses lors de l'approche de deux bulles menant à la coalescence

Pour cette taille de bulles, lorsque les bulles sont proches, le sillage négatif n'a plus la place de se développer entièrement et disparaît au fur et à mesure de l'approche. Simultanément, une jonction se crée entre les champs de vitesses des deux bulles qui se suivent, d'abord autour du sillage négatif, puis à la place du sillage négatif.
La bulle « qui suit » (voir figure II.7) connaît en phase terminale d'approche une grande accélération.

A partir de ces observations, un certain nombres d'hypothèses explicatives peuvent être faites :
- L'observation du champ de vitesses suggère que l'accélération très rapide que connaît la bulle « qui suit » dans les solutions de PAAm vient en partie du fait que le sillage négatif qui entravait son avancée n'existe plus, et qu'il se forme une jonction des champs de vitesses entre les deux bulles.
- La disparition progressive du sillage négatif lors du rapprochement des bulles renforce l'idée que les contraintes crées par la « bulle en tête » n'ont pas le temps de se relaxer lorsque la bulle « qui suit » arrive (Li et al. 1997). Ceci va dans le sens des observations faites par biréfringence d'écoulement dans une solution d'HPC 1% lors de la phase d'approche. En effet, la jonction de la zone lumineuse entre les bulles, jonction qui s'intensifie lors de l'approche, montre la présence de contraintes et que ces contraintes vont d'une bulle à l'autre.
- La permanence des contraintes montrerait une non-relaxation du fluide ce qui, par rhéofluidifiance du fluide, se traduirait par une moindre viscosité rencontrée par la bulle « qui suit », et expliquerait en partie son accélération.

Perspectives

Pour les fluides newtoniens, l'accélération de la « bulle qui suit » va de pair avec une modification de la forme des bulles. Cette modification de la forme des bulles est aussi observable pour une solution

faiblement élastique de HEC 1% (figure VII.12). Avec les moyens dont nous disposions (caméra 25 images/s), il nous a semblé que lors de la dernière phase de l'approche, la modification de la forme des bulles était nettement moins importante pour les solutions de PAAm que pour les solutions non élastiques ou faiblement élastiques. Une étude de cette dernière phase d'approche par une caméra rapide pourrait, d'une part donner une information quantitative sur l'évolution de la vitesse des deux bulles, d'autre part, permettre d'observer l'évolution de la forme des bulles juste avant qu'elles entrent en contact. L'utilisation de fluides de rhéologie différentes permettrait aussi de faire des comparaisons intéressantes.

Parallèlement, l'influence de la rhéologie des fluides sur l'évolution du champ de vitesses lors de cette dernière phase d'approche pourrait se faire par P.I.V.

VIII.2 Champ de vitesses autour d'un train de bulles

A l'échelle industrielle, le débit de gaz est le paramètre le plus facilement modifiable dans une colonne à bulle. Ainsi, dans cette partie, pour essayer de comprendre comment ce paramètre agit sur l'hydrodynamique d'une colonne à bulles, le champ de vitesses autour d'un train de bulles est mesuré pour trois débits.

VIII.2.1 Conditions expérimentales

Pour évaluer l'influence de la rhéologie des fluides sur le champ de vitesses autour d'un train de bulles, des expériences sont effectuées pour une solution newtonienne de glycérol, une solution rhéofluidifiante de CMC 2% et trois solutions viscoélastiques de PAAm 0,25 - 0,5 et 0,75%. Ces expériences sont réalisées dans une petite colonne en verre 0,06x0,06x0,5 m^3 de section carrée. Le diamètre de l'orifice de la buse est de 0,001 m.

Notre but est de visualiser le champ de vitesses autour des bulles, en amont des bulles ainsi que dans le sillage. Comme précédemment, il a fallu trouver un compromis entre la précision des vecteurs vitesses dans le sillage et l'étendue du champ d'observation. Une taille de fenêtre d'observation de 0,1x0,06 m a été choisie.

Comme dans le cas de l'ascension d'une bulle isolée, le train de bulles ainsi que le champ de vitesses autour des bulles sont axisymétriques dans la gamme des débits étudiés. Ainsi, le champ de vitesses est entièrement déterminé par sa mesure dans un plan contenant l'axe de symétrie.

Le tableau VIII.1 résume les différentes conditions expérimentales, ainsi que quelques caractéristiques du train de bulles comme la taille des bulles et leur vitesse ascensionnelle.

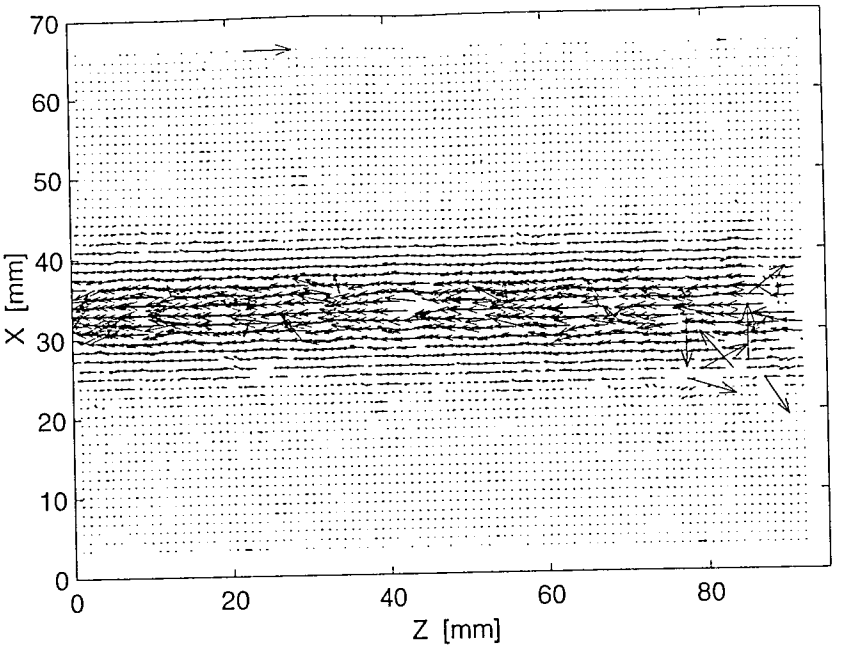
Solution	Débit	Volume bulle	Vitesse bulles	Reynolds
	$x10^{-6}$ [m^3/s]	$x10^{-9}$ [m^3]	[m/s]	
Glycérol 99,5%	0,017	19	0,013	0,05
Glycérol 99,5%	0,1	35	0,027	0,11
Glycérol 99,5%	0,2	57	0,033	0,16
CMC 2%	0,017	23	0,028	0,21
CMC 2%	0,1	32	0,050	0,45
CMC 2%	0,2	40	0,060	0,59
PAAm 0,25%	0,017	27	0,105	3,23
PAAm 0,25%	0,1	41	0,112	3,76
PAAm 0,25%	0,2	53	0,120	4,34
PAAm 0,5%	0,017	40	0,028	0,17
PAAm 0,5%	0,1	56	0,060	0,63
PAAm 0,5%	0,2	73	0,076	0,97
PAAm 0,75%	0,017	43	0,023	0,05
PAAm 0,75%	0,1	70	0,032	0,11
PAAm 0,75%	0,2	90	0,050	0,23

Tableau VIII.1 Conditions expérimentales (pour les solutions de PAAm 0,5 et 0,75%, on est proche de l'apparition des premières coalescences, d'où l'existence de quelques fluctuations dans les vitesses : la vitesse ascensionnelle ainsi que les nombres de Reynolds donnés sont en fait moyennés)

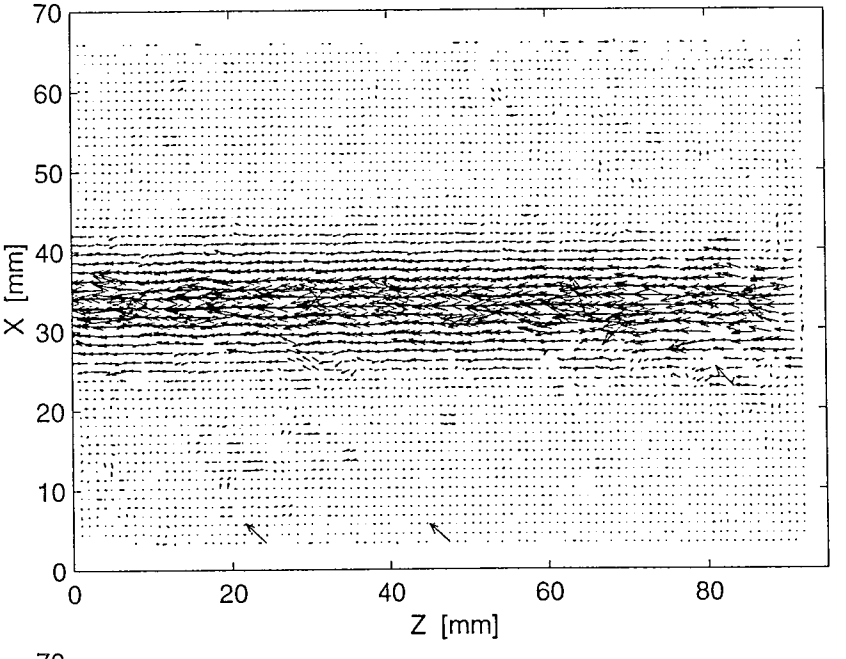
VIII.2.2 Champs de vitesses autour d'un train de bulles

Les champs de vitesses autour d'un train de bulles correspondant aux conditions expérimentales données dans le tableau VIII sont représentés sur les figures VIII.4 à VIII.8.

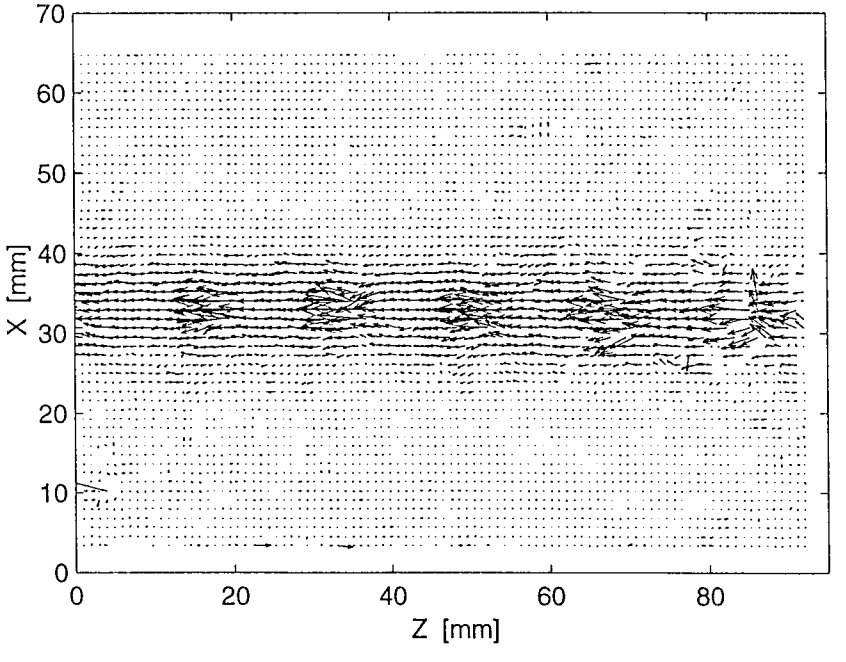
Pour connaître la situation relative des bulles par rapport au champ de vitesses environnant, on a effectué dans l'annexe VIII.B, une superposition des champ de vitesses et d'une image montrant le contour des bulles. En réalité, pour améliorer la lisibilité, une inversion de couleurs est effectuée sur les images donnant le contour des bulles.



VIII.4.c Re = 0,16

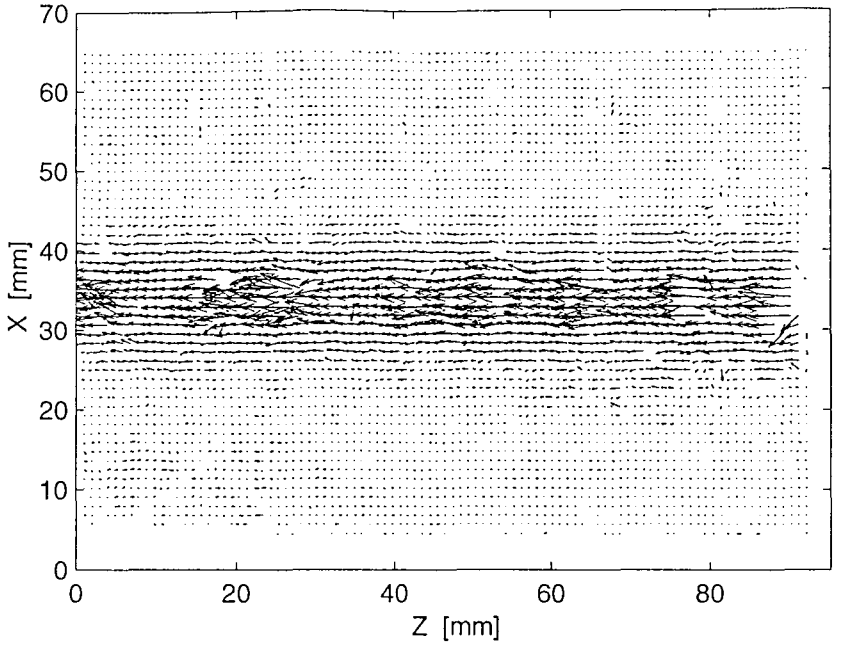


VIII.4.b Re = 0,11

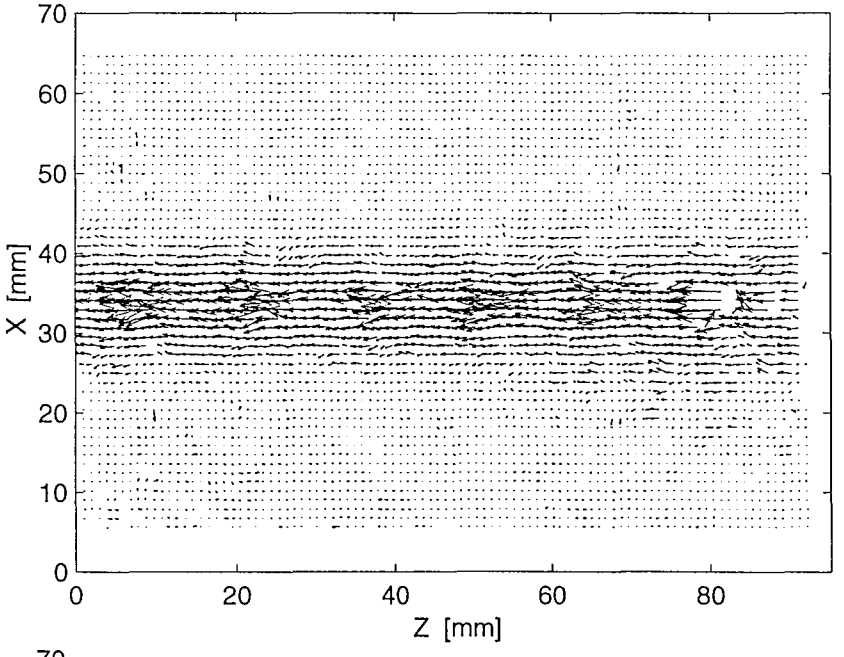


VIII.4.a Re = 0,05

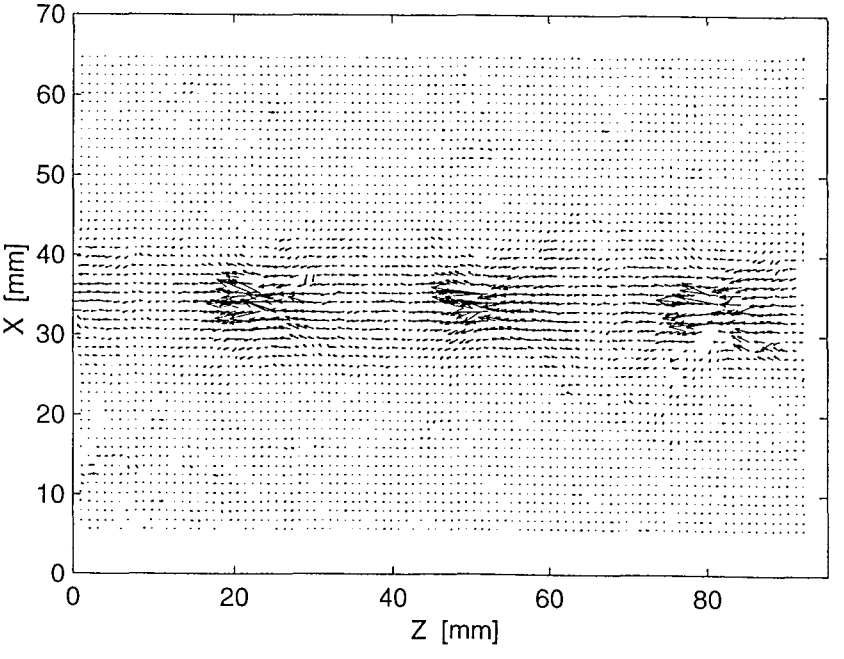
Figure VIII.4.a - b et c : Train de bulles en ascension dans du glycérol, débits 0,017 - 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s respectivement



VIII.5.c Re = 0,59

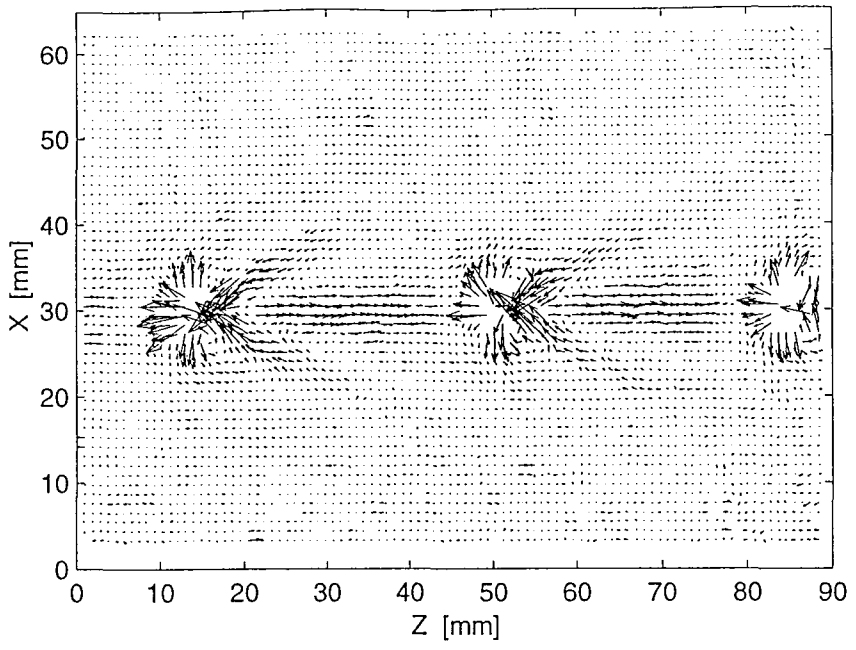


VIII.5.b Re = 0,45

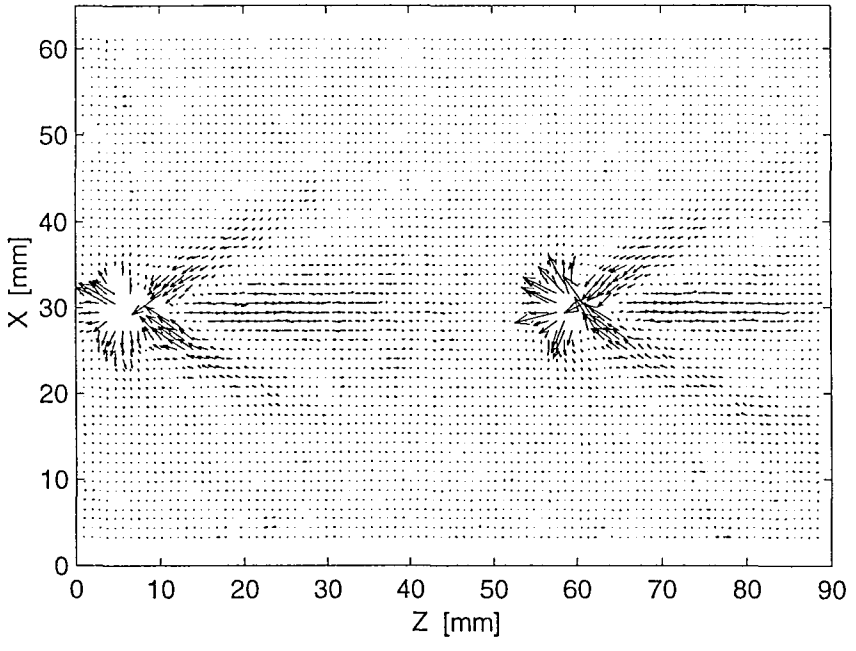


VIII.5.a Re = 0,21

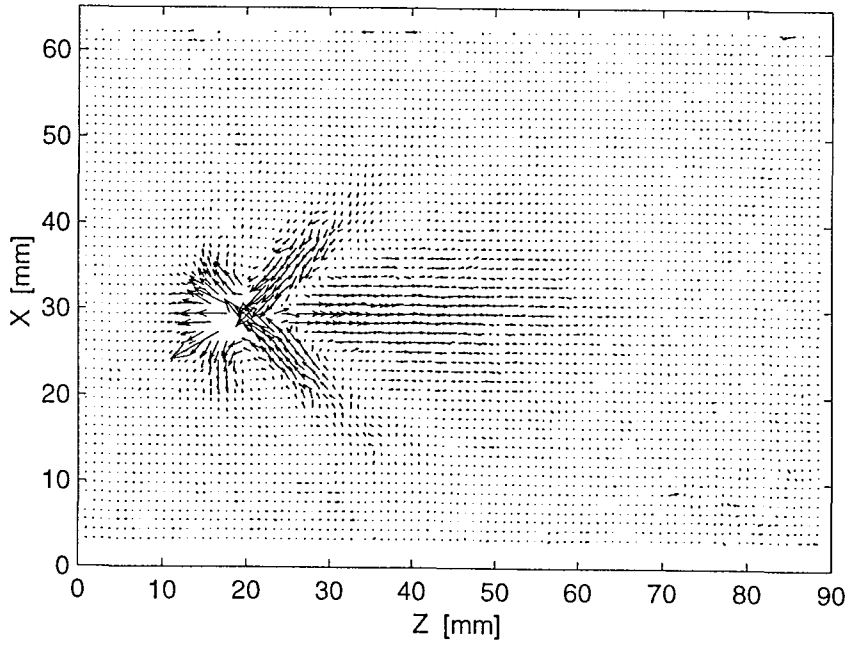
Figure VIII.5.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de CMC 2%, débits 0,017 - 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s respectivement



VIII.6.c Re = 4,34

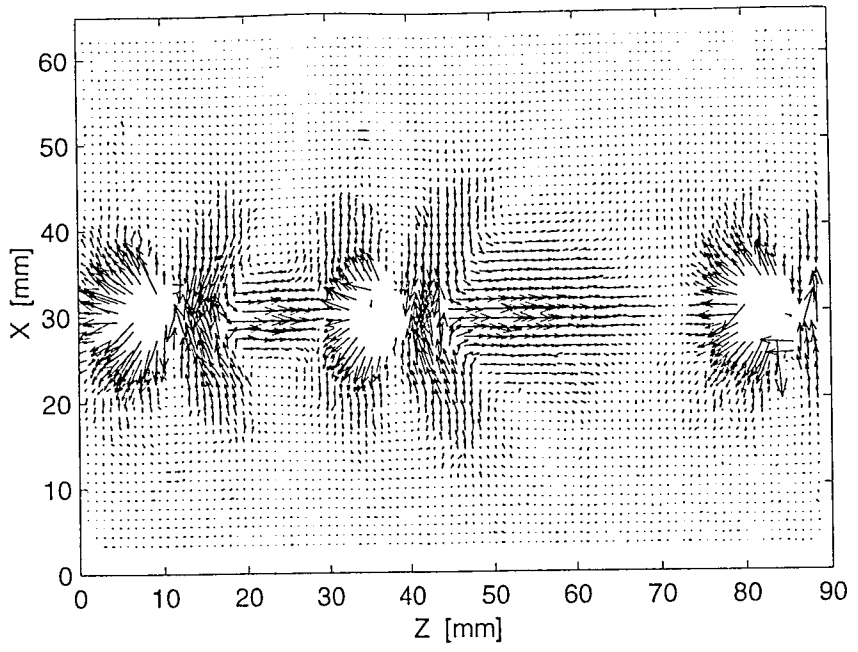


VIII.6.b Re = 3,76

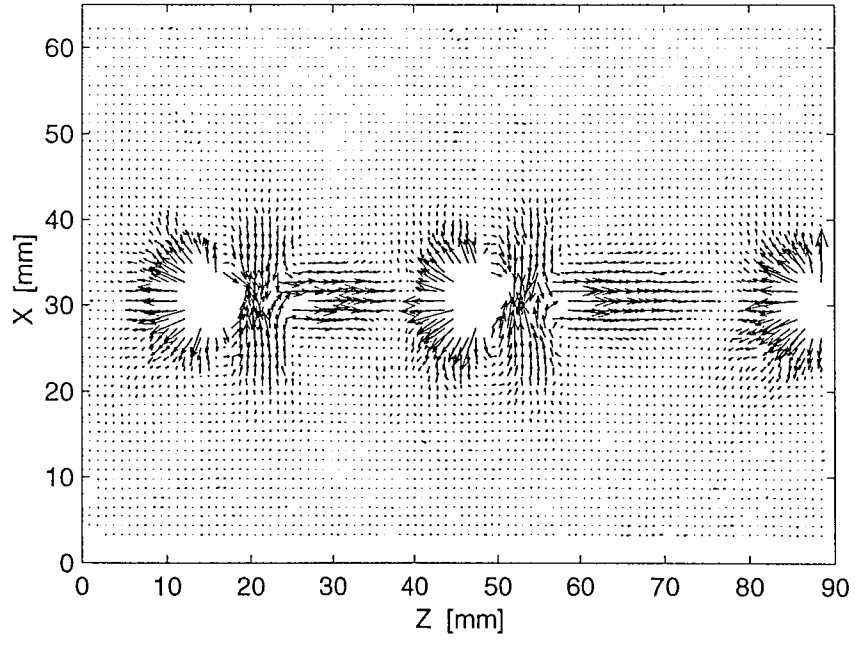


VIII.6.a Re = 3,23

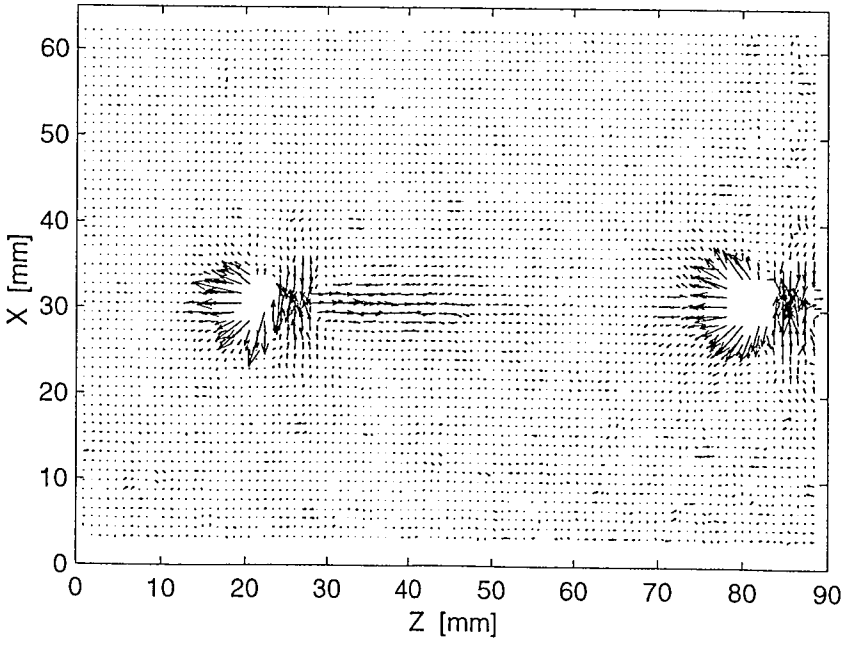
Figure VIII.6.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,25%, débits 0,017 - 0,1 et 0,2x10⁻⁶ m³/s respectivement



VIII.7.c Re = 0,97

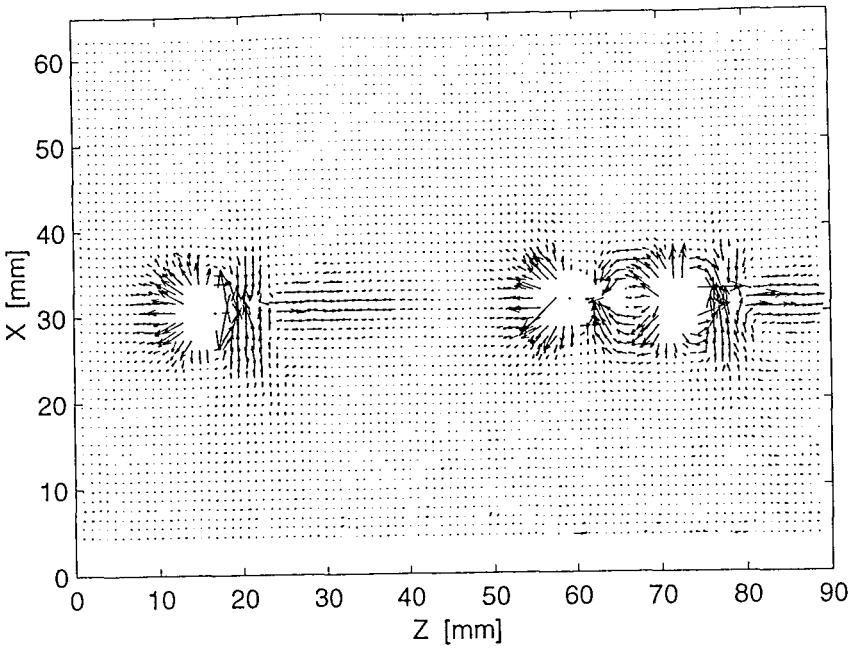


VIII.7.b Re = 0,63

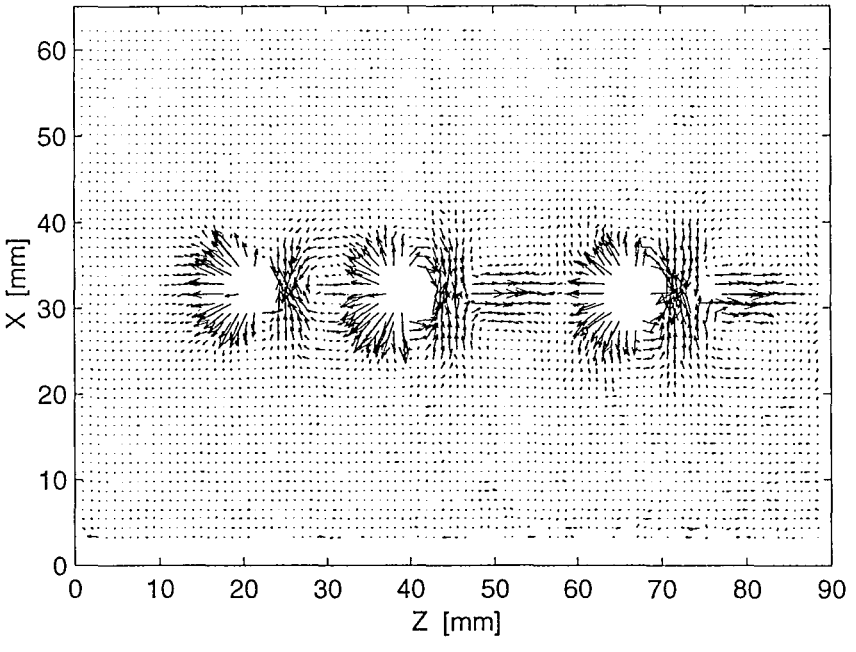


VIII.7.a Re = 0,17

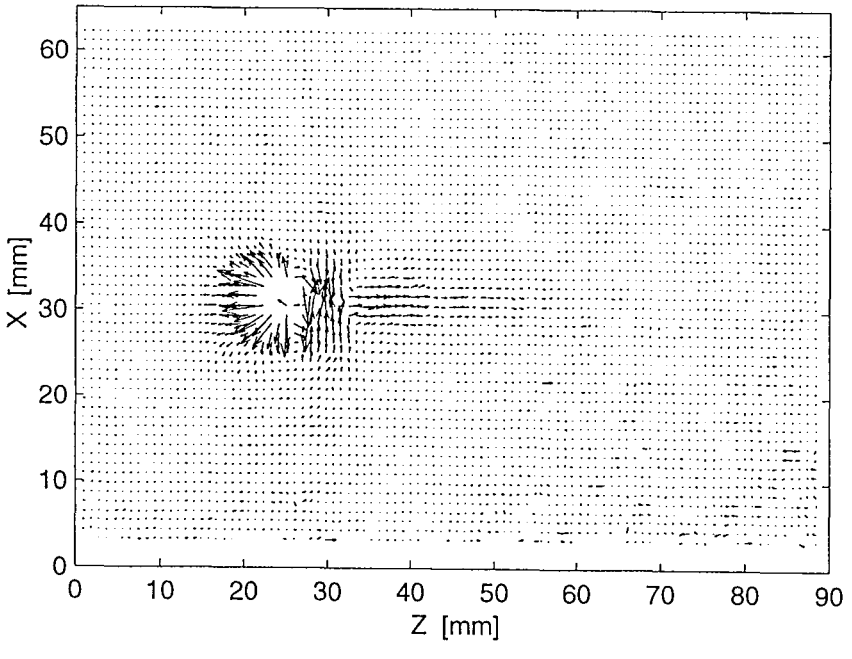
Figure VIII.7.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,5%, débits 0,017 - 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s respectivement



VIII.8.c Re = 0,23



VIII.8.b Re = 0,11



VIII.8.a Re = 0,05

Figure VIII.8.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,75%, débits 0,017 - 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s respectivement

VIII.2.3 Interprétation des résultats

VIII.2.3.1 Comparaison fluide newtonien ou rhéofluidifiant/fluide viscoélastique

Une distinction nette peut être faite entre les champs de vitesses dans les solutions de glycérol ou de CMC d'une part, et les solutions viscoélastiques de PAAm d'autre part.

- Dans le premier cas, le fluide tend à avoir une vitesse ascendante pratiquement homogène dans un cylindre fictif entourant le train de bulles.
- Dans le deuxième cas, à même débit, le fluide autour et entre les bulles ne tend pas du tout à avoir un mouvement ascensionnel. Même lorsque la distance entre les bulles est du même ordre de grandeur, les champs de vitesses sont totalement différents : on comparera le mouvement dans la CMC et le Glycérol pour un débit de $0,017 \times 10^{-6}$ m^3/s, au mouvement dans les solutions viscoélastiques de PAAm pour des débits de 0,1 et $0,2 \times 10^{-6}$ m^3/s.

Remarque 1 : Dans les fluides viscoélastiques, les bulles sont plus éloignées, parce qu'elles sont plus grosses donc moins nombreuses, mais surtout parce que leur vitesse ascensionnelle est plus importante.

Remarque 2 : Crabtree et Bridgwater (1969) ont étudié le mouvement du fluide engendré par un train de bulles dans une colonne à bulles, dans du glycérol. Ils ont très simplement modélisé le mouvement du fluide induit par « une chaîne de bulles » en milieu newtonien visqueux : une ligne de force emprunte le chemin des bulles et entraîne le fluide dans son ascension. La visualisation par P.I.V. du mouvement du fluide autour des bulles valide tout à fait cette modélisation.

VIII.2.3.2 Comparaison bulles isolées/bulles dans un train de bulles

Glycérol ou solution de CMC 2%

Dans ces deux cas, le champ de vitesses dans un train est très différent du champ de vitesses autour de bulles isolées par suite de la jonction des champs de vitesses. Dans un train, les bulles perdent presque totalement leur individualité pour se fondre dans un mouvement d'ensemble.

Solutions viscoélastiques de PAAm

Les bulles ont un comportement identique dans les trois solutions de PAAm. Elles gardent leur individualité, et la forme du champ de vitesses n'est pas fondamentalement modifiée. La distinction des trois zones autour de la bulle est toujours valable :

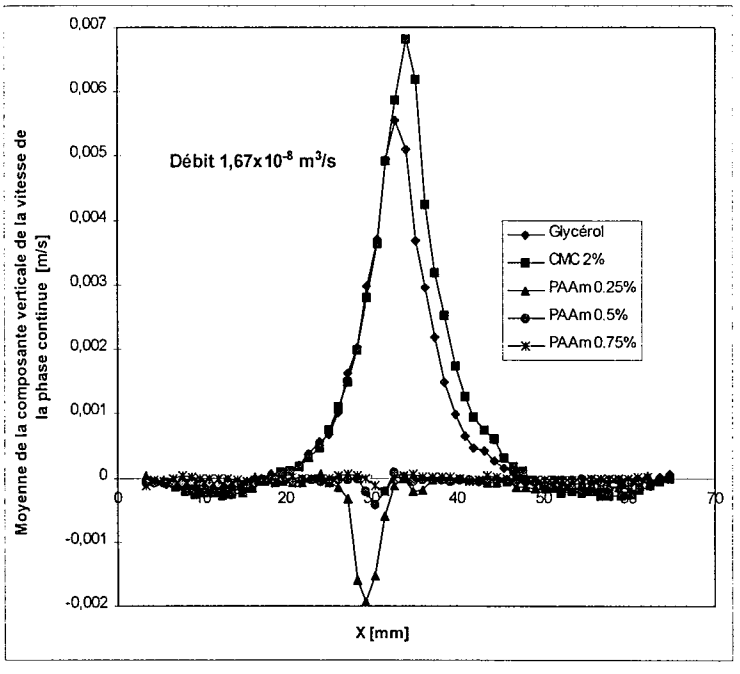
- la zone en amont de la bulle, ou zone de compression, ne diffère pas de celle qui existe pour une bulle isolée

- la zone en forme de cône creux ne semble pas non plus modifiée
- seule la zone du sillage négatif est moins longue du fait de l'arrivée de la bulle qui suit

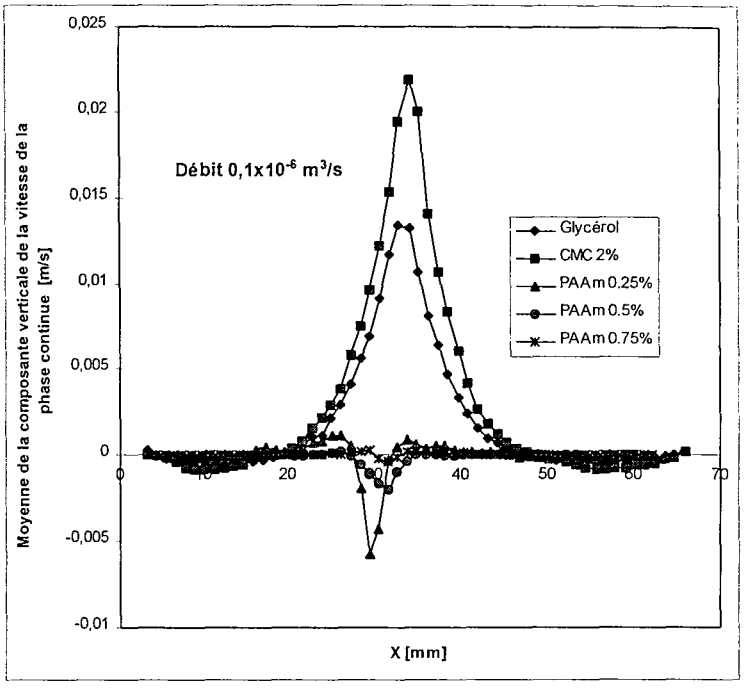
Lorsque les bulles sont assez proches, comme nous l'avons vu dans la partie VIII.1, il y a jonction de la zone en forme de cône creux de la « bulle en tête » avec la zone en amont de la « bulle qui suit », et le sillage négatif ne peut plus apparaître. Ceci se voit pour les débits de 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s pour les solutions de 0,5 et 0,75% de PAAm.

VIII.2.3.3 Influence de la rhéologie des solutions sur les recirculations

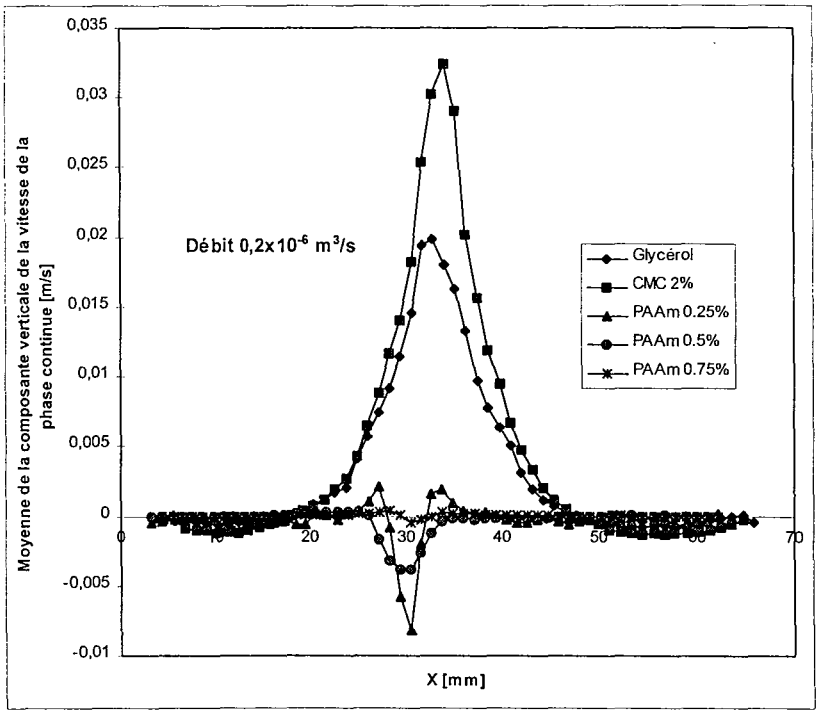
La moyenne de la composante verticale des vecteurs vitesses sur plusieurs axes verticaux et sur un élément répétitif du train de bulles est effectuée à partir des champs de vitesses mesurés par P.I.V.. On en déduit un profil moyen de la vitesse du fluide sur une section.



Figures VIII.9 Profil de la moyenne de la composante verticale de la vitesse pour les différents fluides pour un débit de gaz de 0,017x10^{-6} m^3/s



Figures VIII.10 Profil de la moyenne de la composante verticale de la vitesse pour les différents fluides pour un débit de gaz de 0,1x10-6 m3/s



Figures VIII.11 Profil de la moyenne de la composante verticale de la vitesse pour les différents fluides pour un débit de gaz de 0,2x10-6 m3/s

On constate que dans le cas du glycérol ou de la solution de CMC, le mouvement ascensionnel du fluide induit par le train de bulles est très marqué. Une recirculation du fluide vers le bas près des parois est aussi

visible. Comme on pouvait s'y attendre, plus le débit de gaz est important, plus la vitesse ascensionnelle du fluide autour des bulles (ou recirculation ascendante) est importante.

Dans les cas des solutions de Glycérol et CMC, en comparant le maximum de la vitesse ascensionnelle moyenne du fluide dans le cylindre entourant le train de bulle avec la vitesse ascensionnelle des bulles donnée dans le tableau VIII.1, on constate que la valeur de ce maximum est 50 à 70% plus faible que la vitesse des bulles.

Pour les solutions viscoélastiques, on observe quasiment pas de recirculation malgré des vitesses ascensionnelles des bulles équivalentes ou supérieures. Par contre, sur la ligne formée par le train de bulles, une vitesse négative est observée, ce qui est physiquement difficile à comprendre. Il est probable que l'explication vienne plutôt de l'absence de vecteurs dans une zone très proche de la bulle, comme c'est visible dans l'annexe VIII.B, où le contour des bulles est superposé au champ de vitesses.
Remarque : Le but des expériences de P.I.V. était de mesurer le champ de vitesses autour des bulles et dans la traînée. Le choix de l'échelle de mesure ne permettait pas d'évaluer les vitesses très élevées qui existent près de la bulle.

Une autre expérience a été tentée pour confirmer la faible recirculation dans ces solutions : l'introduction d'une petite quantité de fluide coloré par du permanganate de potassium, au niveau du train de bulle, a permis d'observer le déplacement d'un front fluide coloré. Il fut observé que le déplacement global du fluide était très faible voire inexistant dans notre gamme de débits. En effet, à chaque passage de bulles, le front coloré est déplacé légèrement vers le haut, mais il reprend sa place initiale après le passage de la bulle. Ce n'est que pour des débits plus importants que le déplacement du front coloré fut notable.
Une tendance se dégage de ces mesures des profils de vitesses moyennes : la recirculation du fluide (ou mouvement ascensionnel du fluide autour du train) diminue par augmentation de la concentration en polymère, donc par une augmentation conjointe de la viscosité et de l'élasticité du fluide.

Remarque 1 : Dans le chapitre V, il a été vu que pour les solutions de glycérol et de CMC, la période d'injection n'avait pas d'influence sur la vitesse ascensionnelle sauf lorsqu'elle était très faible (pour une période d'injection de 0,3s, la vitesse ascensionnelle des bulles était plus importante que pour une période d'injection de 1s. Par contre, au-delà d'une période d'injection de 1s, la période d'injection n'a plus d'influence sur la vitesse ascensionnelle). On avait fait l'hypothèse de l'existence d'un mouvement ascendant du fluide. Cette hypothèse trouve ici sa justification expérimentale (voir annexe VIII.C).

Remarque 2 : En faisant certaines approximations assez grossières (assimiler la colonne à section carrée à une colonne cylindrique, considérer que la vitesse du fluide est à symétrie cylindrique dont l'axe de symétrie passe le maximum du profil de vitesses), une intégration du débit de recirculation à partir du profil

de vitesses est possible. Vu les approximations faites, les résultats ne donnent qu'un ordre de grandeur des recirculations qui existent, et l'information obtenue est essentiellement qualitative.
Le tableau VIII.2 résume les résultats de ce calcul. Par circulation montante, on entend le débit de fluide en ascension. Par recirculation descendante, on entend le débit de fluide descendant le long des parois.

	Débits de gaz	[m^3/s]	$0,0167x10^{-6}$	$0,1x10^{-6}$	$0,2x10^{-6}$
Glycérol	circulation montante	[m^3/s]	$5,1x10^{-7}$	$1,4x10^{-6}$	$2,4x10^{-6}$
Glycérol	recirculation descendante	[m^3/s]	$2,3x10^{-7}$	$7,4x10^{-7}$	$1,1x10^{-6}$
CMC 2%	circulation montante	[m^3/s]	$6,7x10^{-7}$	$2,2x10^{-6}$	$3,4x10^{-6}$
CMC 2%	recirculation descendante	[m^3/s]	$3,75x10^{-7}$	$9,8x10^{-7}$	$1,8x10^{-6}$

Tableau VIII.2 Calcul de recirculation du fluide

D'après les calculs, le débit de recirculation descendant est à peu près la moitié du débit ascendant alors qu'en théorie ils devraient être égaux. Le fait que le débit descendant soit plus faible que prévu vient en grande partie de l'approximation faite en considérant la colonne à section carrée comme cylindrique. L'incertitude sur la mesures des petites vitesses de déplacement du fluide peut aussi être partiellement responsable de ce résultat.

Le débit de circulation augmente avec le débit de gaz. En considérant les débits de circulations ascendants, dont l'ordre de grandeur est probablement correct, on peut considérer que dans la gamme de débits étudiée, le débit de recirculation est de 10 et 40 fois plus élevé que le débit de gaz qui en est à l'origine. D'après la modélisation effectuée par Crabtree et Bridgwater (1969) basée sur l'étude d'un train de bulle dans une colonne remplie de glycérol, le débit de recirculation serait de 7 à 55 fois le débit de gaz suivant le diamètre de la colonne. Ces résultats sont du même ordre de grandeur que ceux que nous avons trouvé.

VIII.2.4 Conclusion

En conclusion, nous pouvons affirmer que, pour de faibles débits, la circulation de fluide engendrée par un train de bulles est très faible voire négligeable pour les fluides viscoélastiques comparée à celle existant dans des fluides newtoniens ou rhéofluidifiants. La recirculation du fluide engendrée par un train diminue avec une augmentation de l'élasticité du fluide. Ce comportement du train de bulles dans des fluides viscoélastiques a deux conséquences importantes :

- d'une part, d'un point de vue physique, le faible voire très faible renouvellement du fluide autour du train fait que le train de bulles est toujours en contact avec les mêmes « particules » de fluide. Ceci amplifie l'effet de mémoire du fluide et accentue la présence de contraintes résiduelles non entièrement relaxées ;
- d'autre part, d'un point de vue procédé, la quasi absence de recirculation globale du fluide, ou autrement dit de macromélange induit par le train de bulles nous laisse entrevoir l'existence d'un

très mauvais transfert de matière dans les fluides viscoélastiques comparé au transfert dans des fluides purement visqueux ou simplement rhéofluidifiants. Le transfert de matière dans une colonne à bulles pour un fluide viscoélastique sera défavorisé par une augmentation de l'élasticité du fluide.

VIII.3 Que se passe-t-il à fort débit ?

Dans les expériences précédentes les débits de gaz étaient faibles. En augmentant le débit, les bulles commencent à ne plus être rigoureusement axisymétriques, et connaissent de légères oscillations dans leur trajectoire et dans leur forme. Pour illustrer très brièvement ce qui se passe à ces débits, quelques mesures du champ de vitesses ont été effectuées pour une solution de PAAm de 0,5% dans la grande colonne carrée pour un débit d'environ $6{,}4\text{x}10^{-6}$ m^3/s et des bulles de $512\text{x}10^{-9}$ m^3. La vitesse des bulles est de 0,27m/s, et le nombre de Reynolds de bulle de 10. A ce débit, le sillage négatif serait très important si la bulle était isolée, mais comme une autre bulle suit, le sillage négatif est entravé dans son développement et semble s'enrouler autour des bulles qui suivent comme on peut le voir sur les figures VIII.12 et VIII.13.

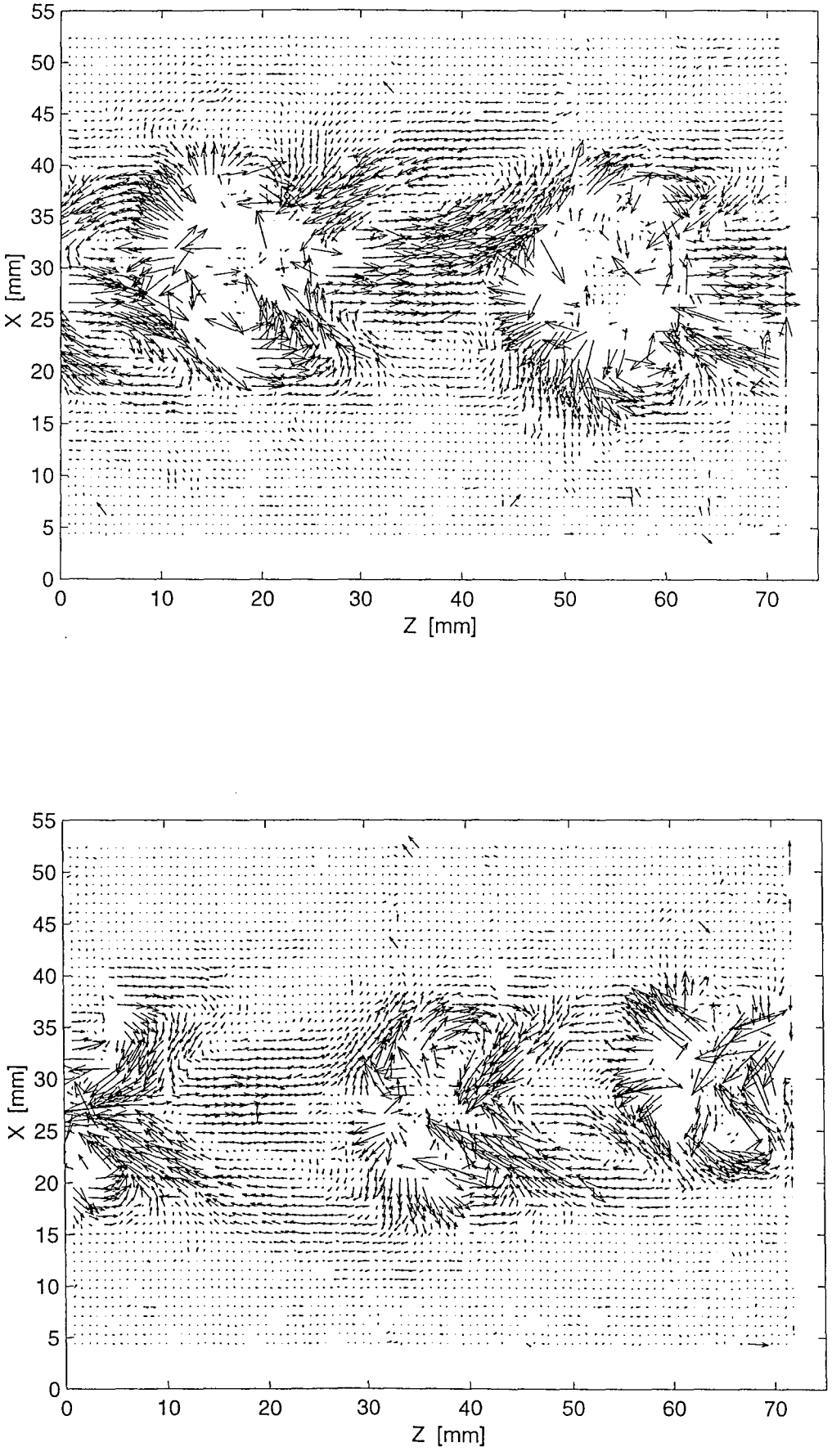
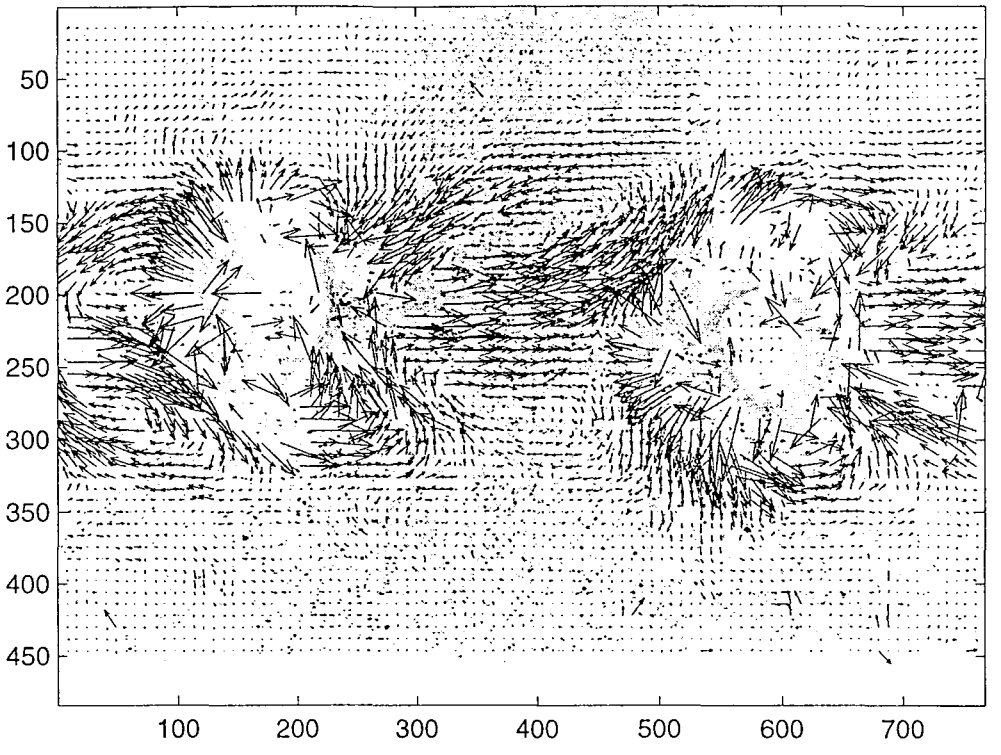


Figure VIII.12.a et b : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,5%, débit de gaz 6,4x10^{-6} m^3/s, volume des bulles 512x10^{-9} m^3, vitesse ascensionnelle des bulles de l'ordre de 0,27 m/s, nombre de Reynolds de 10 environ



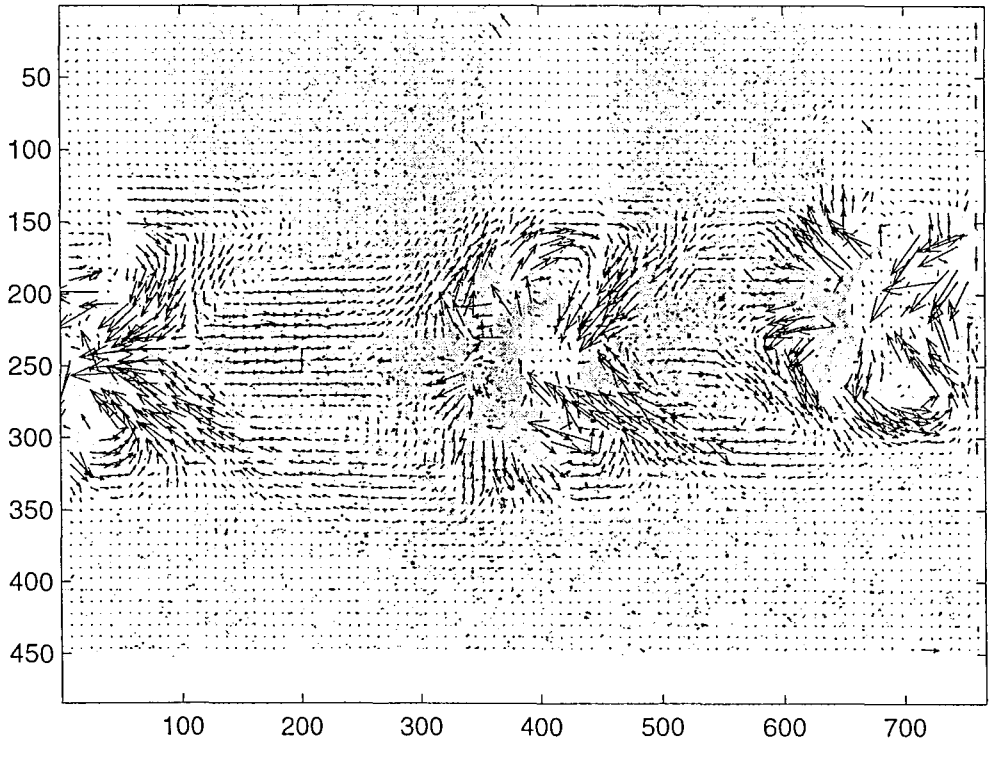


Figure VIII.13.a et b : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,5%, débit de gaz 6,4x10^{-6} m^3/s, volume des bulles 512x10^{-9} m^3, vitesse ascensionnelle des bulles de l'ordre de 0,27 m/s, nombre de Reynolds de 10 environ

Conclusion

Conclusion

L'objectif de cette étude était de mieux comprendre le fonctionnement d'une colonne à bulles en fluide non-newtonien, en insistant particulièrement sur la compréhension des phénomènes d'interactions et de coalescences entre bulles.

Dans une première partie, l'étude s'est située au niveau de l'entité bulle, donc d'un point de vue extérieur et relativement global. L'injection de bulles à intervalles de temps variables a permis de voir que pour des solutions viscoélastiques de PAAm, la période d'injection a une influence sur la vitesse et la forme des bulles alors que pour les solutions de glycérol ou de CMC une telle influence n'existe pas. Le balayage d'une gamme étendue de volumes de bulles montre que l'influence de la période d'injection sur la vitesse ascensionnelle des bulles augmente avec la concentration en polymère et que cette influence est particulièrement importante sur une certaine gamme de volumes de bulles. Cette gamme de volumes de bulles correspond à des bulles dont la vitesse ascensionnelle est comprise entre 0,05 et 0,25 m/s. Quand la concentration en polymère augmente, cette gamme de volumes de bulles où la période d'injection a une forte influence sur la vitesse ascensionnelle, est déplacée vers de plus grands volumes.

Par la suite, une étude plus précise de la coalescence en ligne au sein d'un train de bulles dans les fluides viscoélastiques a montré que l'on peut distinguer trois phases dans l'évolution du train de bulles :

- une première phase près de l'orifice où il n'y a pas encore coalescence
- une deuxième phase où les coalescences sont très nombreuses
- enfin, une dernière phase où elles sont moins nombreuses ; au cours de cette phase, la complexité du système diminue, il semble qu'il y ait une restabilisation du train de bulles.

Enfin, l'étude des interactions entre deux trains de bulles de même débit et d'écartement variable, a montré que pour les fluides viscoélastiques, l'influence mutuelle d'un train sur l'autre n'avait pas d'incidence sur la coalescence, même pour des trains de bulles très rapprochés. Aussi, dans une solution de PAAm 0,75%, les coalescences latérales ne débutent qu'à un débit de gaz élevé. Les coalescences « latérales » sont très peu nombreuses, et largement défavorisées par rapport aux coalescences intra-trains ce qui nous fait penser que la coalescence dans une colonne à bulles est surtout un processus interne au train de bulles. En première approximation, on peut donc considérer qu'une colonne à bulles se comporte comme une juxtaposition de trains de bulles isolés lorsque l'élasticité du fluide est importante.

Dans une deuxième partie, l'étude s'est située plus au niveau du fluide entourant la bulle. Pour cela, deux outils ont été utilisés : la PIV et la biréfringence d'écoulement.

La détermination du champ de vitesses par P.I.V. donne la totalité du champ de vitesses entourant la bulle, ce qui a permis de connaître l'étendue du sillage négatif et de découvrir l'existence d'une zone en forme de « cône creux » qui entoure ce sillage négatif et dont les vecteurs vitesses sont dirigés vers la bulle.

La biréfringence d'écoulement (faite dans une solution d'HPC), donne la distribution qualitative des zones de contraintes autour des bulles. Cette technique a permis de voir que l'approche de deux bulles successives se fait avec une intensification des contraintes.
D'autre part, dans des solutions hautement viscoélastiques de PAAm, la modification du champ de vitesses lors de la dernière phase d'approche jusqu'à la coalescence a été mesurée par P.I.V.. Ces mesures montrent que le sillage négatif disparaît lorsque les bulles sont proches et que la coalescence s'effectue avec un important dégagement de contraintes.

Enfin, pour se rapprocher des problèmes industriels, le champ de vitesses a été mesuré autour d'un train de bulles. Ces mesures montrent d'importantes différences suivant le comportement rhéologique des fluides : pour des fluides newtoniens ou rhéofluidifiants, le train de bulles induit un débit de recirculation du fluide important ; dans les fluides viscoélastiques par contre, le débit de recirculation est très faible voire quasiment nul. Donc, pour un fluide viscoélastique, le macromélange induit par le train de bulles est quasiment inexistant, ce qui a pour conséquence une faible efficacité du transfert de matière en raison de l'absence du renouvellement du fluide.

Comme suite à ce travail, on pourrait étendre l'étude de l'interaction entre de deux trains de bulles à des fluides de propriétés rhéologiques différentes. Cette étude permettrait de mieux évaluer les interactions entre trains.
A partir des champs de vitesses mesurés par P.I.V., les lignes de courants, le cisaillement et éventuellement l'élongation que connaît le fluide, ainsi que le déplacement subi par le fluide peuvent être calculés. Ces calculs basés sur des mesures expérimentales pourraient constituer le point de départ d'une modélisation de l'écoulement autour des bulles en fluides viscoélastiques.

Nomenclature

g accélération de la pesanteur [$m.s^{-2}$]

C concentration [% massique]

C^* concentration critique de passage d'une solution diluée à une solution semi-diluée [% massique]

D diamètre équivalent de la bulle [m]

F force normale [Newton]

G' module élastique [Pa]

G'' module visqueux [Pa]

K indice de consistance [$Pa.s^n$]

n indice d'écoulement

N_1 première différence des contraintes normales [Pa]

N_2 deuxième différence des contraintes normales [Pa]

M_w masse molaire moyenne en masse [g/mol]

R rayon équivalent de la bulle [m]

R rayon du plateau de la géométrie cône-plan du rhéomètre [m]

$R_{gyration}$ rayon de gyration [m]

t_{flow} échelle de temps de l'écoulement [s]

U vitesse ascensionnelle de la bulle [m/s]

V volume de la bulle [m^3]

Symboles grecs

δ angle de perte

ρ masse volumique [kg/m^3]

ρ_l masse volumique du liquide [kg/m^3]

$\rho_{sphère}$ masse volumique de la sphère [kg/m^3]

μ viscosité [Pa.s]

σ tension superficielle [$Newton.m^{-1}$]

τ contrainte [Pa]

λ temps caractéristique du fluide ou du modèle de Carreau [s]

γ déformation

γ_c déformation critique

$\dot{\gamma}$ vitesse de cisaillement [s^{-1}]

η viscosité dépendant du cisaillement [Pa.s]

η_0 viscosité à cisaillement nul [Pa.s]

η_∞ viscosité à cisaillement infini [Pa.s]

ψ_1 coefficient des premières contraintes normales

Nombres adimensionnels

Bo nombre de Bond (ou d'Eotvos) $Bo = \dfrac{\rho d^2 g}{\sigma}$

C_d coefficient de traînée $C_d = \dfrac{\text{F trainée}}{\text{(surface)x(énergie cinétique)}} = \dfrac{6\pi\mu RU}{(\pi R^2)\left(\frac{1}{2}\rho_l U^2\right)}$

Ca nombre de capillarité $Ca = \dfrac{\mu U}{\sigma}$

De nombre de Déborah $De = \dfrac{\lambda}{t_{flow}}$

f facteur de friction, $f = C_d$

Re nombre de Reynolds $Re = \dfrac{\rho U D}{\mu}$

Re nombre de Reynolds généralisé $Re = \dfrac{\rho U^{2-n} D^n}{K}$

We nombre de Weber $We = \dfrac{\rho d u^2}{\sigma}$

Références bibliographiques

Acharya A., Mashelkar R. A. and Ulbrecht J. (1977) *Mechanics of bubble motion and deformation in non-newtonian media* Chemical Engineering Science **32** 863-872

Acharya A. and Ulbrecht J. J. (1978) *Note on the influence of viscoelasticity on the coalescence rate of bubbles and drops* AIChE Journal **24** 2 348-351

Aït-Kadi A., Gremla M. and Carreau P. J. (1988) *A rheological equation of state for diluate polymer solutions with applications to polyelectrolytes* Rheologica Acta **27** 241-254

Aït-Kadi A., Choplin L. and Carreau P. J. (1989) *On correlations of Primary Normal Stresses in Polymer Solutions* Polymer Engineering and Science **29** 18 1265 - 1275

Ambeskar V. D. and Mashelkar R. A. (1990) On the role of stress-induced migration on time-dependent terminal velocity of falling spheres Rheologica Acta **29** 3 182 - 191

Arigo M. T., Rajagopalan D., Shapley N. and McKinley G. H. (1995) *The sedimentation of a sphere through an elastic fluid. Part 1 : Steady motion* J. Non-Newtonian Fluid Mech. **60** 225-257

Arigo M. T. and McKinley G. H. (1997) *The effects of viscoelasticity on the transient motion of a sphere in a shear-thinning fluid* J. Theol. **41** 1 103-128

Astarita G. and Apuzzo G. (1965) *Motion of gaz bubbles in non-newtonian liquids* AIChE Journal **11** 5 815-820

Barnes H. A. (1997) *Thixotropy - a review* J. Non-Newtonian Fluid Mech. **70** 1-33

Batchelor G. K. (1967) *An introduction to fluid dynamics* Cambridge University Press

Becker L. E., McKinley G. H., Rasmussen H. K. and Hassager O. (1994) *The unsteady motion of a sphere in a viscoelastic fluid* Journal of Rheology **38** 2 377-403

Bhaga D. and Weber M. E. (1980) *In-line interaction of a pair of bubbles in a viscous liquid* Chemical Engineering Science **35** 2467-2474

Bhaga D. and Weber M. E. (1981) *Bubble in viscous liquids : shapes, wakes and velocities* J. Fluid Mech. **105** 61-85

Bird R. B., Stewart W. E. and Lightfoot E. N. (1960) *Transport Phenomena* John Wiley & Sons

Bird R. B. Armstrong R. C. and Hassager O. (1987) *Dynamics of polymeric liquids* Second Edition *Volume 1 : Fluid Mechanics* John Wiley & Sons

Bisgaard C. (1983) *Velocity fields around spheres and bubbles investigated by laser-doppler anemometry* Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics **12** 283-302

Bodart C. and Crochet M. J. (1994) *The time-dependent flow of a viscoelastic fluid around a sphere* J. Non-Newtonian Fluid Mech. **54** 303-329

Borthtur A. Sarmah A.,Rhaman M. and Subrahmanyam B. (1996) *Diluate solution of partially hydrolysed polyacrylamide* Indian Journal of Chemical Technology **3** 23-26

Bradna P. Quadrat O. and Dupuis D. (1995a) *The influence of salt concentration on negative thixotropy in solutions of partally hydrolyzed polyacrylamide* Colloïd and Polymer Science **273** 431-425

Bradna P. Quadrat O. and Dupuis D. (1995b) *Negative thixotropy of solutions of partially hydrolyzed polyacrylamide II. The influence of glycerol content and degree of ionization* Colloïd and Polymer Science **273** 642-647

Bush M. B. (1993) *The stagnation flow behind a sphere* Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics **49** 103-122

Bush M. B. (1994) *On the stagnation flow behind a sphere in a shear-thinning viscoelastic liquid* J. Non-Newtonian Fluid Mech. **55** 229-247

Calderbank P. H., Johonson D. S. L. and Loudon J. (1970) *Mechanics and mass transfer of single bubbles in free rise through some Newtonian and non-Newtonian liquids* Chemical Engineering Science **25** 235-256

Cartalos U. and Piau J.M. (1992) *Creeping flow regimes of low concentration polymer solutions in thick solvents through an orifice die* Journal of non-newtonian fluid mechanics **45** 231-285

Cartalos U. and Piau J.M. (1992) *Pressure drop scaling laws and structural stress contributions for complex flows of flexible polymer solutions in thick solvents* Journal of non-newtonian fluid mechanics **44** 37-54

Carreau P. J., Devic M. and Kapellas M. (1974) *Dynamique des bulles en milieu viscoélastique* Rheol. Acta **13** 477-489

Chhabra R. P. and Dhingra S. C. (1986) *Creeping motion of a Carreau fluid past a Newtonian fluid sphere* The Canadian Journal of Chemical Engineering **64** 897-905

Chhabra R. P. (1988) Chapter 9 *Hydrodynamics of bubbles and drops in rheologically complex liquids Encyclopedy of Fluid Mechanics - Volume 7 - Rheology and Non-Newtonian Flows - Nicholas P. Cheremisinoff Editor*

Chan Man Fong C. F. and De Kee D. (1994) *The effect of thermal gradient on the motion of a bubble in a viscoelastic fluid* J. Non-Newtonian Fluid Mech. **53** 165-174

Chaudhari R. V. and Hofmann H. (1994) *Coalescence of gas bubbles in liquids* Reviews in Chemical Engineering **10** 2 131-190

Cho Y. I., Hartnett J. P. and Lee W. Y. (1984) *Non-newtonian viscosity measurements in the intermediate shear rate range with the falling-ball viscosimeter* Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics **15** 61-74

Costes J. and Alran C. (1978) *Models for the formation of gas bubbles at a single submerged orifice in a non-newtonian fluid* Int. J. Multiphase Flow **4** 535-551

Coutanceau M. and Hajjam M. (1982) *Viscoelastic effect on the behaviour of an air bubble rising axially in a tube* Appl. Sci. Res. **38** 199-207

Crabtree J. R. and Bridgwater J. (1969) *Chain bubbling in viscous liquids* Chemical Engineering Science **24** 1755-1768

Crabtree J. R. and Bridgwater J. (1971) *Bubble coalescence in viscous liquids* Chemical Engineering Science **36** 839-851

Cressely R. (1982) *Contribution à l'étude de la biréfringence d'écoulement de solutions macromoléculaires soumises à des gradients transversaux et élongationnels* Doctorat d'Etat

De Gennes (1979) *Scaling Concepts in Polymer Physics* Cornell University Press

De Kee D., Carreau P. J. and Mordarski J. (1986) *Bubble velocity and coalescence in viscoelastic liquids* Chemical Enginneering Science **41** 9 2273-2283

De Kee D., Chhabra R. P. and Dajan A. (1990) *Motion and coalescence of gas bubbles in Non-Newtonian polymer solutions* Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics **37** 1-18

De Kee D. and Carreau P. J. (1993) *Friction factors and bubble dynamics in polymer solutions* The Canadian Journal of Chemical Engineering **71** 183-188

De Nevers N. and Wu J.-L. (1971) *Coalescence in viscous fluids* AIChE Journal **17** 1 182-186

Duineveld P. C. (1996) *The influence of an applied sound field on bubble coalescence* J. Acoust. Soc. Am. **99** 1 622-624

Dupuis D., Lewandowski F. Y., Steirt P. and Wolff C. (1994) *Shear thickening and time dependent phenomena : the case of polyacrylamide solutions* J. Non-Newtonian Fluid Mech. **54** 11-32

Feng J., Huang P. Y. and Joseph D. D. (1996) *Dynamic simulation of sedimentation of solid particles in an Oldroyd-B fluid* J. Non-Newtonian Fluid Mech. **63** 63-88

Gera D. and Gautam (1995) M. *Effect of bubble coalescence on throughflow velocity in a 2-D fluidized bed* Powder Technology **83** 49-53

Ghannam M. T. and Esmail M. N. (1997) *Rheological properties of Carboxymethyl Cellulose* Journal of Applied Polymer Science **64** 2 289-301

Grace J. R., Wairegi T. and Nguyen T. H. (1976) *Shape and velocities of single drops and bubbles moving freely through immiscible liquids* Trans. Instn. Chem. Engrs, **54** 167-173

Haque M. W., Nigam K. D. P., Viswanathan K. and Joshi J. B. (1988) *Studies on bubble rise velocity in bubble columns empoying non-newtonian solutions* Chem. Eng. Comm. **73** 31-42

Harlem O. G. (1990) *High-Deborah-Number flow of a dilute polymer solution past a sphere falling along the axis of a cylindrical tube* Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics **37** 157-173

Harlem O. G., Rallison J. M. and Chilcott M. D. (1990) *High-Deborah-Number flows of dilute polymer solutions* Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics **34** 319-349

Hassager O. (1979) *Negative wake behind bubbles in non-newtonian liquids* Nature **279** 402-403

Hirose T. and Moo-Young M. (1969) *Bubble drag and mass transfer in non-Newtonian fluids : Creeping flow for Power law fluids* Canadian Journal of Chemical Engineering **47** 265 - 267

Hu Y., Wang S. Q. and Jamieson A. M. (1995) *Rheological and Rheooptical Studies of Shear-Thickening Polyacrylamide Solutions* Macromolecules **28** 1847-1853

Joseph D. D., Liu Y. J., Poletto M. and Feng J. (1994) *Aggregation and dispersion of spheres falling in viscoelastic liquids* Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics **54** 45-86

Kanatharana J., Sukpisan J. and Sirivat A. (1996) *On the correlation between the viscosity of partially hydrolysed polyacrylamide solution and the diffusion coefficient in the semidilute concentration regime* Polymer engineering and science **36** 24 2986-2995

Kastner U., Hoffmann H., Donges R. and Hilbig J. (1997) *Structure and solution properties of sodium carboxymethyl cellulose* Colloïds and Surfaces **123-124** 307-328

Kawase Y. and Ulbrecht J. J. (1981) *On the abrupt change of velocity of bubbles rising in Non-Newtonian liquids* Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics **8** 203-212

Kawase Y. and Ulbrecht J. J. (1981) *Newtonian fluid sphere with rigid or mobile interface in a shear-thinning liquid : drag and mass transfer* Chem. Eng. Commun. **8** 213-231

Kawase Y. and Ulbrecht J. J. (1982) *The effect of surfactant on terminal velocity and mass transfer from a fluid sphere in a Non-Newtonian fluid* The Canadian Journal of Chemical Engineering **60** 87-93

King M. J. and Waters N. D. (1972) *The unsteady motion of a sphere in an elastico-viscous liquid* J. Phys. D : Appl. Phys. **5** 141-150

König T. and Buggisch H. (1998) *Birefringence measurements in extensional flow of polyisobutylene around an expanding bubble* Rheol. Acta **37** 182-188

Kulicke W. M. and Kniewske R. (1981) *Long-term change in conformation of macromolecules in solution, 2 Poly(acrylamide-co-sodium acrylate)* Makromol. Chem. **182** 2277-2287

Kulicke W. M., Kniewske R. and Klein J. (1982) *Preparation, characterization, solution properties and reological behaviour of polyacrylamide* Prog. Polym. Sci. **8** 373-468

Leal L. G., Skoog J. and Acrivos A. (1971) *On the Motion of Gas Bubbles in a Viscoelastic Liquid* The Canadian Journal of Chemical Engineering **49** 569-575

Leal L. G. (1979) *The motion of small particles in non-Newtonian fluids* Journal of non-Newtonian Fluid Mechanic **5** 33 - 78

Li H. Z., Mouline Y., Choplin L. and Midoux N. (1997) *Rheological simulation of in-line bubble interactions* AChE Journal **43** 1 265 - 267

Li H. Z., Mouline Y., Choplin L. and Midoux N. (1997) *Chaotic bubble coalescence in non-Newtonian fluids* International Journal of Multiphase Flow **23** 4 713 - 718

Liu Y. J., Liao T. Y. and Joseph D. D. (1995) *A two-dimensional cusp at the trailing edge of an air bubble rising in a viscoelastic liquid* J. Fluid Mech. **304** 321-342

Macosko C. M. (1994) *RHEOLOGY Principles, Measurements and Applications* VCH Publishers, Inc

Manga M. and Stone H. A. (1993) *Buoyancy-driven interactions between two deformable viscous drops* J. Fluid Mech. **256** 647-683

Marrucci G. (1969) *A theory of coalescence* Chemical Engineering Science **24** 975-985

Mc Laughlin J. B. (1996) *Numerical simulation of bubble motion in water* Journal of colloïde and interface science **184** 614-625

Mendelson H. D. (1967) *The prediction of bubble terminal velocities from wave theory* A.I.Ch. E. Journal **13** 2 250-253

Midoux N. (1985) *Mécanique et Rhéologie des fluides en Génie Chimique* Technique et Documentation Lavoisier

Miyahara T., Iwata M. and Takahashi T. (1984) *Bubble formation pattern with weeping at a submerged orifice* Journal of Chemical Engineering of Japan **17** 6 592-597

Miyahara T., Iwata M. and Takahashi T. (1984) *Bubble volume in single bubbling regime with weeping at a submerged orifice* Journal of Chemical Engineering of Japan **17** 6 597-602

Miyahara T., Wang W.-H. and Takahashi T. (1988) *Bubble formation at a submerged orifice in non-newtonian and highly viscous newtonian liquids* Jounal of Chemical Engineering of Japan **21** 6 620-626

Miyahara T. and Yamanaka S. (1993) *Mechanics of motion and deformation of a single bubble rising through quiescent highly viscous newtonian and non-newtonian media* Journal of Chemical Engineering of Japan **26** 3 297-302

Mouline Y. (1996) *Dynamique des bulles de gaz dans des milieux rhéologiquement complexes* Thèse de doctorat INPL

Nagata S. (1975) *MIXING Principles and applications* Kodansha LTD. John Wiley & Sons

Nakonechnyi I. I., Baiburdov T. A. and Kurenkov V. F. (1991) *Destruction of partially hydrolyzed polyacrylamide in aqueous solutions in the presence of various impurities* Journal od applied chemistry of the USSR **64** 5 959-962

Narayanan S., Goossens L. H. J. and Kossen N. W. F. (1974) *Coalescence of two bubbles rising in line at low Reynolds numbers* **29** 2071-2082

Nguyen A. V. (1998) *Prediction of bubble terminal velocities in contaminated water* AIChE Journal **44** 1 226-230

Omran N. M. and Foster P. J. (1977) *The terminal velocity of a chain of drops or bubbles in a liquid* Trans. IChemE **55** 171-177

Rajagopalan D., Arigo M. T. and McKinley G. H. (1996) *The sedimentation of a sphere through an elastic fluid Part 2. Transient motion* J. Non-Newtonian Fluid Mech. **65** 17-46

Riddle M. J., Narvaez C. and Bird R. B. (1977) *Interactions between two spheres falling along their line of centers in a viscoelastic fluid* Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics **2** 23-35

Rodrigue D., De Kee D. and Chan Man Fong C. F. (1996) *An experimental study of the effect of surfactants on the free rise velocity of gas bubbles* J. Non-Newtonian Fluid Mech. **66** 213-232

Rodrigue D., De Kee D. and Chan Man Fong C. F. (1997) *Bubble drag in contaminated Non-Newtonian solutions* The Canadian Journal of Chemical Engineerring **75** 794-796

Ryskin G. and Leal L. G. (1983) *Orthogonal Mapping* Journal of Computational Physics **50** 71-100

Ryskin G. and Leal L. G. (1984a) *Numerical solution of free-boundary problems in fluid mechanics. Part 1 : The finite-difference technique* J. Fluid Mech. **148** 1-17

Ryskin G. and Leal L. G. (1984b) *Numerical solution of free-boundary problems in fluid mechanics. Part 2 : Buoyancy-driven motion of a gas bubble through a quiescent liquid* J. Fluid Mech. **148** 19-35

Ryskin G. and Leal L. G. (1984c) *Numerical solution of free-boundary problems in fluid mechanics. Part 3 : Bubble deformation in an axisymmetric straining flow* J. Fluid Mech. **148** 37-43

Satrape J. V. and Crochet M. J. (1994) *Numerical simulation of the motion of a sphere in a Boger fluid* J. Non-Newtonian Fluid Mech. **55** 91-111

Sigli D. and Coutanceau M. (1977) *Effect of finite boundaries on the slow laminar isothermal flow of a viscoelastic fluid around a spherical obstacle* Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics **2** 1-21

Stewart C. W. (1995) *Bubble interaction in low-viscosity liquids* Int. J. Multiphase Flow **21** 6 1037-1046

Tam K. C. and Tiu C. (1994) *Role of ionic species and valency on the viscoelastic properties of partially hydrolyzed polyacrylalmide solutions* Colloïde & Polymer Science **272** 516-522

Terasaka K. and Tsuge H. (1991) *Mass transfer in highly viscous liquids in a bubble column with constant-flow nozzles* Journal of Chemical Engineering of Japan **24** 4 424-429

Terasaka K. and Tsuge H. (1992) *Bubble formation at an orifice in liquid under highly pressurized conditions* International Journal of Enginering Fluid Mechanics **5** 4 439-457

Terasaka K. and Tsuge H. (1993) *Bubble formation under constant-flow conditions* Chemical Engineering Science **48** 19 3417-3422

Tiefenbruck G. F. and Leal L. G. (1980) *A note on the slow motion of a bubble in a viscoelastic liquid* Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics **7** 257-264

Tomiyama A., Zum I., Sou A. and Sakaguchi T. (1993) *Numerical analisys of bubble motion with the VOF method* Nuclear Engineering an Design **141** 69-82

Tsukada T., Mikami H., Hozawa M. and Imaishi N. (1990) *Theorical and experimental studies of the deformation of bubbles moving in quiescent Newtonian and non-Newtonian liquids* Journal of Chemical Engineering of Japan **23** 2 192-198

Ueyama K., Saeki M. and Matsukata M. (1993) *Development of system for measuring bubble coalescence time by using a laser* Journal of Chemical Engineering of Japan **26** 3 308-314

Yuan H. and Prosperetti A. (1994) *On the in line motion of two spherical bubles in a viscous fluid* J. Fluid Mech. **278** 325-349

Zana E. and Leal L. G. (1978) *The dynamics and dissolution of gas bubbles in a viscoelastic fluid* Int. J. Multiphase Flow **4** 237-262

Zhen R., Phan-Thien N. and Tanner R. I. (1991) *The flow past a sphere in a cylindrical tube : effects of inertia, shear-thinning and elasticity* Rheologica Acta **30** 499-510

Zhen R. and Phan-Thien N (1992) *A bounary element simulation of the unsteady motion of a sphere in a cylindrical tube containing a viscoelastic fluid* Rheologica Acta **31** 323-332

Annexe chapitre II

Annexe II.A : Estimation des pertes de charge à travers les buses

Annexe II.A : Estimation des pertes de charge à travers les buses

II.A.1 Estimation des pertes de charge à travers les buses

Le schéma de la buse est donné sur la figure II.A.1. Le gaz à travers la buse subit : un rétrécissement brusque, un écoulement de Poiseuille dans un cylindre puis une détente à l'air libre.

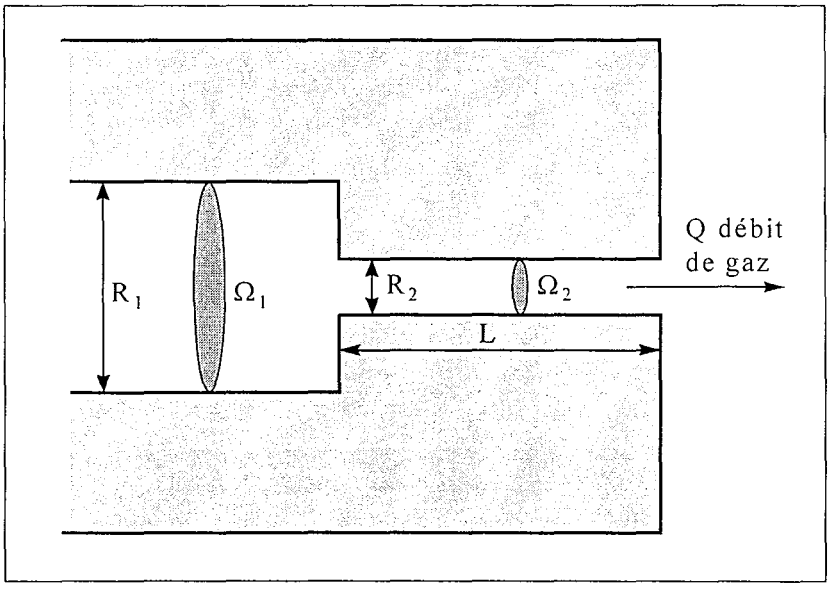


Figure II.A.1 : Ecoulement du gaz à travers la buse

Les pertes de charge sont estimées à travers chacune de ces singularités, en considérant le gaz comme incompressible.

II.A.1.a Pertes de charge à travers le rétrécissement brusque

Ces pertes de charge peuvent être estimées à (Midoux 1985) :

$$\Delta P = \rho g \Delta H = \rho \frac{U_2^2}{2} \left(\frac{\Omega_2}{\Omega_c} - 1 \right)^2 = \frac{\rho Q^2}{2 \Omega_2^2} \left(\frac{\Omega_2}{\Omega_c} - 1 \right)^2$$

Q débit de gaz [m^3/s]

U_2 vitesse du fluide à travers le cylindre de rayon R_2 [m/s]

Ω_1 section avant le rétrécissement brusque $\Omega_1 = \pi R_1^2$

Ω_2 section après le rétrécissement brusque $\Omega_2 = \pi R_2^2$

Ω_c section contractée de l'aire après le rétrécissement

ρ masse volumique du gaz 1,15 kg/m^3

ΔP pertes de charge [Pa]

Pour notre rétrécissement (passage d'une section cylindrique de rayon $R_1 = 2x10^{-3}$ m à un rayon de $R_2 = 0,5x10^{-3}$ m), Ω_c / Ω_2 est estimé à 0,6 (Midoux 1985).

II.A.1.b Pertes de charge à travers l'écoulement de Poiseuille

Les pertes de charge à travers la partie cylindrique de la buse peuvent être estimées en considérant l'écoulement à travers cette partie de la buse comme un écoulement de poiseuille dans un cylindre.

$$\Delta P = \frac{8\eta L Q}{\pi R_2^4}$$

L longueur de l'orifice $5x10^{-3}$ m

R_2 rayon de l'orifice $0,5x10^{-3}$ m

η viscosité de l'air $1,75x10^{-5}$ Pa.s

Q débit volumique [m^3/s]

II.A.1.c Pertes de charge lors de la détente

Cette détente à l'air libre peut être considérée comme un élargissement brusque débouchant sur un milieu infini.

$$\Delta P = \rho g \Delta H = \frac{\rho U_2^2}{2}\left(1 - \frac{\Omega_2}{\Omega_3}\right)^2 = \frac{\rho Q^2}{2\Omega_2^2}\left(1 - \frac{\Omega_2}{\Omega_3}\right)^2$$

Comme on débouche sur un milieu infini, $\Omega_3 \rightarrow \infty$, ainsi, les pertes de charge deviennent :

$$\Delta P = \frac{\rho Q^2}{2\Omega_2^2}$$

II.A.2 Applications aux buses utilisées

II.A.2.a Pertes de charge dans la buse en PVC de la petite colonne

En tenant compte des singularités précédentes, les pertes de charge totales dans la buse sont :

$$\Delta P = \frac{\rho Q^2}{2(\pi R_2)^2}\left(\frac{\Omega_2}{\Omega_c} - 1\right)^2 + \frac{8\eta L Q}{\pi R_2^4} + \frac{\rho Q^2}{2(\pi R_2)^2}$$

R_1 rayon de l'orifice $2x10^{-3}$ m

R_2 rayon de l'orifice $0,5x10^{-3}$ m

L longueur de l'orifice $5x10^{-2}$ m

Q débit volumique m^3/s

η viscosité de l'air $1,75x10^{-5}$ Pa.s

ρ masse volumique du gaz 1,15 kg/m^3

Numériquement, $\Delta P = 4,07x10^{11}Q^2 + 3,56x10^7Q + 9,16x10^{11}Q^2$

Les pertes de charge mesurées expérimentalement par un manomètre différentiel à alcool et les pertes de charge calculées sont comparées sur la figure II.A.2,

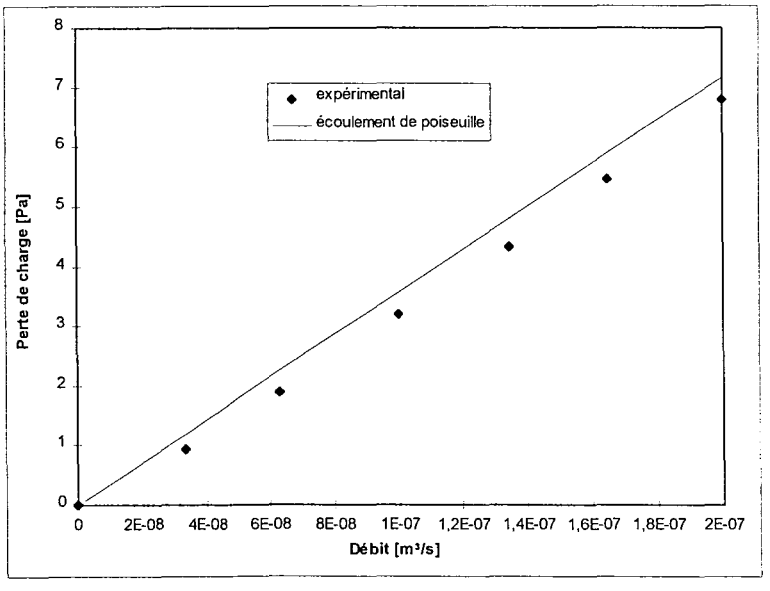


Figure II.A.2 : Pertes de charge dans la buse en PVC de la petite colonne

II.A.2.b Pertes de charge dans la buse en inox de la grande colonne

Les pertes de charge dans la buse en inox peuvent aussi être estimées par calcul. La longueur de la buse est L = 10^{-2} m. Les pertes de charge mesurées expérimentalement et les pertes de charge obtenues par calcul sont comparées sur la figure II.A.3,

Numériquement, $\Delta P = 4{,}07 \times 10^{11} Q^2 + 7{,}13 \times 10^{6} Q + 9{,}16 \times 10^{11} Q^2$

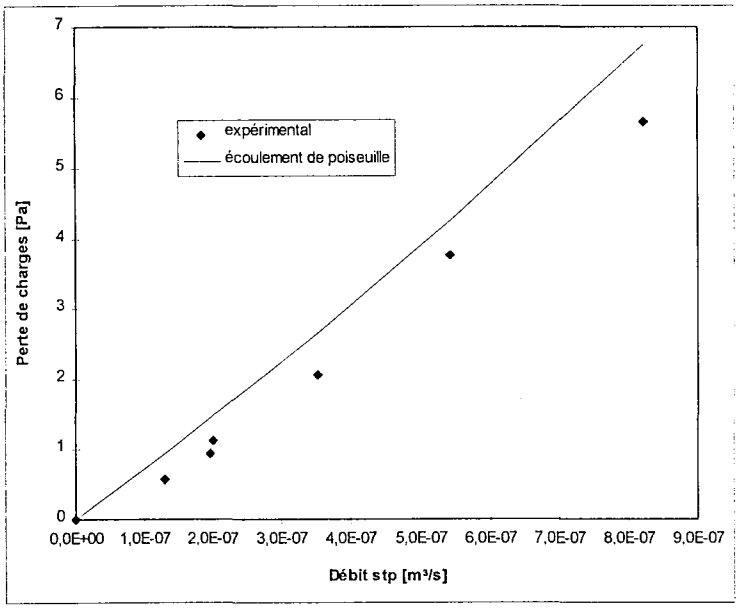


Figure II.A.3 : Pertes de charge à travers la buse en inox de la grande colonne

Dans les deux cas, on observe une bonne concordance entre les mesures expérimentales et le calcul des pertes de charge dans la buse.

Annexes chapitre III

Annexe III.A : Propriétés des solutions de CMC et PAAm

Annexe III.B : Thixotropie des solutions

Annexe III.C : Modèle de Maxwell généralisé appliqué aux solutions de PAAm

Annexe III.A Propriétés des solutions de CMC et PAAm

Sous l'impulsion de De Gennes (1979), de nombreuses études ont été faites dans le domaine de la conformation des polymères. De Gennes (1979) fut un des premiers à étudier les conformations des polymères en solution en fonction de leur concentration. Par exemple, il définit très précisément C*, ou « overlap concentration » : concentration de passage d'une solution semi-diluée à une solution diluée. Nous présentons ici quelques résultats récents sur les propriétés des solutions de CMC et PAAm.

III.A.1 Propriétés des solutions de CMC

La CMC est un agent épaississant, liant et stabilisateur d'émulsion (Ghannam et Esmail 1997). Elle est largement utilisée aussi bien dans l'industrie agro-alimentaire que dans l'industrie papetière, textile, pétrolière ou pour la fabrication de peinture.

Par la présence du groupement carboxy, la CMC est un polyélectrolyte. Elle porte en effet une charge sur chaque motif monomère. La présence de charges crée des répulsions électrostatiques qui vont influer sur la conformation de la macromolécule en solution. Par exemple, en solution diluée, de part la répulsion électrostatique de leurs charges, les chaînes de CMC sont en conformation étendue, ou déployée, tandis qu'en solution semi-diluée, ces mêmes chaînes de polymère sont sous forme de pelote.

Kästner et al. (1997) ont étudié l'évolution de la structure de solutions de CMC de masse molaire allant de 9.000 à 360.000 g/mol en fonction de la concentration. La figure III.A.1 représente l'évolution des interactions entre chaînes et des différentes conformations prises par le polymère en solution en fonction de la concentration.

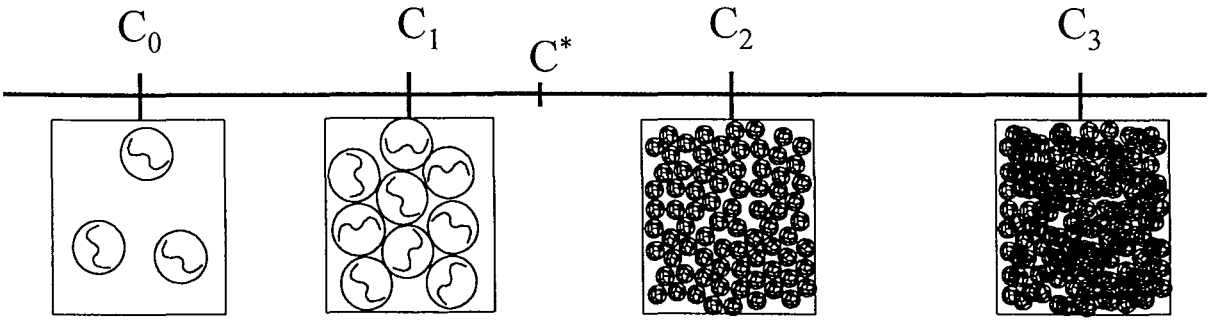


Figure III.A.1 : Structure d'une solution de CMC en fonction de la concentration (Kästner et al 1997)

$C < Co$

Les particules sont dans leur configuration la plus étendue.

$C_0 < C < C_1$

La viscosité ne diffère pas de celle de l'eau. La distance entre chaînes correspond à peu près à la longueur du contour des particules. Les chaînes sont de configuration étendue et ont une forme de bâtonnets.

$C_1 < C < C_2$

$$\eta_0 \sim (C / C_1)^{1/2}$$

η_0 étant la viscosité à cisaillement nul

Quand on augmente la concentration en polyélectrolytes, le chevauchement des chaînes entraîne une augmentation de la viscosité. A la concentration C_1, les chaînes sont étendues et en forme de bâtonnets ; puis, par augmentation de la concentration, elles se mettent progressivement sous forme de pelotes.

C^* concentration critique, $C_1 < C^* < C_2$, marque le passage d'un régime dilué dans lequel les molécules sont comme rigides et indépendantes, à un régime semi-dilué où les molécules se chevauchent.

$C_2 < C < C_3$

$$\eta_0 \sim (C / C_2)^{5,5}$$

Le polyélectrolyte est maintenant sous forme de pelote. Les chaînes de polymères se chevauchent et se comportent comme un polymère non chargé. La solution devient viscoélastique probablement par processus d'enchevêtrement des pelotes polyélectrolytes.

$C_3 < C$

La concentration C_3 est la concentration de transition sol-gel. Au delà de cette concentration, la solution de CMC se comporte comme un fluide à seuil : la viscosité à cisaillement nul tend vers l'infini.

Ghannam et Esmail (1997) observent effectivement une structure gel pour des concentrations de 4% et 5% d'une solution de CMC de masse molaire non précisée. Au delà de ce point de gel, les solutions

sont viscoélastiques et ont une rhéologie dépendant du temps. Des tests de fluage montrent une récupération élastique.

Les concentrations C_0, C_1, C_2 et C_3, concentrations pour lesquelles les changements dans la conformations des chaînes de polymères ont lieu, dépendent de deux paramètres : la masse molaire du polymère et la présence de sel :

- lorsque la masse molaire augmente, la taille des chaînes de polymères augmente, ce qui fait décroître les valeurs des concentrations de transition,
- en présence de sel, les chaînes de polymères sont écrantées et prennent alors une conformation plus repliée. Ainsi, les concentrations pour lesquelles les changements de structure ont lieu, sont déplacées cette fois vers des valeurs plus élevées.

A titre d'exemple, pour une CMC de masse molaire moyenne M_W = 360.000 g/mol (masse molaire proche de celle de notre polymère i.e. M_W = 285.000 g/mol), les concentrations de changement de structure sont C_0 = 0,0005 %, C_1 = 0,001 %, C^* = 0,003 %, C_2 = 0,4 %, et C_3 = 2 %. Ces concentrations sont exprimées en pourcentage massique.

Les solutions de CMC sont rhéofluidifiantes. Ghannam et Esmail (1997) donnent une interprétation microscopique du caractère rhéofluidifiant de ces solutions. Selon eux, l'importante viscosité est due aux longues chaînes de molécules enchevêtrées et orientées aléatoirement. En augmentant la vitesse de cisaillement, les chaînes sont désenchevêtrées, étirées et orientées selon des plans de cisaillement. Le fait que les molécules soient alignées leur permet de glisser plus facilement les unes sur les autres, d'où une moindre viscosité de la solution.

III.A.2 Propriétés des solutions de PAAm

Le PAAm AN 913 SH par son hydrolyse partielle est un polyélectrolyte. Dans l'eau pure, les chaînes de polymères se repoussent par effet électrostatique et se déploient entièrement du fait des charges portées par la macromolécule. Ce déploiement important est encore accentué par l'importante souplesse des chaînes de PAAm.

Ce déploiement important des chaînes confère au PAAm des propriétés particulières. Contrairement aux polymères neutres qui connaissent une croissance monotone de leur viscosité réduite avec la concentration en polymères, la viscosité réduite de solutions de PAAm peut étonnamment augmenter fortement lorsque la concentration diminue (Kanatharana et al. 1996).

Régime dilué - régime semi-dilué : influence de la masse molaire et de la salinité

Contrairement au cas des solutions de CMC, aucune étude détaillée de la structure des solutions de PAAm et de la conformation de ses molécules n'a probablement été faite. Dans une première partie, nous verrons comment a été définie la concentration critique de passage d'un régime dilué à un régime semi-dilué. Par la suite, nous verrons quelques propriétés de ces solutions en régime dilué puis en régime semi-dilué.

A l'échelle moléculaire, la concentration critique C^* correspond à la concentration où le chevauchement des chaînes devient notable. Cette concentration critique diminue lorsque la masse molaire du polymère augmente (Kulicke et al. 1981).

En ajoutant du sel, les charges sont écrantées, et les molécules prennent une conformation plus repliée, ce qui se traduit par une diminution du rayon de giration des molécules. En conséquence, la concentration critique augmente avec la concentration en sel. Le glycérol a une action analogue à celle du sel sur la conformation des chaînes, sur le rayon de giration et sur la concentration critique (Dupuis et al. 1994). Le tableau III.A.1 résume les différentes données trouvées dans la littérature pour des PAAm équivalents aux nôtres.

Auteur	Masse molaire	% d'hydrolyse	sel	C*	R giration
	g/mol		%	% massique	[nm]
Kanatharana et al (1996)	$2x10^5$	10 ou 70%	0	0,02	
Bradna et al (1995)	$7x10^6$	26%	0	< 0,015	
Kulicke et al (1994)	$7x10^6$		0	0,01	
Dupuis et al (1994)	$7x10^6$	31%	0	0,011	248
Dupuis et al (1994)	$7x10^6$	31%	0,058	0,0155	220
Dupuis et al (1994)	$7x10^6$	31%	0,58	0,0245	188

Tableau III.A.1 : Concentration critique et rayon de giration des chaînes de PAAm

En régime dilué, quand la concentration en polymères approche de zéro, la taille des chaînes devient presque indépendante de la concentration et de l'ajout de sel (Kanatharana et al. 1996). Pour Cartalos et al. (1992), en absence de sel, les molécules sont gonflées sous l'effet des charges portées par la chaîne et se comportent comme des bâtonnets semi-rigides. Par contre, en présence de sel, les charges sont neutralisées par la force ionique du milieu et les chaînes se recroquevillent sous l'effet de cet écrantage électrostatique. Les molécules se comportent alors comme des pelotes flexibles.

En régime semi-dilué, comme en régime dilué, par ajout de sel, la taille des pelotes ainsi que le rayon de giration diminuent par un mécanisme d'écrantage des charges de la chaîne de polymère. Cette diminution du rayon de giration s'accompagne d'une forte diminution de la viscosité et de l'élasticité des solutions (Tam et Tiu 1994). Cette baisse de viscosité dépend de la valence des ions

introduits, mais est indépendante de l'espèce chimique, pourvu que la valence soit la même. La baisse d'élasticité s'explique selon Tam et Tiu (1994) par une configuration étendue des chaînes en absence de sel, et une configuration plus compacte et rigide donc moins élastique en présence de sel. Dupuis et al. (1994) confirment ces explications. Par ajout de sel, ils observent que les propriétés électrolytes tendent à disparaître, que la taille des pelotes diminue et que les pelotes sont moins sensibles à la déformation et à l'orientation.

Comportement rhéologique des solutions de PAAm

Les solutions de PAAm sont fortement rhéofluidifiantes. Elles présentent un premier plateau Newtonien. La longueur de ce plateau Newtonien diminue avec une augmentation de la masse molaire et de la concentration en polymères. Par exemple, le premier plateau newtonien se termine à un cisaillement de 0,1 s^{-1}, dans le cas d'une solution de PAAm M_W = 5,3x10^{-6} g/mol de concentration 2% (Kulicke et al. 1982).

En plus du caractère rhéofluidifiant, les solutions de PAAm présentent des propriétés élastiques. La première différence des contraintes normales est importante et souvent supérieure aux contraintes de cisaillement (Kulicke et al. 1982).
Comme toutes les solutions de polymères viscoélastiques, le PAAm présente en régime transitoire un dépassement de contraintes. Ce dépassement de contraintes existe aussi bien pour la première différence des contraintes normales que pour les contraintes de cisaillement. Il est généralement admis que ce dépassement de contraintes provient du désenchevêtrement des chaînes de polymères (Kulicke et al. 1982).

En régime semi-dilué, les chaînes de PAAm sont fortement enchevêtrées et forment un réseau (Ait-Kadi et al. 1988, Cho et al. 1984, Carreau et al. 1974). Par la présence de ce réseau, les solutions de PAAm sont des fluides dépendant du temps. Cette dépendance du temps se voit nettement sur la réponse à un échelon de cisaillement ou sur la relaxation des contraintes après arrêt du cisaillement pendant des temps très longs (Ait-Kadi et al. 1988).

Habituellement, cette influence du temps dans les solutions de PAAm est expliquée par « un effet de mémoire » du fluide (Carreau et al. 1974). Depuis peu, (Hu et al. 1995, Dupuis et al. 1994, Bradna et al. 1995), en accord avec la définition de la thixotropie donnée par Barnes (1997), ont trouvé des propriétés thixotropes aux solutions de PAAm. Mais ce point de vue est contesté par de nombreux autres auteurs. Une étude bibliographique sur la thixotropie des solutions de PAAm est donnée en annexe III.B. Des tests de thixotropie au sens de Barnes (1997) effectués sur nos solutions de PAAm sont aussi donnés dans cette annexe.

Remarque : Certains auteurs ont constaté une évolution de la viscosité des solutions de PAAm au cours du temps (pendant des jours voire des semaines).

En mettant en solution du PAAm, Kulicke et al. (1981) ont remarqué qu'au-delà d'une certaine masse molaire ($M_W > 1{,}5x10^6$ g/mol), la viscosité de leurs solutions décroissait au cours du temps. A leur avis, cette décroissance de la viscosité ne résulte pas de la destruction des chaînes, car la masse molaire ne change pas, et que d'autre part, elle n'a pas lieu lorsqu'on ajoute suffisamment de sel en solution. Ce changement s'expliquerait par une modification de la conformation locale des chaînes de polymères : la molécule se déploierait lentement sur plusieurs jours, voire plusieurs semaines. Au départ, la molécule est rendue assez rigide par des segments de chaînes hélicoïdaux et des liaisons hydrogène entre éléments de chaînes rapprochés. Cette conformation locale évolue par disparition progressive des segments hélicoïdaux et le remplacement des liaisons hydrogène intramoléculaires par des liaisons intermoléculaires ou des liaisons intramoléculaires entre partie de chaînes provenant d'éléments distants (Kulicke et al. 1981). Cette évolution de la viscosité au cours du temps n'a pas été observée par Nakonechnyi et al. (1991), ni par Borthakur et al. (1996) qui ont pourtant mesuré comment évoluait la viscosité pendant 28 et 50 jours respectivement.

Annexe III.B : Thixotropie des solutions

III.B.1 Introduction

La thixotropie d'une solution est une chose difficile à définir. Etymologiquement, thixotropie vient de la combinaison de deux mots grecs : thixis (secouer, agiter) et trepo (tourner changer). Barnes (1997) dans une récente synthèse sur la thixotropie, distingue deux écoles. Pour la première école, la thixotropie serait le temps de réponse d'une microstructure occasionnée, soit par un cisaillement, soit par un temps de repos, et les effets rhéologiques qui en résulteraient. La seconde école est plus proche du milieu industriel. Pour eux, la thixotropie est comprise comme étant ce qui donne à un liquide les propriétés d'un gel, mais des propriétés de gel qui disparaissent par agitation et réapparaissent au repos.

Dans le cas de fluides viscoélastiques, il faudra veiller à bien distinguer la réponse élastique de la réponse thixotrope.

Le cas des solutions de CMC fortement concentrées (solutions qui présentent une structure gel), sera présenté brièvement dans une première partie. Dans une deuxième partie, nous verrons comment la question de la thixotropie des solutions de PAAm a été abordée dans la littérature. Enfin, nous présenterons quelques tests de thixotropie effectués sur nos solutions de PAAm.

III.B.2 Thixotropie des solutions de CMC

D'après Ghannam et Esmail (1997), les solutions de CMC de fortes concentrations (4 - 5%), ont une structure gel, et présentent ainsi une certaine thixotropie.
Cette thixotropie se voit par deux tests :

- sur une boucle de thixotropie (rampe de cisaillement croissant, suivi d'une rampe de cisaillement décroissant)
- sur une récupération visqueuse en oscillatoire après un cisaillement important.

Ils interprètent cette thixotrpie comme le temps nécessaire à la reconstitution du réseau formant la structure gel. Notre solution de CMC 2% est en deçà de la transition sol-gel, il est donc compréhensible que nos solutions ne présentent ni thixotropie, ni gélification.

III.B.3 Thixotropie des solutions de PAAm

III.B.3.a Etude bibliographique

Composition des solutions thixotropes

La thixotropie des solutions de PAAm a été observée par Bradna et al. (1995a et b), Dupuis et al. (1994) et Hu et al. (1995) pour des solutions de PAAm partiellement hydrolysées de grande masse molaire, dans des mélanges eau - glycérol. Le tableau III.B.1 résume les compositions des différentes solutions.

Auteur	M_w	Hydrolyse	% glycérol	PAAm
	g/mol	%	%	%
Bradna et Al (1995 a et b)	$7x10^6$	26%	85%	0,03 - 0,15%
Dupuis et Al (1994)	$7x10^6$	31,20%	75%	0,006 - 0,048%
Hu et Al (1995)	107	40%	75 à 85%	0,08%

Tableau III.B.1 : Composition des différentes solutions thixotropes

Différentes sortes de thixotropies

Pour des solutions de faible concentration, Bradna et al (1995a) distinguent deux sortes de thixotropie négative. Elles ont lieu après un échelon de vitesse de cisaillement (figure III.B.1) :

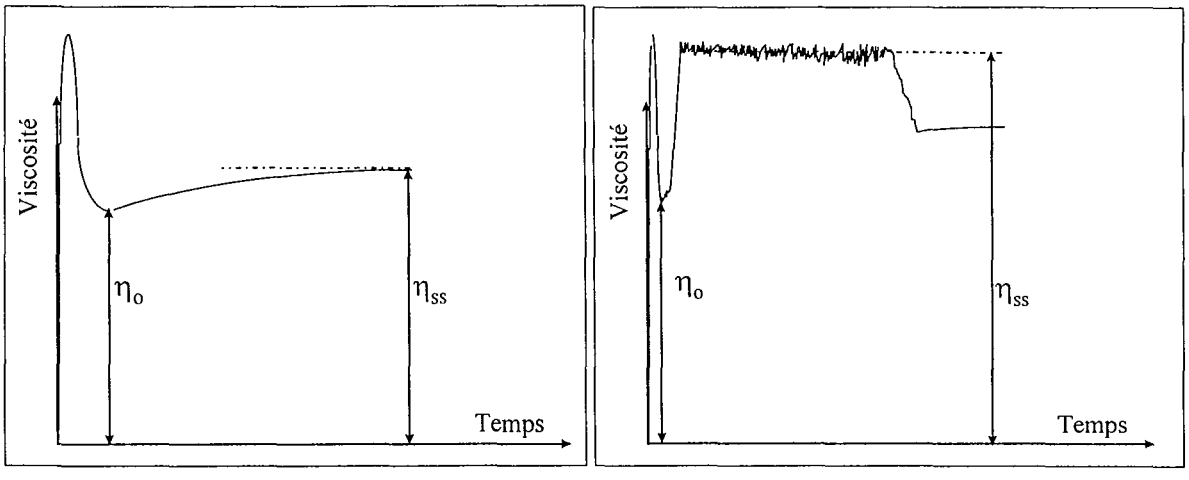


Figure III.B.1 : Thixotropie négative de type I et II d'après Bradna et al (1995a)

- La thixotropie de type I débute à faible vitesse de cisaillement (de 1 à 100 s^{-1} suivant la concentration de PAAm). Elle consiste en une lente augmentation de la viscosité au cours du temps jusqu'à ce qu'un palier soit atteint.
- La thixotropie de type II a lieu à un cisaillement plus important. La viscosité augmente rapidement après le dépassement de contrainte, puis connaît d'importantes oscillations. Ces oscillations seraient dues à l'apparition de petits vortex ou de particules comme gélifiées.

Ces deux sortes de thixotropie se voient aussi bien sur les contraintes tangentielles que sur les premières différences des contraintes normales

Dupuis et al. (1994) ont étudié le comportement d'un PAAm partiellement hydrolysé pour des concentrations proche de la transition du régime dilué au régime semi-dilué (30 à 960 ppm) Pour ces concentrations le chevauchement devient appréciable. Ils observent que le rhéoépaississement de leurs solutions va de pair avec une dépendance temporelle de la viscosité.

Hu et al (1995) observent une thixotropie de type I comme Bradna et al (1995a). Ils effectuent de nombreux tests rhéologiques mettant en évidence cette thixotropie aussi bien avec un rhéomètre usuel qu'avec un rhéomètre optique.

Paramètres influençant la thixotropie

La vitesse de cisaillement critique à partir de laquelle la thixotropie de type I commence, augmente avec la salinité (Bradna et al 1995a). A leur avis, la salinité diminue la taille des chaînes par écrantage et réduit leurs possibilités de se chevaucher. Ainsi, comme les pelotes de polymères sont plus compactes, une plus grande force de friction est nécessaire pour atteindre une déformation critique et une orientation des chaînes telles qu'une structure de thixotropie négative puisse se créer. Le cisaillement critique à partir duquel la thixotropie commence, diminue avec une augmentation de la concentration en polymères ou en glycérol. La thixotropie de type I est donc favorisée par une augmentation de la concentration en polymères et en glycérol, mais défavorisée par la salinité.

Pour la thixotropie de type II, le cisaillement critique diminue avec la concentration en glycérol et en polymères, mais elle ne semble pas être influencée par la salinité du milieu.

Hu et al (1995) soulignent que la thixotropie négative n'apparaît qu'à partir d'un certain niveau de cisaillement.

Origine microscopique de la thixotropie

Pour Bradna et al (1995b) l'origine de cette thixotropie est encore inconnue. Ils pensent que les interactions électrostatiques sont un paramètre important et que cette thixotropie est due à la formation d'une éventuelle superstructure de molécules.

Selon Dupuis et al (1994), lorsque la contrainte de cisaillement est suffisante pour ouvrir les pelotes de polymères, les interactions intermoléculaires vont être favorisées par rapport aux interactions intramoléculaires. Ainsi, on peut s'attendre à la formation de larges agrégats. Le régime transitoire observé sur la viscosité représenterait alors une compétition entre les cinétiques de formation et de destruction de ces liens intramoléculaires jusqu'à ce qu'un régime permanent soit atteint. Selon eux, certains auteurs souligneraient la sensibilité des contraintes normales à la présence d'une structure de réseau. La décroissance des contraintes normales refléterait la dissociation de ces agrégats.

Hu et al (1995) sont allés plus loin dans les tests rhéologiques et dans l'interprétation microscopique des résultats. Le rhéoépaississement a lieu en deux phases : un étirement des chaînes et la rupture des liaisons du réseau préexistant suivit de la construction de l'état de rhéoépaississement.

Deux hypothèses explicatives sont données :

- Le cisaillement déplacerait l'équilibre des liaisons intramoléculaires vers plus de liaisons intermoléculaires.
- Les pelotes flexibles seraient déformées jusqu'à atteindre un état étiré. L'augmentation de la viscosité résulterait de force de rétractions ou de durcissement des molécules étirées.

En régime transitoire, ils observent une thixotropie de type I. Le dépassement de contrainte serait dû à la rupture des associations entre chaînes, alors que les chaînes sont encore essentiellement non déformées. Comme le temps de croissance de la contrainte après le dépassement de contrainte est bien plus long que celle-ci, elle ne peut être due à l'étirement des chaînes.

Lorsque qu'après avoir atteint le régime permanent, pendant un court instant (2s) on arrête le cisaillement, il n'y a pas de deuxième overshoot. Par contre pour un temps d'attente plus long, un overshoot de taille croissante avec le temps d'attente apparaît. Au delà de 20s, la taille du deuxième overshoot a atteint celle du premier. Ils soulignent que le rhéoépaississement est très différent s'il fait suite à un arrêt du cisaillement de 3s après un cisaillement long ou après un cisaillement très bref. Ceci montre qu'il se crée sous cisaillement, après le régime transitoire, une structure que les auteurs appellent coagulation, qui ne disparaît pas immédiatement. Il faut un certain temps pour recréer le réseau du régime statique.

La croissance transitoire de la contrainte en régime oscillatoire après un cisaillement important donne une autre preuve de la présence de thixotropie.

Pour expliquer ce qui se passe au point de vue microscopique, Hu et al (1995) ont résumé leur théorie par un schéma très intéressant (figure III.B.2).

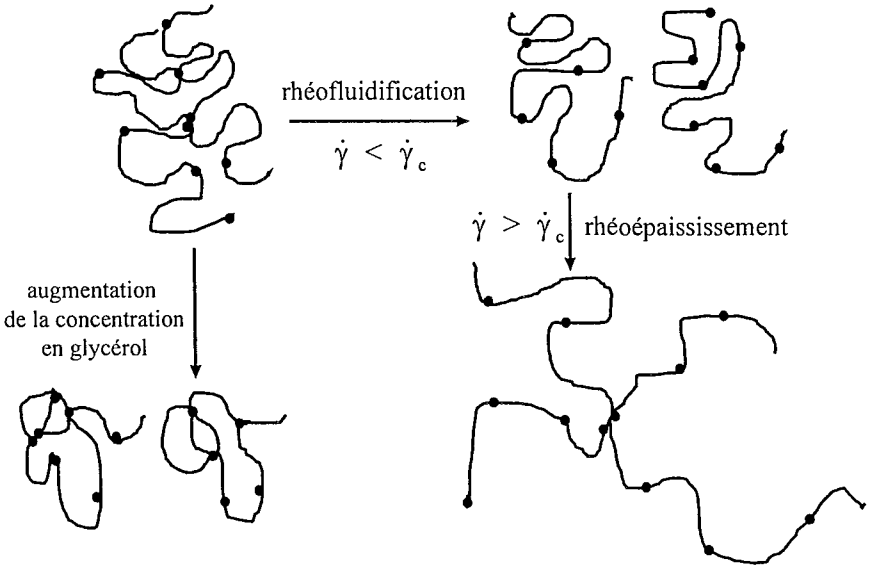


Figure III.B.2 : Hu et al (1995) Conformation des chaînes de PAA sous cisaillement, formation de liaisons intermoléculaires

Sous l'effet d'un cisaillement faible, le nombre de liaisons entre chaînes diminue, le fluide est rhéofluidifié. L'overshoot ou dépassement de contraintes est provoqué par la destruction de ces liaisons.
Sous l'effet d'un cisaillement important, il y a rhéoépaississement et thixotropie par un processus d'étirement des chaînes et de génération de liaisons - coagulation entre chaînes.
La présence de glycérol a pour effet de déplacer l'équilibre vers des liaisons intramoléculaires.

III.B.3.b Expériences

Nos solutions de PAAm ont une concentration en polymères plus importante que les solutions thixotropes de la littérature, mais elles sont en solvant eau et non eau-glycérol. Le fait de se placer en milieu plus concentré en polymères donne un niveau de viscosité comparable à celui obtenu dans la littérature pour des solvants eau - glycérol. Aussi, les observations de thixotropie négatives sont exactement identiques (voire paragraphe III.3, influence d'un échelon de cisaillement sur la viscosité, présence d'un premier overshoot, suivi d'un undershoot, puis d'un second overshoot).

Dans ce qui suit, fidèle à l'article de Barnes (1997), il ne sera pas fait de boucles de thixotropie. Par contre, deux types de tests seront effectués :

- la restructuration du fluide en oscillatoire après un précisaillement
- l'influence d'un temps de repos sur la taille de l'overshoot

Restructuration en oscillatoire après un précisaillement

Ces expériences sont effectuées pour les trois solutions de PAAm 0,25 - 0,5 et 0,75 %, en géométrie cône - plan. Suite à un précisaillement à une vitesse de cisaillement de 10 s^{-1} pendant 100s, les modules élastiques et visqueux sont mesurés en oscillatoire à une pulsation de 1 rad/s et pour une déformation $\gamma = 0,8$ (domaine d'élasticité linéaire). La figure III.B.3 représente la reprise de structure vue sur le module élastique. Le module visqueux atteint sa valeur d'équilibre quasiment immédiatement.

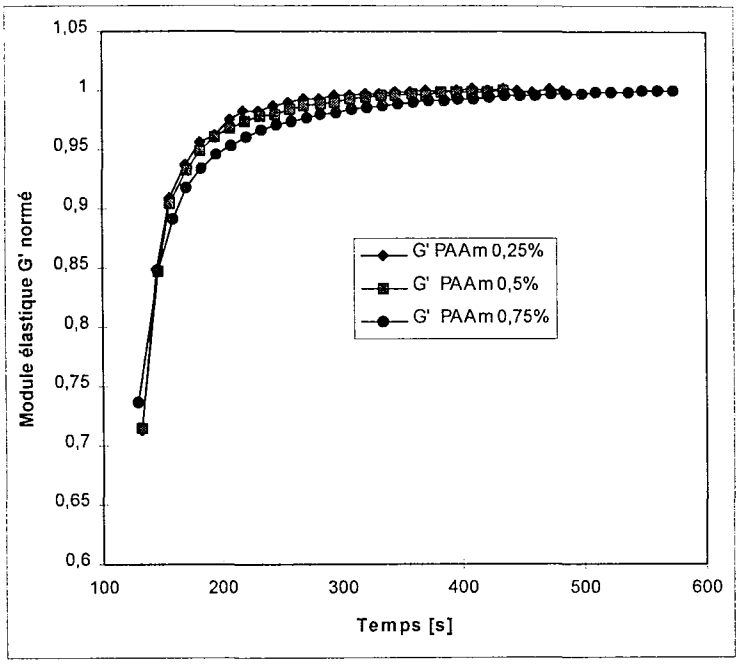


Figure III.B.3 Evolution du module élastique G' après un précisaillement de $10s^{-1}$ pendant 100s

Influence d'un temps de repos sur le dépassement de contrainte

Comme schématisé sur la figure III.B.4, après un temps de repos long (plusieurs minutes), l'échantillon subit un cisaillement de $10s^{-1}$ pendant 50s. Puis suit un temps de repos de duré T pendant lequel le fluide n'est pas cisaillé. Enfin, un échelon de cisaillement de $10s^{-1}$ est à nouveau appliqué. On constate que le deuxième dépassement de contrainte est plus petit que le premier, et que sa taille est fonction du temps de repos T.

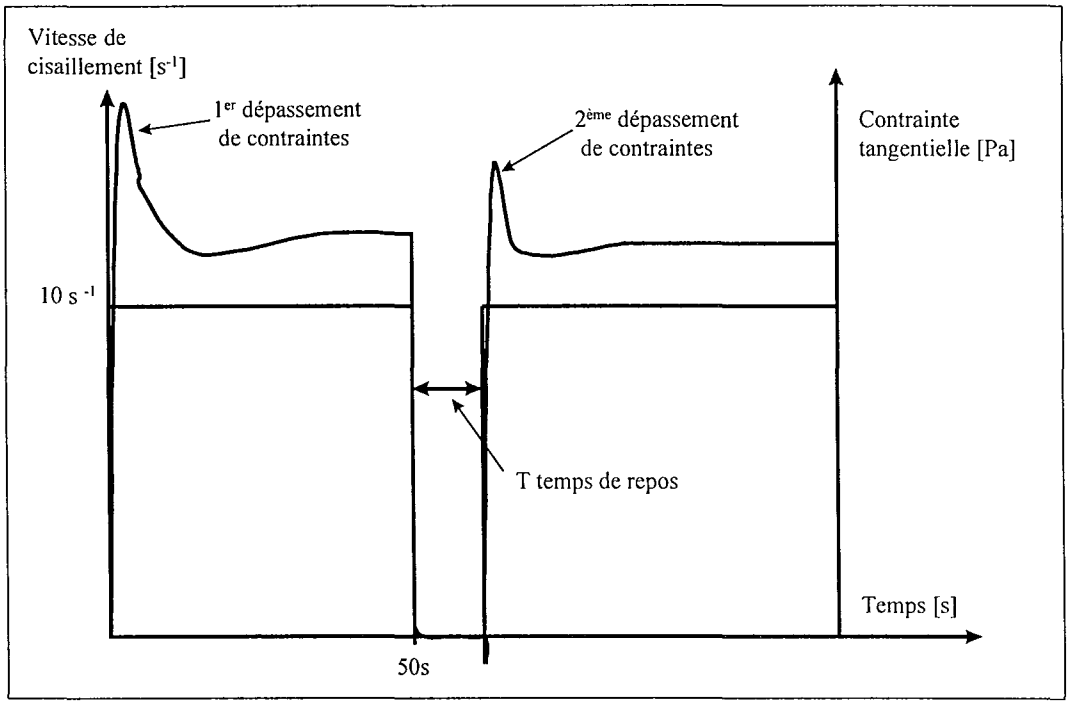


Figure III.B.4 Influence d'un temps de repos sur la taille du dépassement de contrainte

Sur les figures suivantes, l'influence d'un temps de repos T sur le dépassement de contrainte est représentée pour les différents fluides.

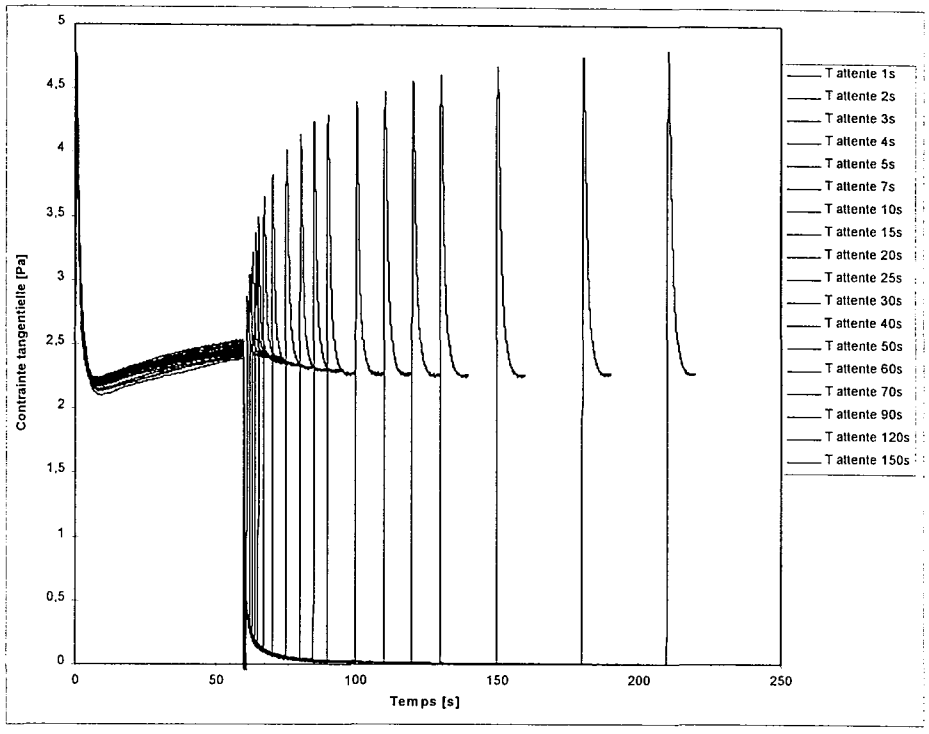


Figure III.B.5 Influence d'un temps de repos sur le dépassement de contrainte pour une solution de PAAm 0,25%

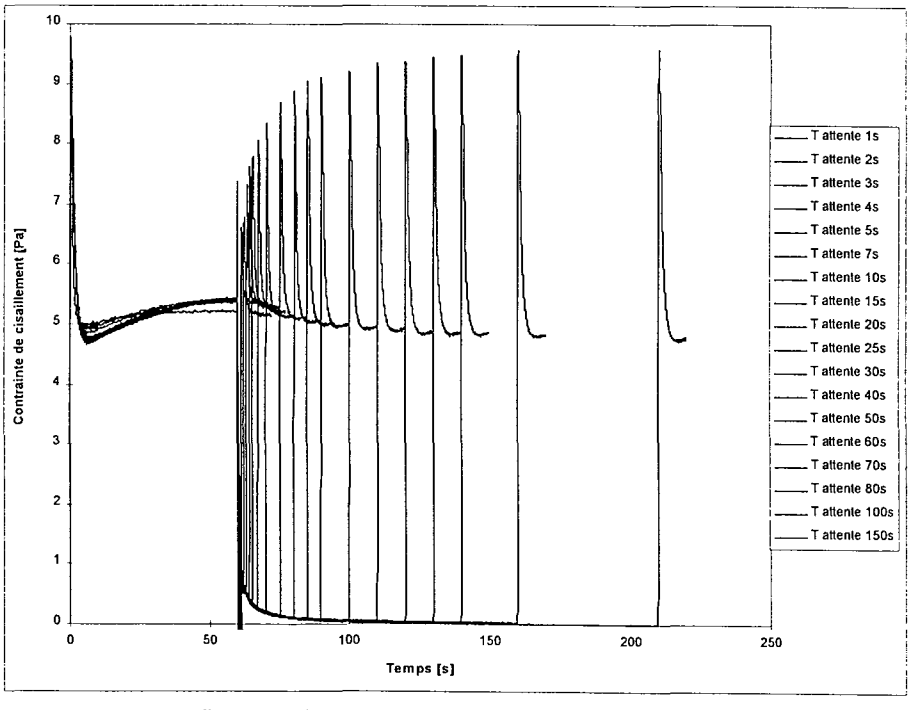


Figure III.B.6 Influence d'un temps de repos sur le dépassement de contrainte pour une solution de PAAm 0,5%

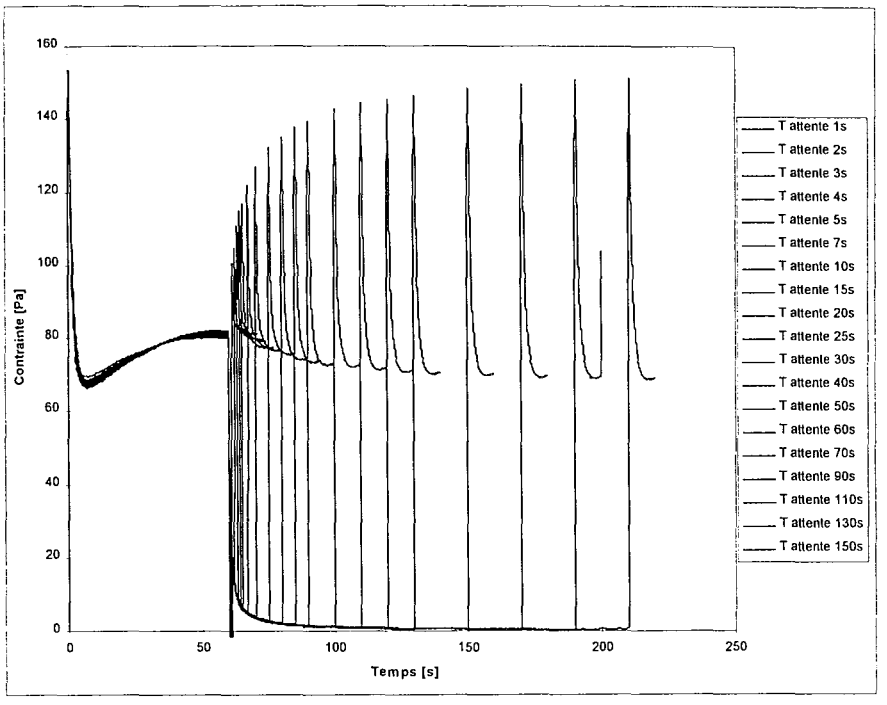


Figure III.B.7 Influence d'un temps de repos sur le dépassement de contrainte pour une solution de PAAm 0,75%

III.B.4 Conclusion

D'après la définition de la thixotropie donné par Barnes (1997), les tests effectués sur les solutions de PAAm montrent une thixotropie. Cette thixotropie est vue aussi bien à travers une cinétique de restructuration du fluide en oscillatoire après un précisaillement que sur l'influence d'un temps de repos. Sur ces deux tests, on voit que le fluide se restructure après un temps de 100 à 150s, donc des temps plus long que les temps caractéristiques des fluides. Ce temps de restructuration du fluide augmente avec la concentration en polymère.

Annexe III.C : Modèle de Maxwell généralisé, appliqué aux solutions de PAAm

III.C Introduction

Dans le paragraphe III.4.1, nous avons vu que le domaine d'élasticité linéaire des solutions de PAAm était particulièrement important (déformation critique γ_c de l'ordre de 1,7). Dans les solutions de polymères, après un échelon de déformation, (figure III.C.1a), le module de relaxation évolue comme représenté sur la figure III.C.1b (Macosko 1994).

Le module de relaxation étant défini par :

$$G(t,\gamma) = \frac{\tau(t,\gamma)}{\gamma}$$

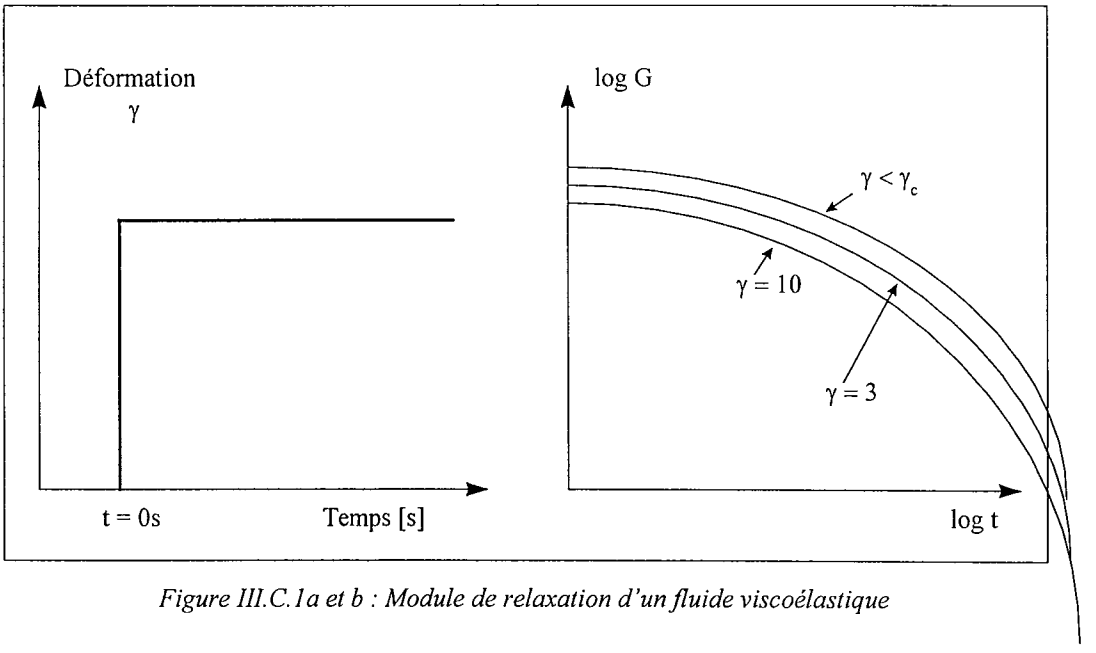


Figure III.C.1a et b : Module de relaxation d'un fluide viscoélastique

Deux domaines sont à distinguer :

- $\gamma < \gamma_c$: domaine de viscoélasticité linéaire, le module de relaxation ne dépend pas de la déformation : $G(t) = \frac{\tau(t)}{\gamma}$

- $\gamma > \gamma_c$: domaine de viscoélasticité non-linéaire, le module de relaxation dépend de la déformation : $G(t,\gamma) = \frac{\tau(t,\gamma)}{\gamma}$

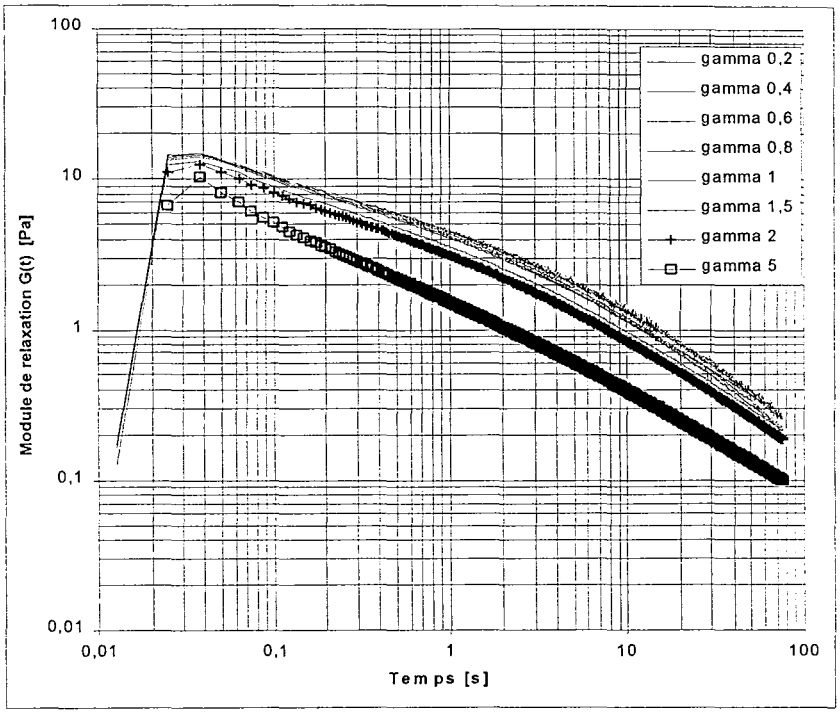


Figure III.C.2 Module de relaxation après un échelon déformation gamma (ã) de taille variable pour une solution de PAAm 0,75%

Dans le domaine de viscoélasticité linéaire, la relaxation du module peut être représenté par un modèle de Maxwell.

Le modèle de Maxwell non généralisé défini par :

$$G(t) = G_o \exp\left(-\frac{t}{\lambda_0}\right)$$

ne permet pas de représenter convenablement le module de relaxation.

Par contre, le modèle de Maxwell généralisé défini par :

$$G(t) = \sum_{k=1}^{n} G_k \cdot \exp\left(-\frac{t}{\lambda_k}\right)$$

où les λ_k sont des constantes de temps, et les G_k les modules de relaxation correspondants, donne une représentation intéressante du module de relaxation.

III.C.1 Modélisation du module de relaxation G(t) par le modèle de Maxwell généralisé

La modélisation est réalisée en suivant la méthodologie proposée par Macosko (1994). L'optimisation des paramètres G_k se fait en minimisant la fonction erreur suivante (écart relatif modélisation/expérience) :

$$E = \sum_{k=1}^{N} \left[1 - \frac{G^{fit}(t)}{G(t)} \right]^2$$

Ainsi, la modélisation du module de relaxation des solutions de PAAm 0,25 - 0,5 et 0,75% par un modèle de Maxwell généralisé d'ordre 6, donne les résultats présentés dans le tableau III.C.1.

		PAAm 0,25%	PAAm 0,5%	PAAm 0,75%
	λ_k	G_k	G_k	G_k
	[s]	[Pa]	[Pa]	[Pa]
k = 1	0,1	2,16	5,13	8,98
k = 2	0,5	0,342	0,657	1,543
k = 3	1	0,533	1,52	3,015
k = 4	5	0,474	0,86	2,54
k = 5	10	0,0415	0,24	$3,78 \times 10^{-9}$
k = 6	50	0,204	0,33	1,212

Tableau III.C.1 : Modèle de Maxwell d'ordre 6

Pour les trois solutions de PAAm, nous avons comparé les modules de relaxation expérimentaux avec ceux obtenus par le modèle de Maxwell généralisé après une déformation $\gamma = 0,8$ sur la figure III.C.3.

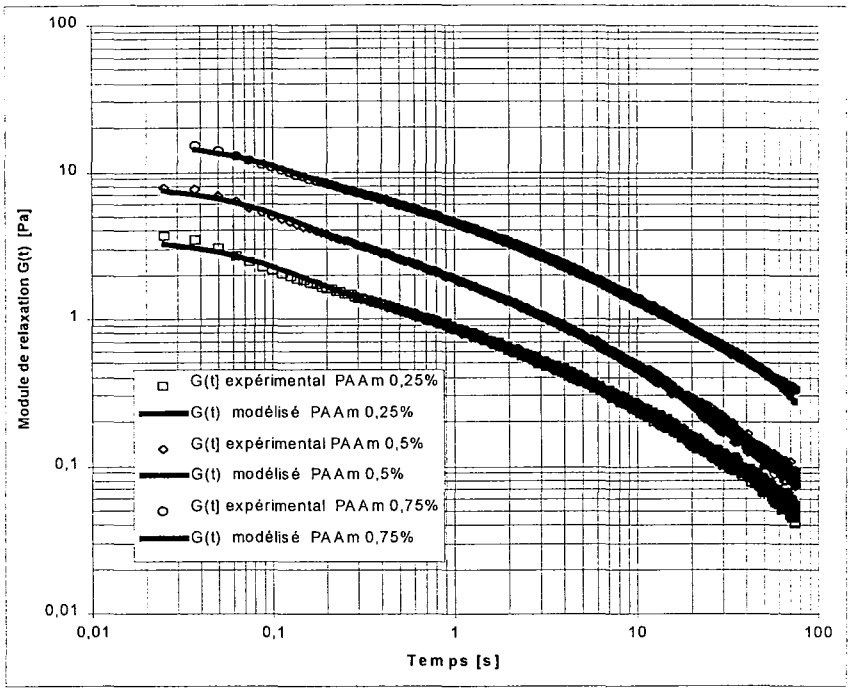


Figure III.C.3 : Module de relaxation expérimental et modélisé par le modèle de Maxwell généralisé

III.C.2 Détermination de quelques grandeurs

III.C.2.1 Viscosité à cisaillement nul

Le modèle de Maxwell généralisé permet d'avoir accès à la viscosité à cisaillement nul.

$$\eta_0 = \int_0^{\infty} G(t)\,dt$$

Où, dans notre cas, $\eta_0 = \sum_{k=1}^{N} \lambda_k G_k$

Pour les solutions de PAAm 0,25 - 0,5 et 0,75%, les viscosités à cisaillement nul sont η_0 = 13,9 - 25,6 et 78 Pa.s respectivement.

III.C.2.2 Temps caractéristique

Un temps caractéristique du fluide λ_0 est obtenu par pondération des temps caractéristiques des différents oscillateurs par les modules élastiques correspondants. λ_0 a une forme de moment d'ordre 1 : c'est un temps moyen, c'est un des temps caractéristiques existants pour caractériser un fluide viscoélastique.

$$\lambda_0 = \frac{\int_0^\infty s.G(s)\,ds}{\int_0^\infty G(s)\,ds}$$

Dans notre cas, le temps caractéristique du fluide λ_0 s'obtient par :

$$\lambda_0 = \frac{\sum_{k=1}^{N} G_k.\lambda_k^2}{\sum_{k=1}^{N} G_k.\lambda_k}$$

Pour les solutions de PAAm 0,25 - 0,5 et 0,75%, les temps caractéristiques du fluides sont $\lambda_0 = 37,9$ - 34,1 et 39,7 s respectivement. Ces temps caractéristiques sont très proches, et sont à rapprocher des figures III.4a, b, c et d sur lesquelles la relaxation de la contrainte tangentielle normée est représentée après arrêt brutal du cisaillement. Sur ces figures, on voit que les contraintes normées se relaxent d'une façon très similaire pour les trois fluides.

III.C.3 Modules élastiques et visqueux

Lorsqu'on connaît une expression du module de relaxation G(t) en fonction du temps, les modules élastiques et visqueux s'obtiennent par (Macosko 1994) :

$$G'(\omega) = \sum_k G_k \frac{\omega^2\lambda_k^2}{1 + \omega^2\lambda_k^2}$$

$$G''(\omega) = \sum_k G_k \frac{\omega\lambda_k}{1 + \omega^2\lambda_k^2}$$

Les modules élastiques et visqueux calculés théoriquement à partir du modèle de Maxwell généralisé et ceux obtenus expérimentalement par un balayage en fréquence pour une déformation située dans le domaine élastique ($\gamma = 0,8$) sont représentés sur la figure III.C.4

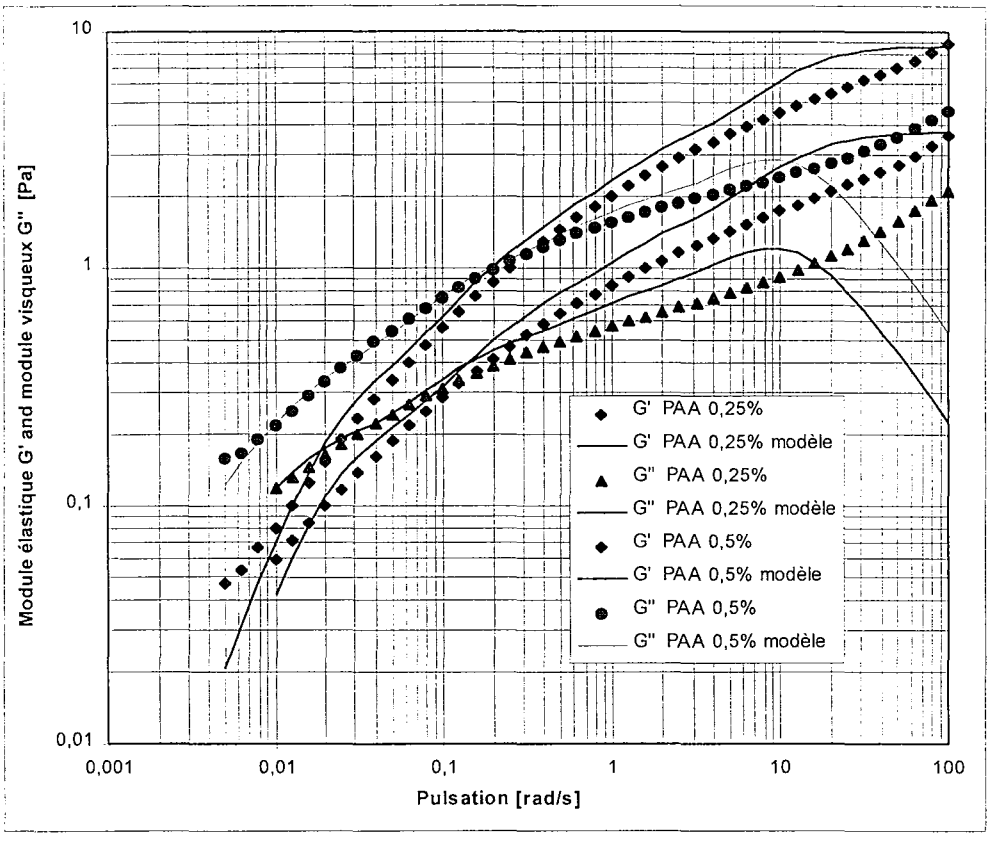


Figure III.C.4 : Modules élastiques et visqueux lors d'un balayage en fréquence : comparaison des mesures expérimentales au modèle de Maxwell généralisé

On remarque une concordance correcte entre les modules élastiques et visqueux expérimentaux et ceux calculés à partir du modèle de Maxwell généralisé précédemment établi. Dans le domaine des hautes fréquences la concordance est moins bonne.

Ces résultats concordants montrent que notre modèle de Maxwell est assez représentatif du comportement du fluide.

Annexes chapitre VI

Annexe VI.A : Influence d'un milieu plus étendu sur le champ de vitesses

Annexe VI.B : Influence de la période d'injection sur le champ de vitesses

Annexe VI.C : Superposition du contour des bulles et du champ de vitesses

Annexe VI.A

La plupart des expériences sont effectuées dans une petite colonne en verre de section carrée de 0,06x0,06 m de côté intérieur. Dans cette configuration, la nappe laser n'effectue qu'un faible trajet dans les solutions absorbantes de PAAm, et le contraste sur les images est de bonne qualité. Une grande colonne de section carrée de 0,18x0,18 m de côté intérieur est utilisée pour voir si la proximité des parois a une influence sur le champ des vitesses. La figure VI.A.1 représente les différentes positions prises par la buse au cours des différentes expériences.

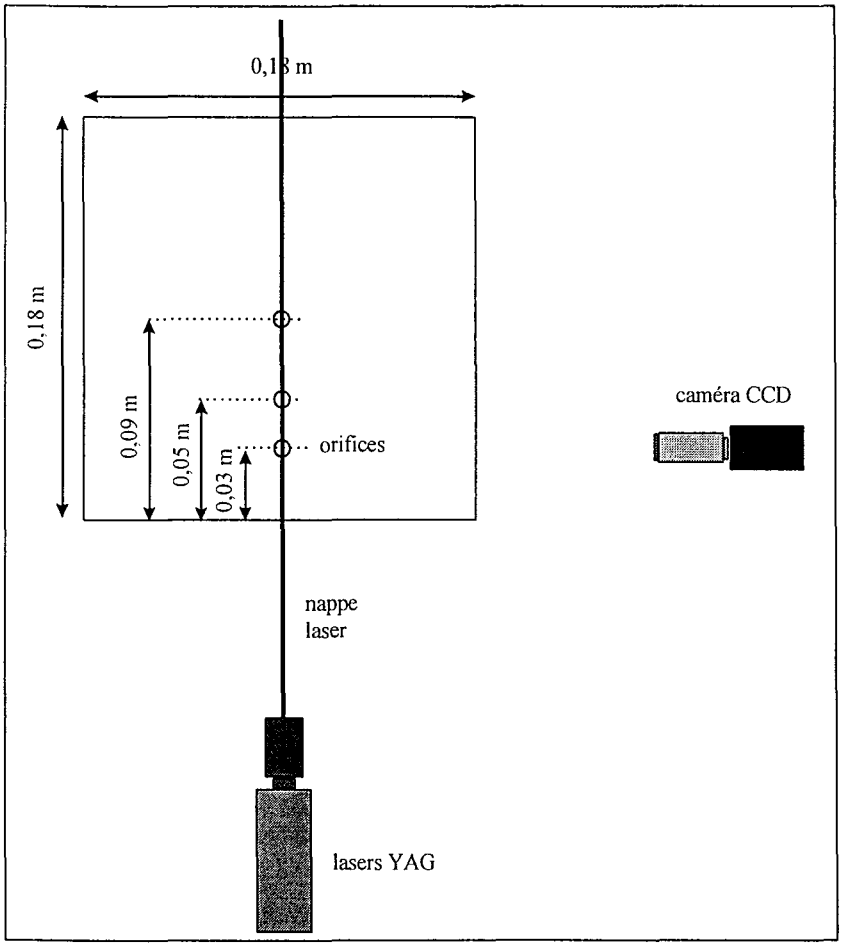


Figure VI.A.1 Différents positionnements de l'orifice lors d'observation du champ de vitesses - influence de la proximité d'une paroi. La buse est disposée successivement à 0,03 - 0,05 et 0,09 m de la paroi la plus proche.

Les figures VI.A.2 à VI.A.5 représentent les champs de vitesses dans la petite colonne puis dans la grande colonne à respectivement 0,03 - 0,05 et 0,09 m de la paroi pour des bulles de $900x10^{-9}$ m^3 environ en ascension dans une solution de PAAm 0,5%

Le champ de vitesses ne semble guère être influencé par la proximité des parois.

Lorsque la bulle est au centre de la grande colonne carrée, le rapport (largeur colonne)/(largeur bulle) est de 15. Le fluide environnant peut alors être considéré comme un milieu infini. Or comme le champ de vitesses dans la petite colonne ne diffère pas vraiment du champ mesuré à différentes distances d'une paroi dans la grande colonne, on peut en déduire que dans nos conditions expérimentales, la proximité des parois n'a qu'une influence négligeable sur le champ de vitesse.

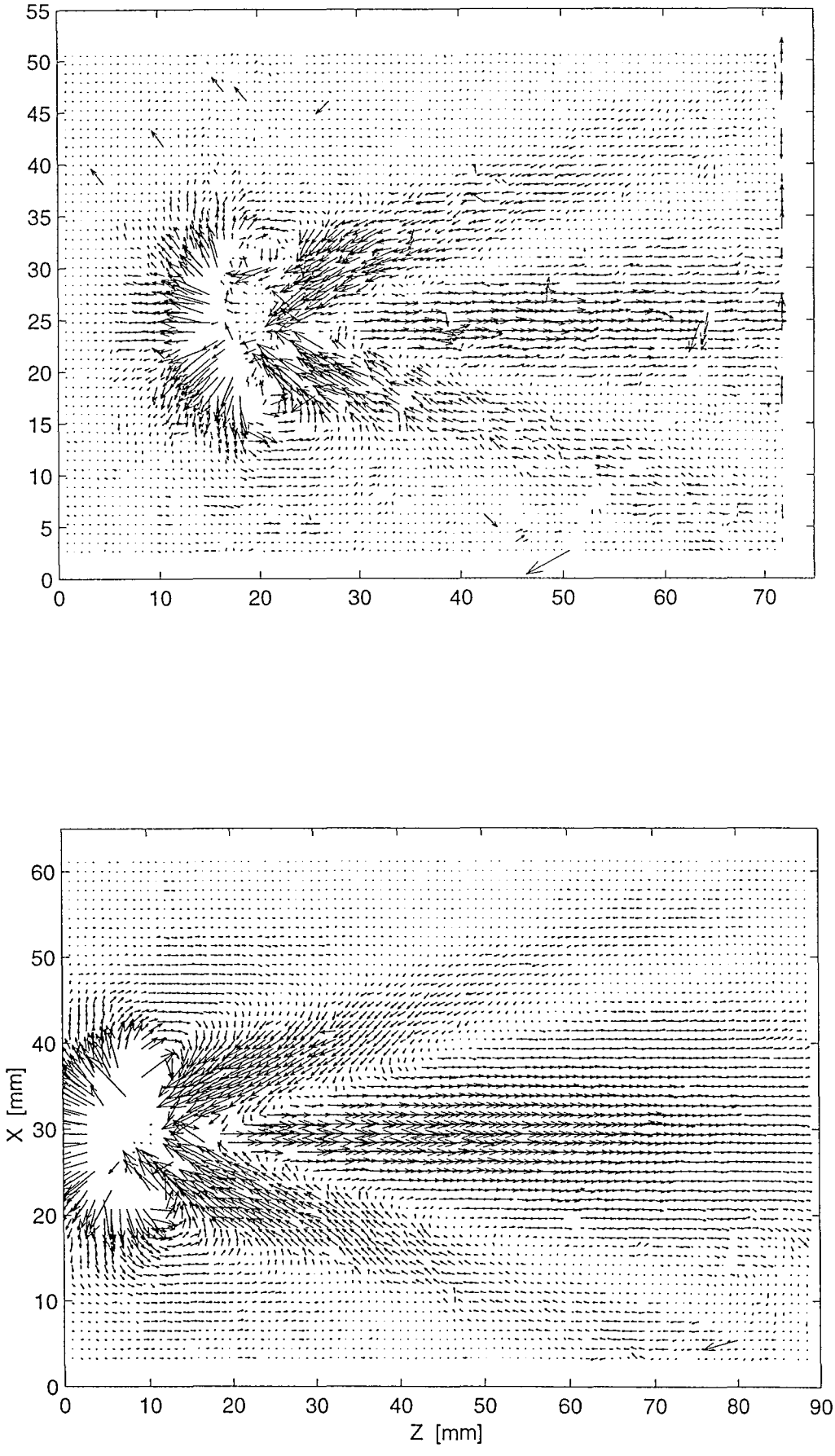
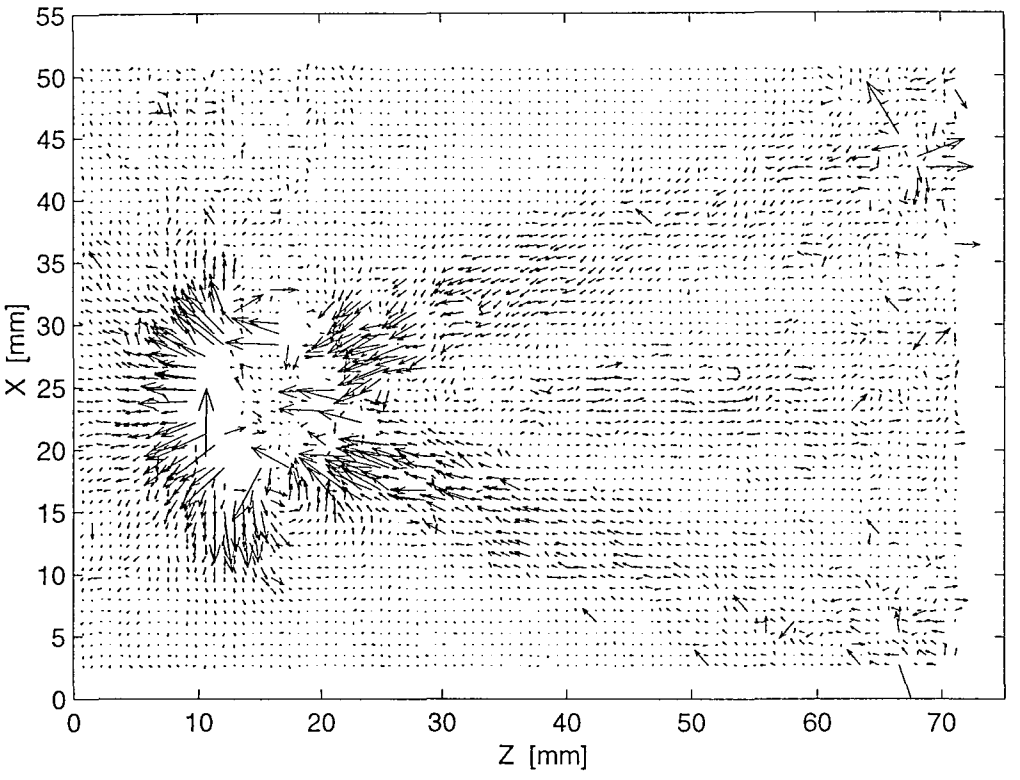


Figure V.A.2 et 3 : Ascension d'une bulle de 950 et 750x10-9 m3 dans une solution de PAAm 0,5% dans la colonne en verre (de coté 0,06 m) et dans la grande colonne à 0,03 m de la paroi gauche



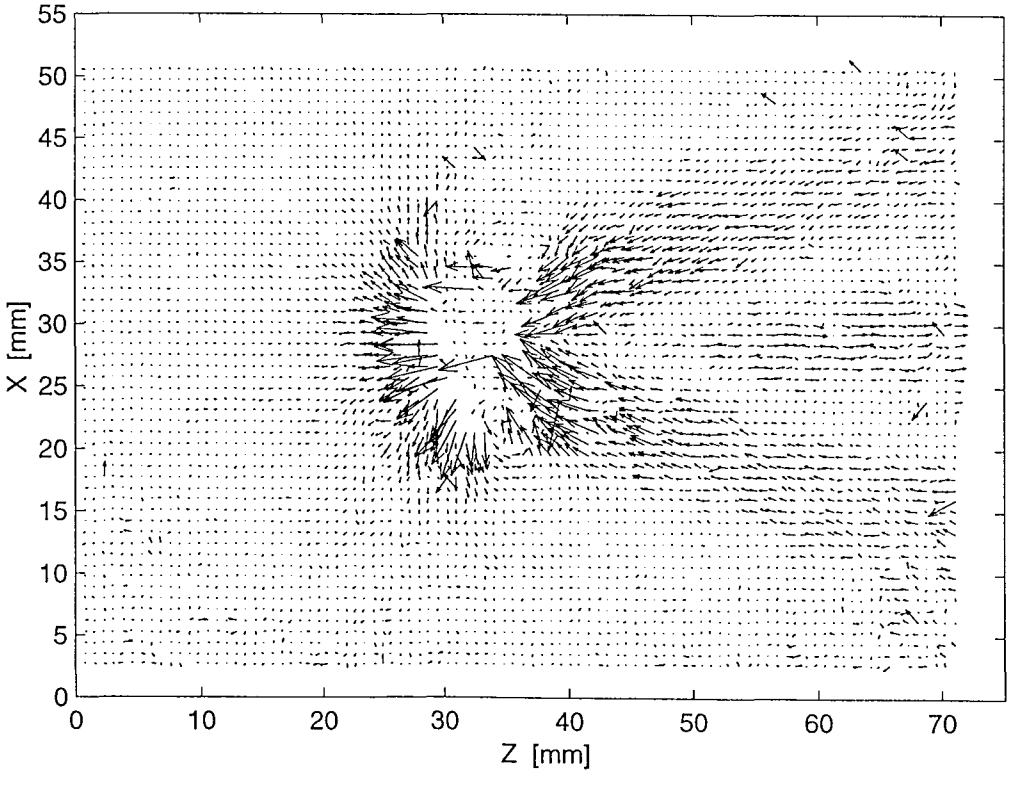


Figure V.A.4 et 5 : Ascension d'une bulle de $900x10^{-9}$ m^3 dans une solution de PAAm 0,5% dans la grande colonne à 0,05 m de la paroi gauche et au centre de la colonne (0,09 m des bords)

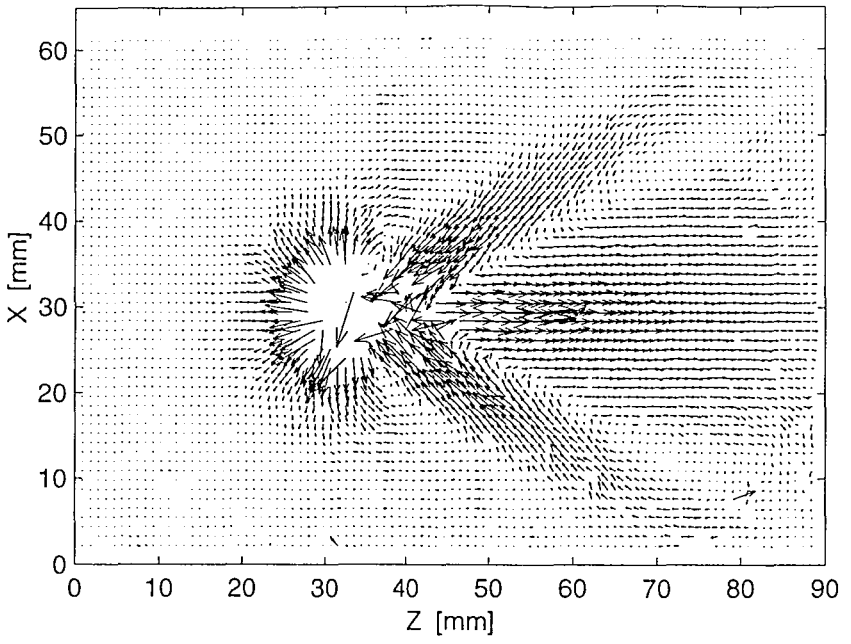
Annexe VI.B

Pour voir si la période d'injection des bulles avait une influence sur le champ de vitesses, des expériences ont été effectuées dans la petite colonne en verre dans des conditions expérimentales identiques. Des mesures de P.I.V. sont réalisées pour des bulles de volume environ $200x10^{-9}$ m^3 dans une solution de PAAm 0,5% et pour des bulles de 300 et $900x10^{-9}$ m^3 dans une solution de PAAm 0,75%. Le tableau VI.B.1 résume les différentes conditions des expériences.

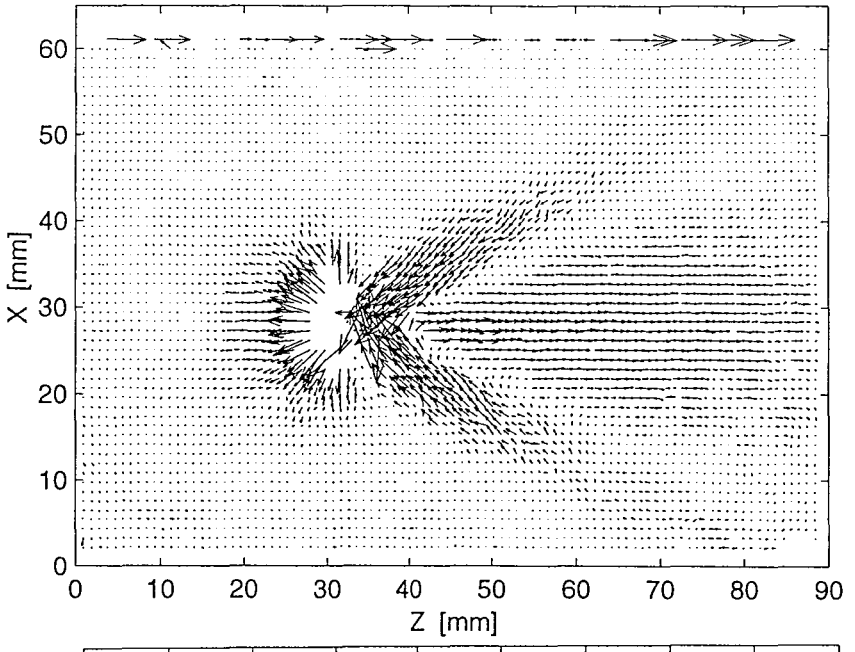
T injection	PAAm 0,5%	PAAm 0,5%	PAAm 0,75%	PAAm 0,75%	PAAm 0,75%	PAAm 0,75%
[s]	nom fichier	volume [m^3]	nom fichier	volume [m^3]	nom fichier	volume [m^3]
0,2	VI.B.1	$190x10^{-9}$	VI.B.6	$300x10^{-9}$	VI.B.10	$900x10^{-9}$
0,5	VI.B.2	$200x10^{-9}$	VI.B.7	$310x10^{-9}$	VI.B.11	$1200x10^{-9}$
1	VI.B.3	$190x10^{-9}$	VI.B.8	$320x10^{-9}$	VI.B.12	$1200x10^{-9}$
5	VI.B.4	$230x10^{-9}$	VI.B.9	$265x10^{-9}$	VI.B.13	$900x10^{-9}$
15	VI.B.5	$250x10^{-9}$				

Tableau VI.B.1 : Conditions des expériences effectuées pour voir l'influence de la période d'injection sur le champ de vitesses

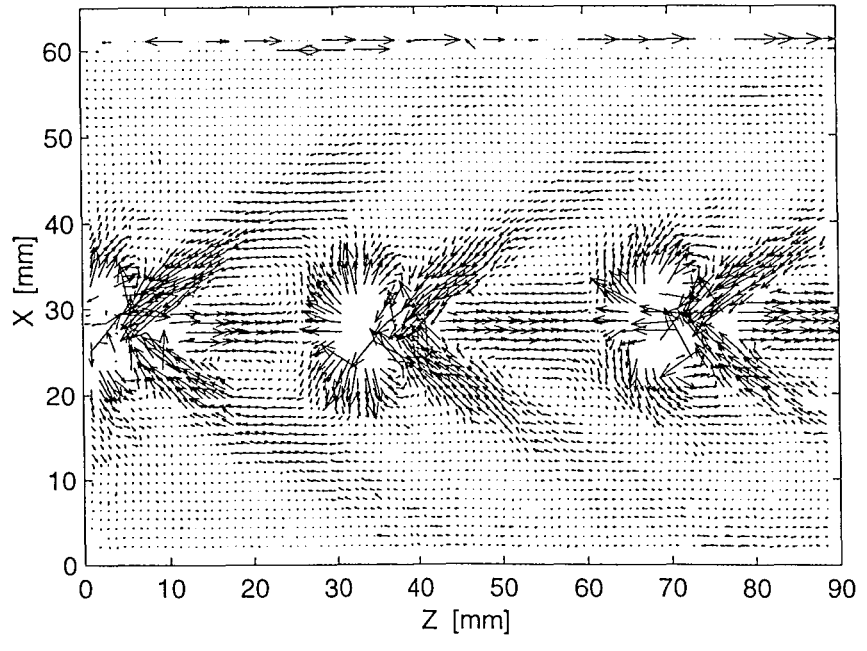
Pour les trois séries d'expériences, on observe une modification de la forme du champ des vitesses particulièrement visible dans la zone 2. En effet, en augmentant la période d'injection, cette zone, qui globalement a la forme d'un cône creux, devient plus épaisse et moins longue.



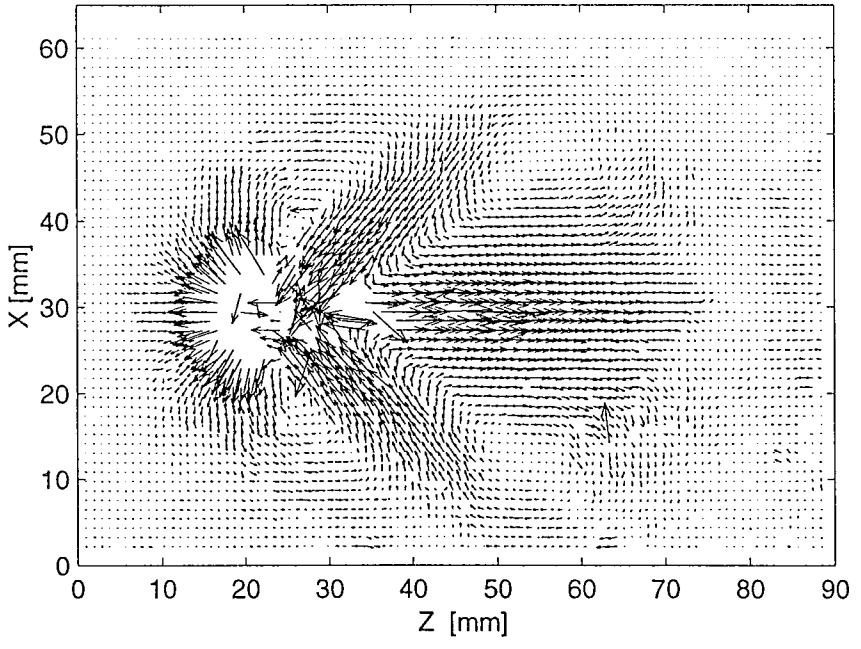
VI.B.3 : PAAm 0,5%
T=1s
V=190x10^{-9} m^3



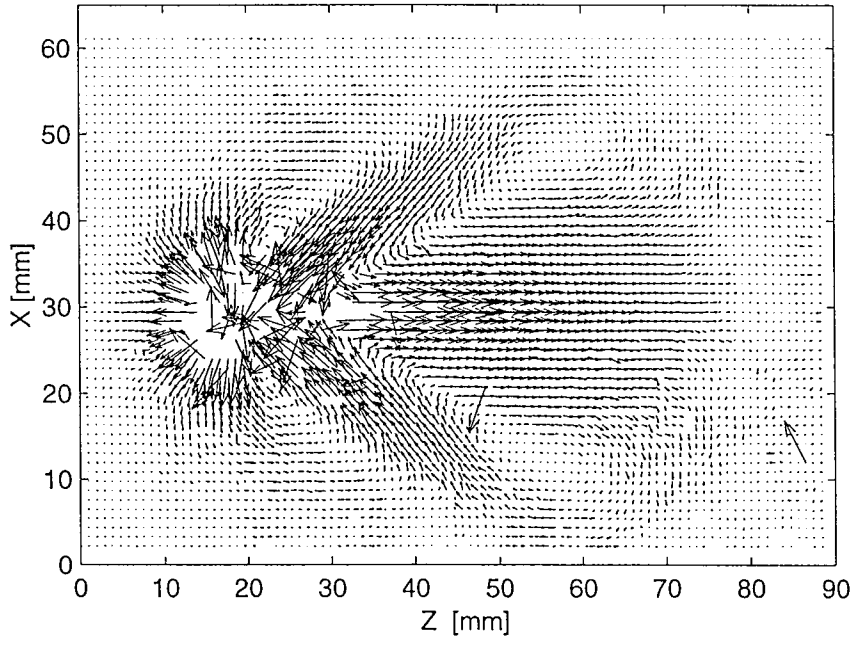
VI.B.2 : PAAm 0,5%
T = 0,5s
V=200x10^{-9} m^3



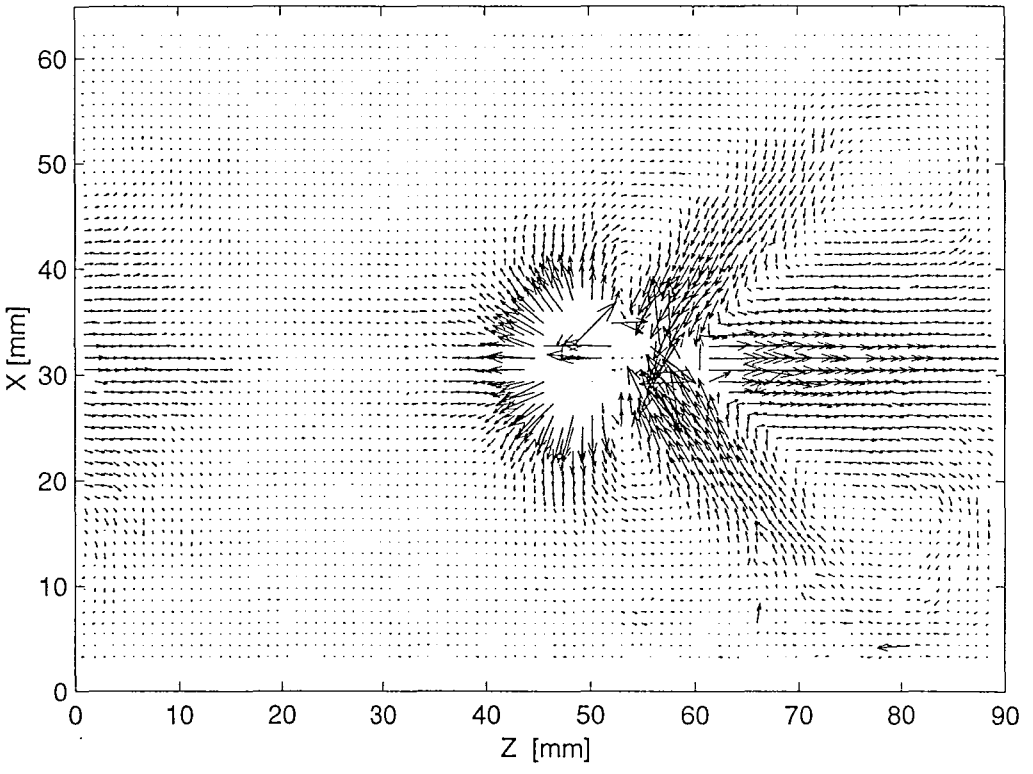
VI.B.1 : PAAm 0,5%
T = 0,2s
V=190x10^{-9} m^3



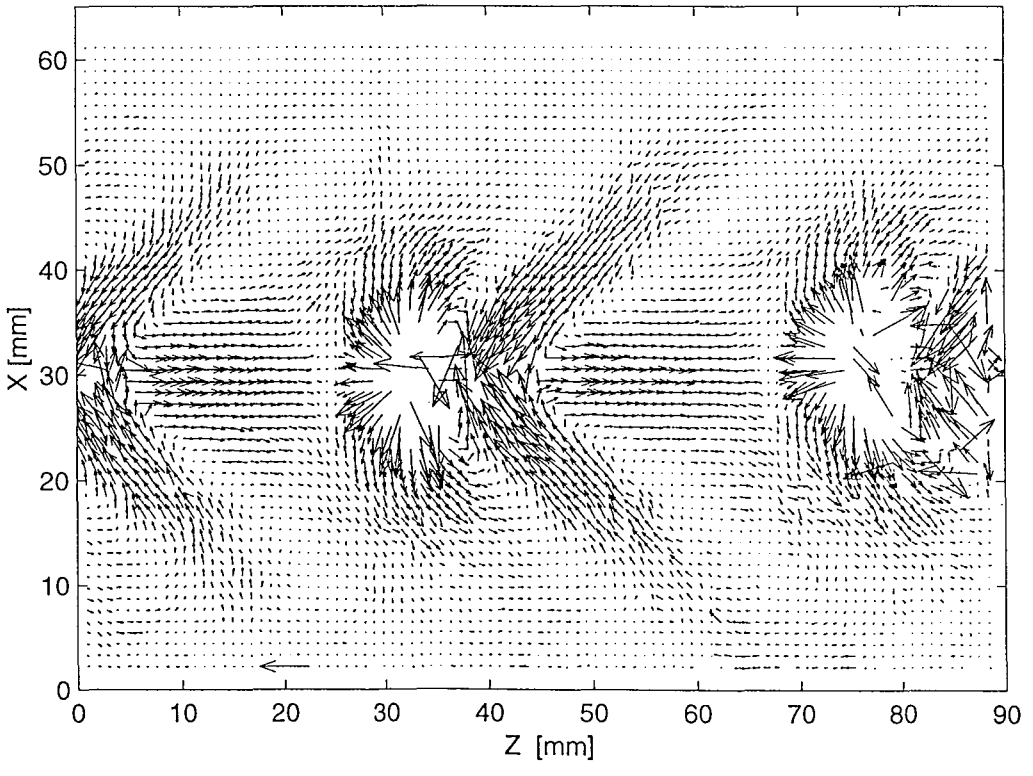
VI.B.5 : PAAm 0,5%
T = 15s
V=250x10^{-9} m^3



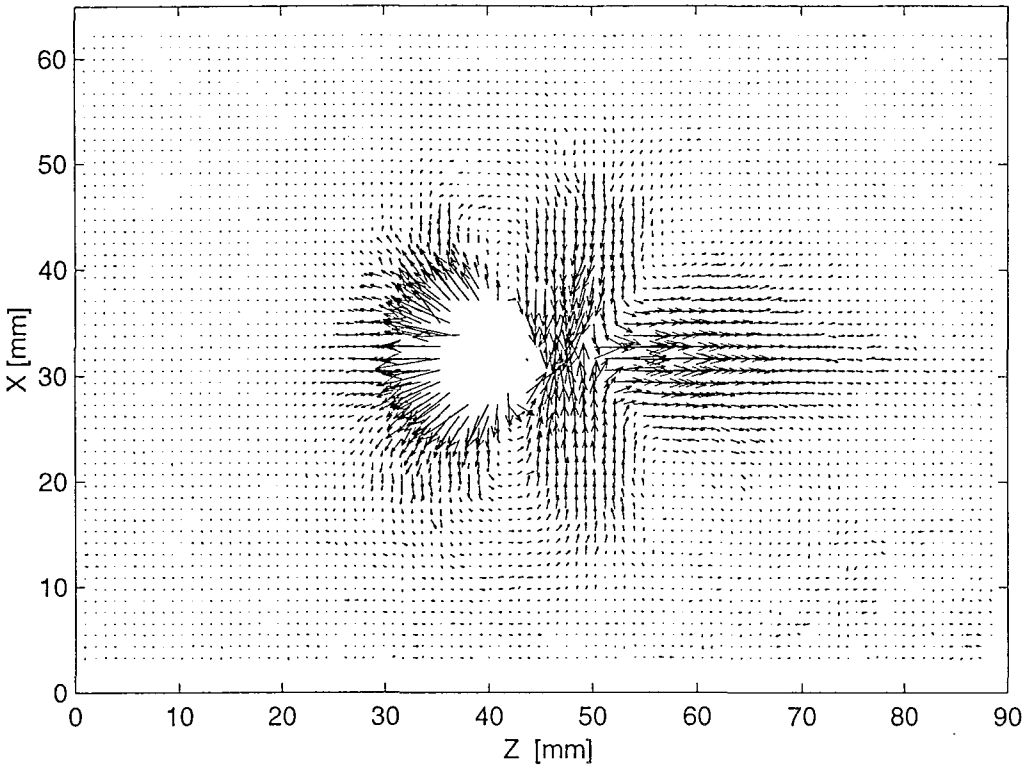
VI.B.4 : PAAm 0,5%
T = 5s
V=230x10^{-9} m^3



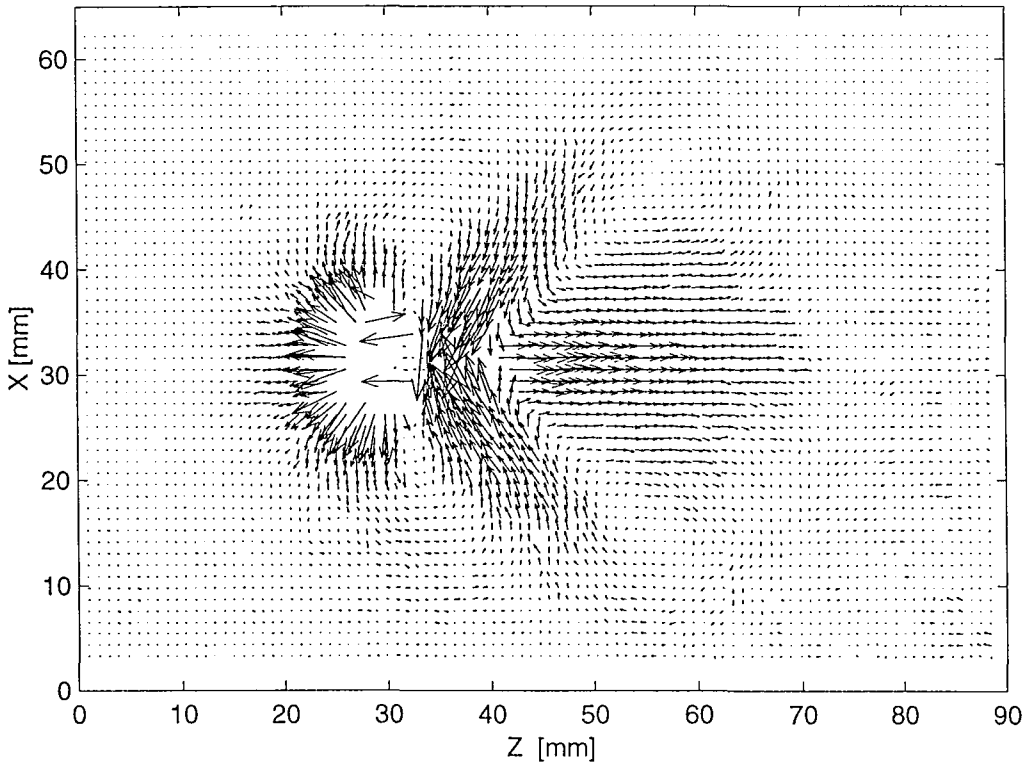
VI.B.7 : PAAm 0,75%
T = 0,5s
V=310x10^{-9} m^3



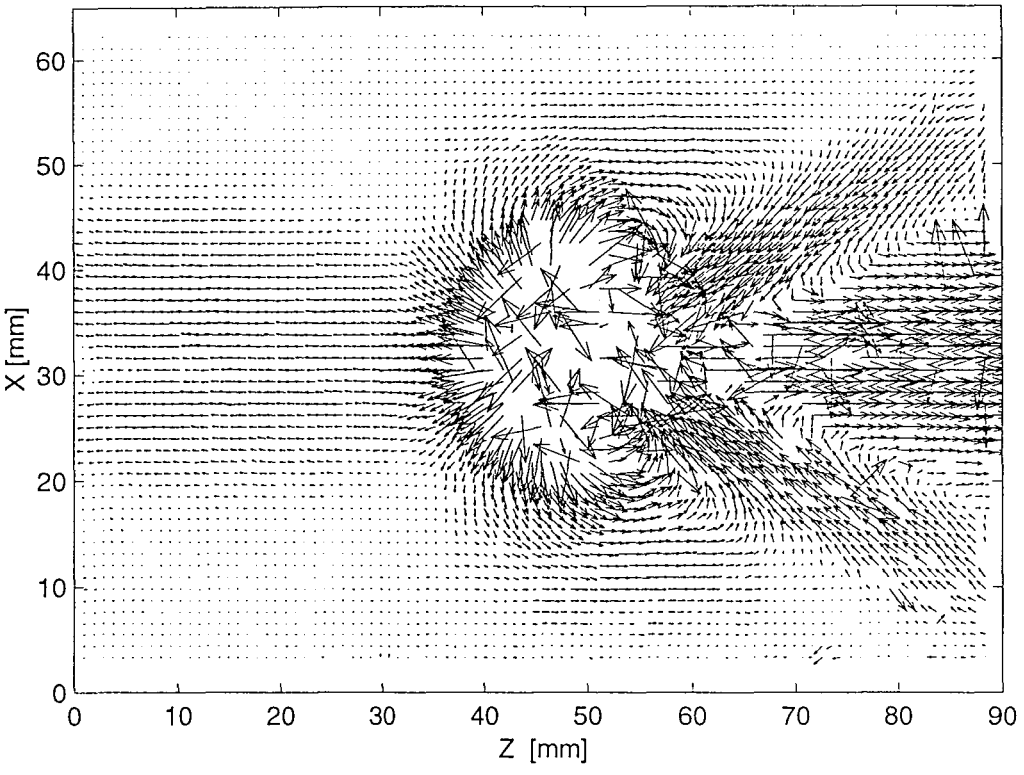
VI.B.6 : PAAm 0,75%
T = 0,2s
V=300x10^{-9} m^3



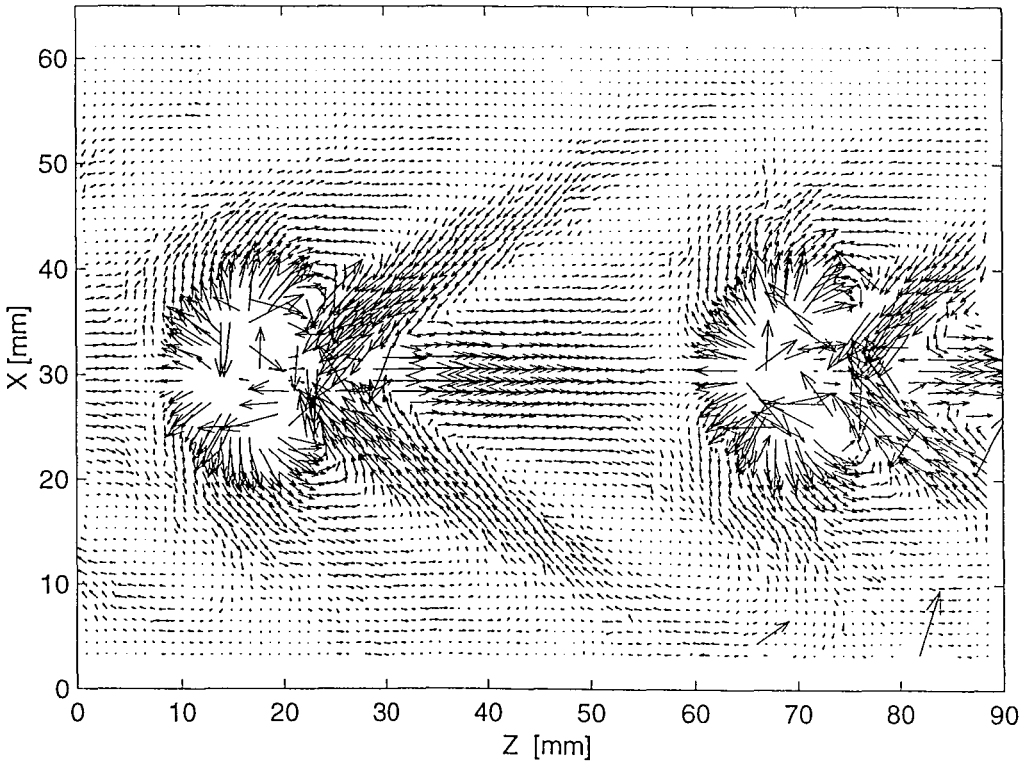
VI.B.9 : PAAm 0,75%
T = 5s
V=265x10^{-9} m^3



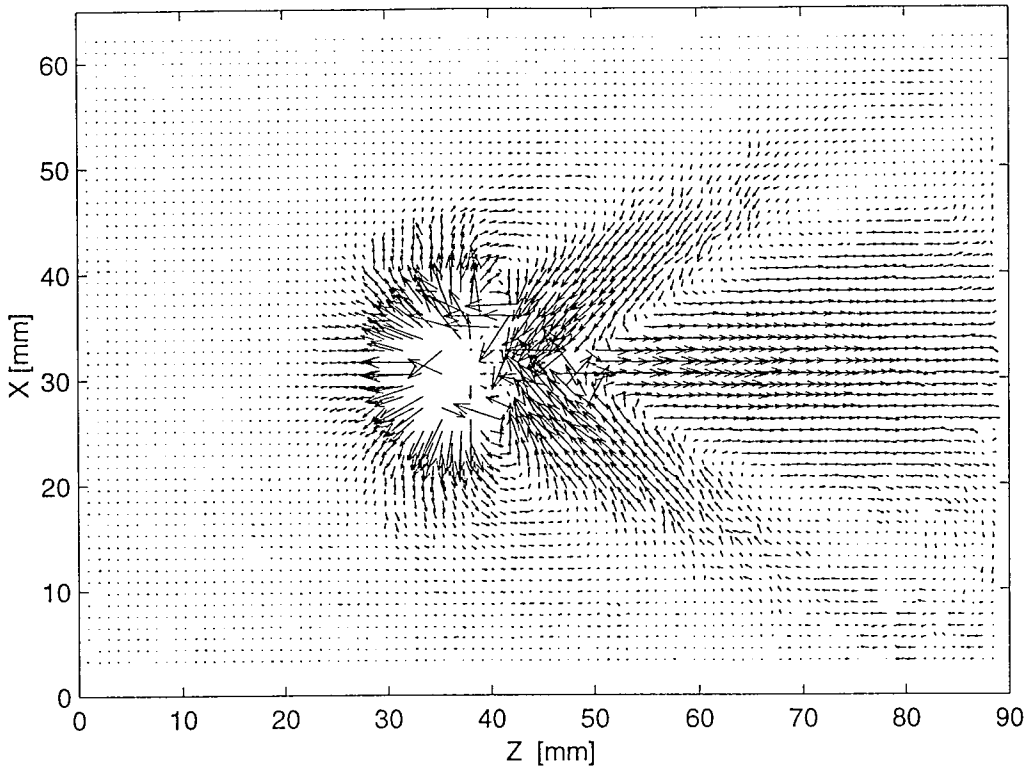
VI.B.8 : PAAm 0,75%
T = 1s
V=320x10^{-9} m^3



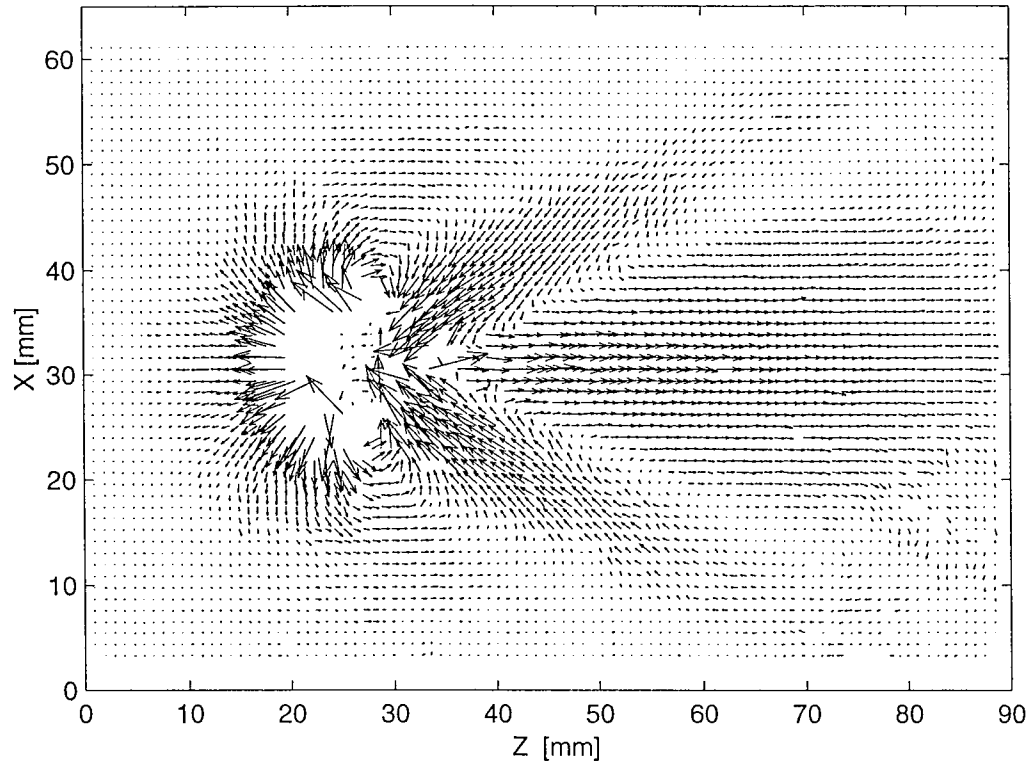
VI.B.11 : PAAm 0,75%
T = 0,5s
V=1200x10^{-9} m^3



VI.B.10 : PAAm 0,75%
T = 0,2s
V=900x10^{-9} m^3



VI.B.13 : PAAm 0,75%
T = 5s
V=900x10^{-9} m^3



VI.B.12 : PAAm 0,75%
T = 1s
V=1200x10^{-9} m^3

Annexe VI.C

Dans cette partie, on superpose le champ de vitesses et la première des deux images successives de la PIV à partir desquelles la cross-correlation est effectuée. Ainsi le mouvement du fluide entourant la bulle peut être connu très précisément à coté de la bulle. Assez souvent, la queue de la bulle, toujours présente dans les solutions viscoélastiques de PAAm, n'apparaît pas toujours du fait que la nappe laser ne passe pas toujours exactement par l'axe de symétrie des bulles.

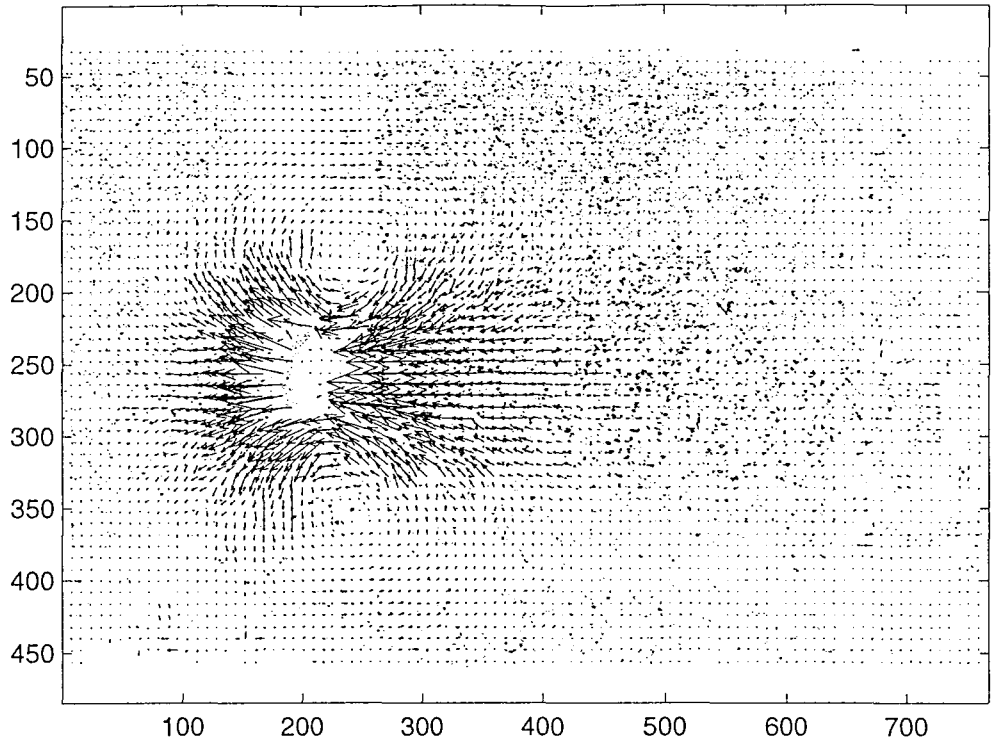
Cette superposition est effectuée pour les mêmes images que celles du chapitre VI.

On constate que la traînée négative ne commence que peu après la bulle, et surtout que les vecteurs vitesses de la zone 2 sont dirigés directement vers les flancs de la bulle, et sont perpendiculaires à la surface de la bulle.

Plus le cône creux a un angle θ grand (petit nombre de Reynolds), plus la bulle est allongée verticalement. Réciproquement, plus le nombre de Reynolds est important, plus l'angle θ est petit et plus l'excentricité des bulles est importante.

Solution	N° figure	Volume	Vitesse	Reynolds
		$x10^{-9}$ [m^3]	[m/s]	
Glycérol 99,5%	VI.C.1	400	0,063	0,67
	VI.C.2	1100	0,11	1,6
CMC 2%	VI.C.3	200	0,13	2,31
	VI.C.4	900	0,2	5,63
PAAm 0,25%	VI.C.5	90	0,17	8,2
	VI.C.6	200	0,23	15
	VI.C.7	700	0,25	19,6
PAAm 0,5%	VI.C.8	80	0,09	1,4
	VI.C.9	190	0,17	4,38
	VI.C.10	1000	0,25	9,5
PAAm 0,75%	VI.C.11	100	0,02	0,047
	VI.C.12	250	0,1	0,836
	VI.C.13	1200	0,25	4,7

Tableau 1 : Conditions expérimentales



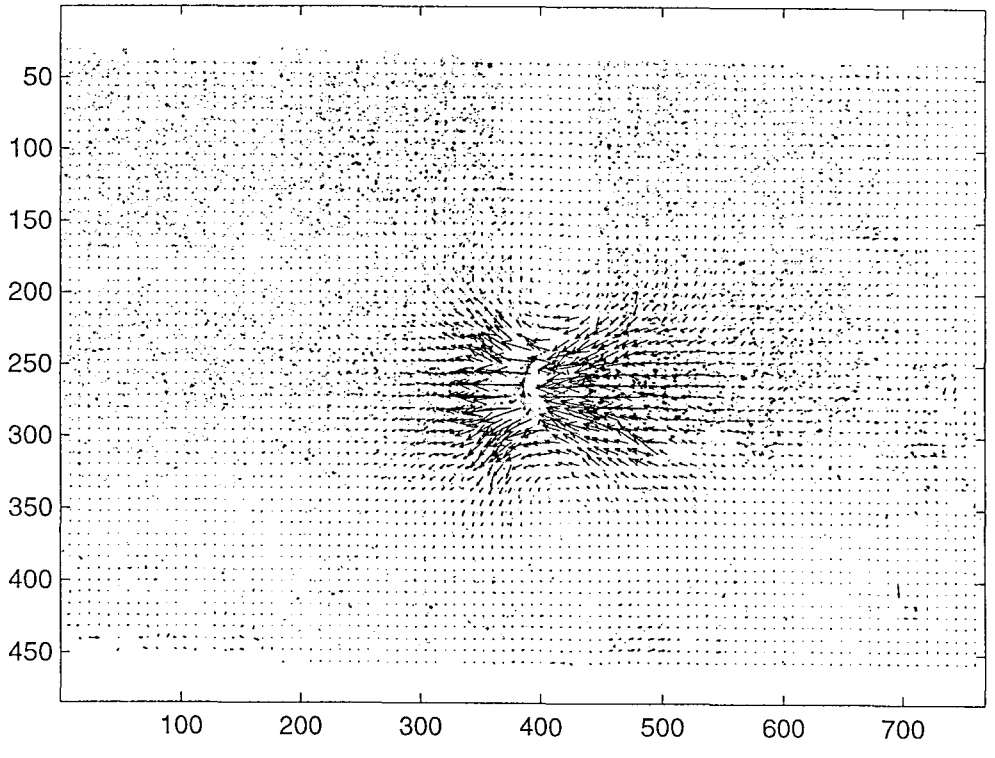


Figure VI.C.1 et 2 : Ascensiond'une bulle de 400 et 1100x10^{-9} m^3, dans du glycérol, vitesse ascensionnelle 0,063 et 0,11 m/s nombres de Reynolds 0,67 et 1,6 respectivement

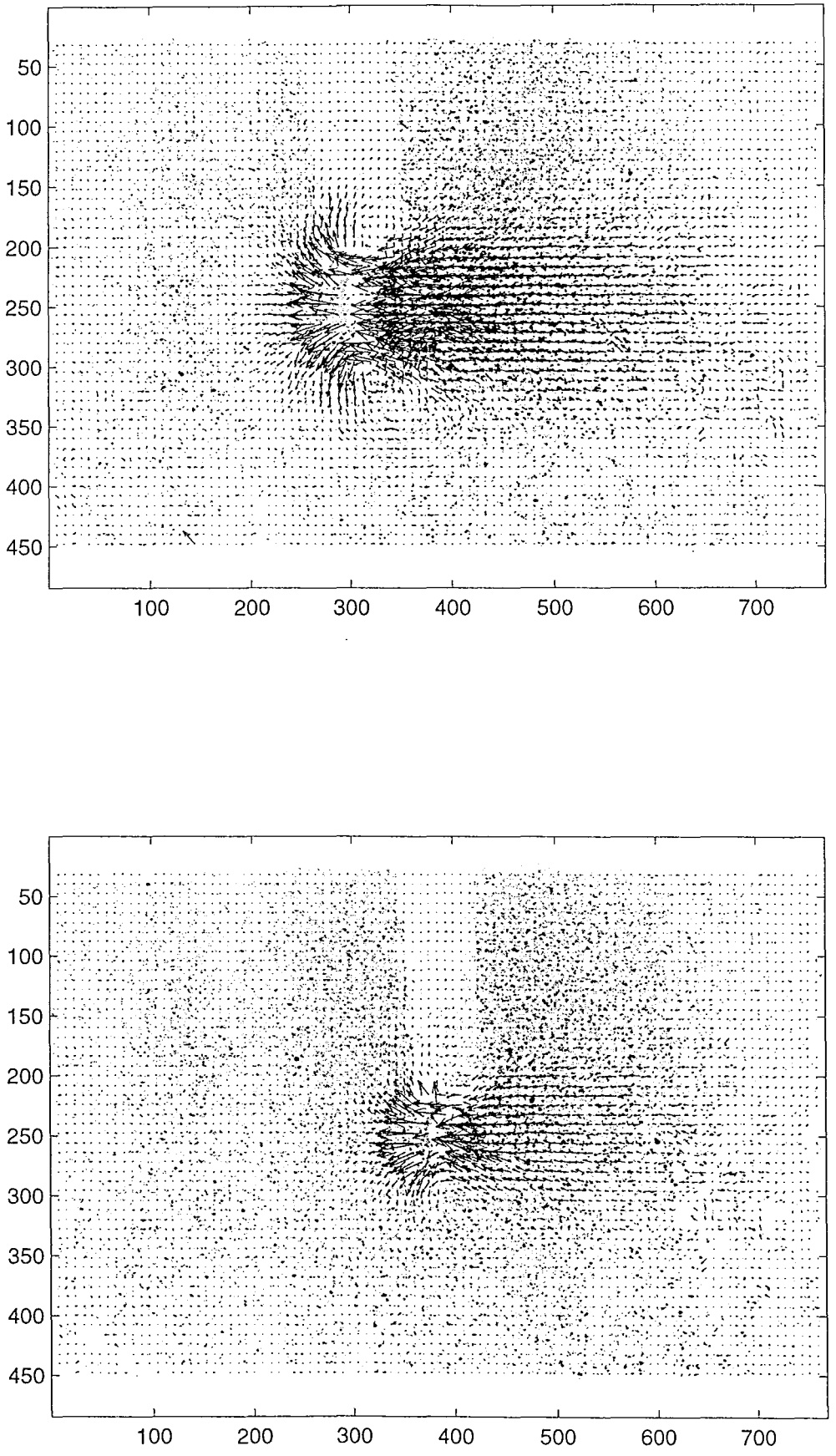


Figure VI.C.3 et 4 : Ascensiond'une bulle de 200 et 900x10^{-9} m^3, dans une solution de CMC 2%, vitesse ascensionnelle 0,13 et 0,2 m/s, nombres de Reynolds 2,31 et 5,63 respectivement

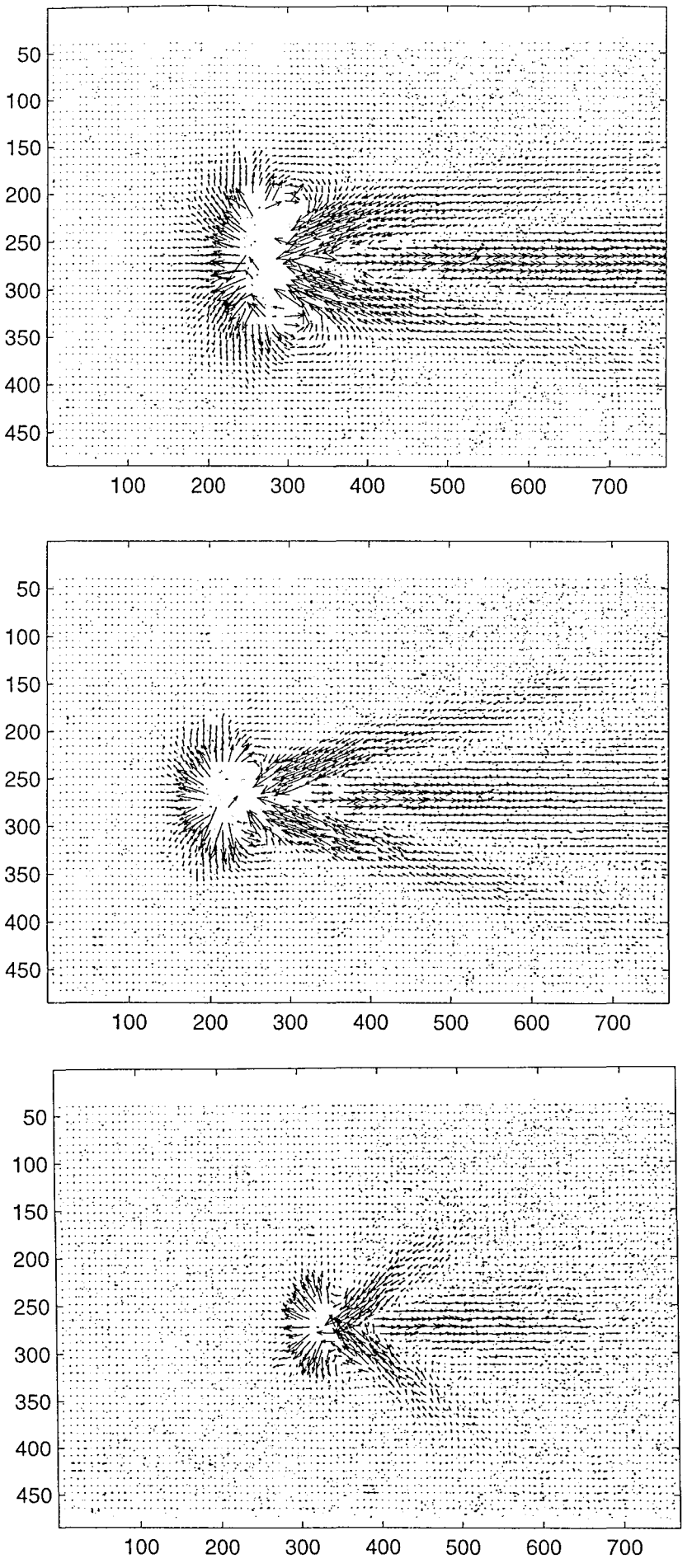


Figure VI.C.5, 6 et 7 : Ascensiond'une bulle de 90 - 200 et 700x10^{-9} m^3, dans une solution de PAAm 0,25%, vitesse ascensionnelle 0,17 - 0,23 et 0,25 m/s, nombres de Reynolds 8,2 - 15 et 19,6 respectivement

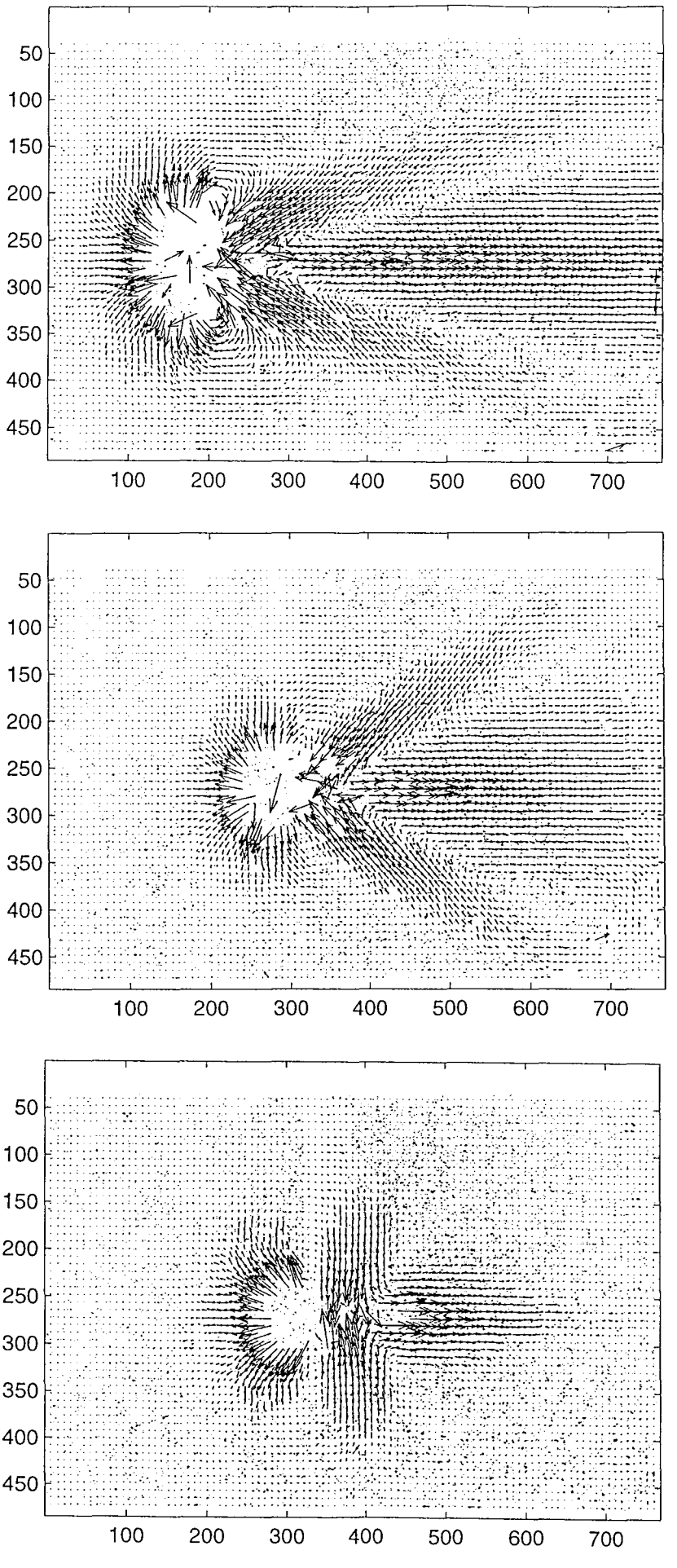


Figure VI.C.8, 9 et 10 : Ascensiond'une bulle de 80 - 190 et 1000x10^{-9} m^3, dans une solution de PAAm 0,5%, vitesse ascensionnelle 0,09 - 0,17 et 0,25 m/s, nombres de Reynolds 1,4 - 4,38 et 9,5 respectivement

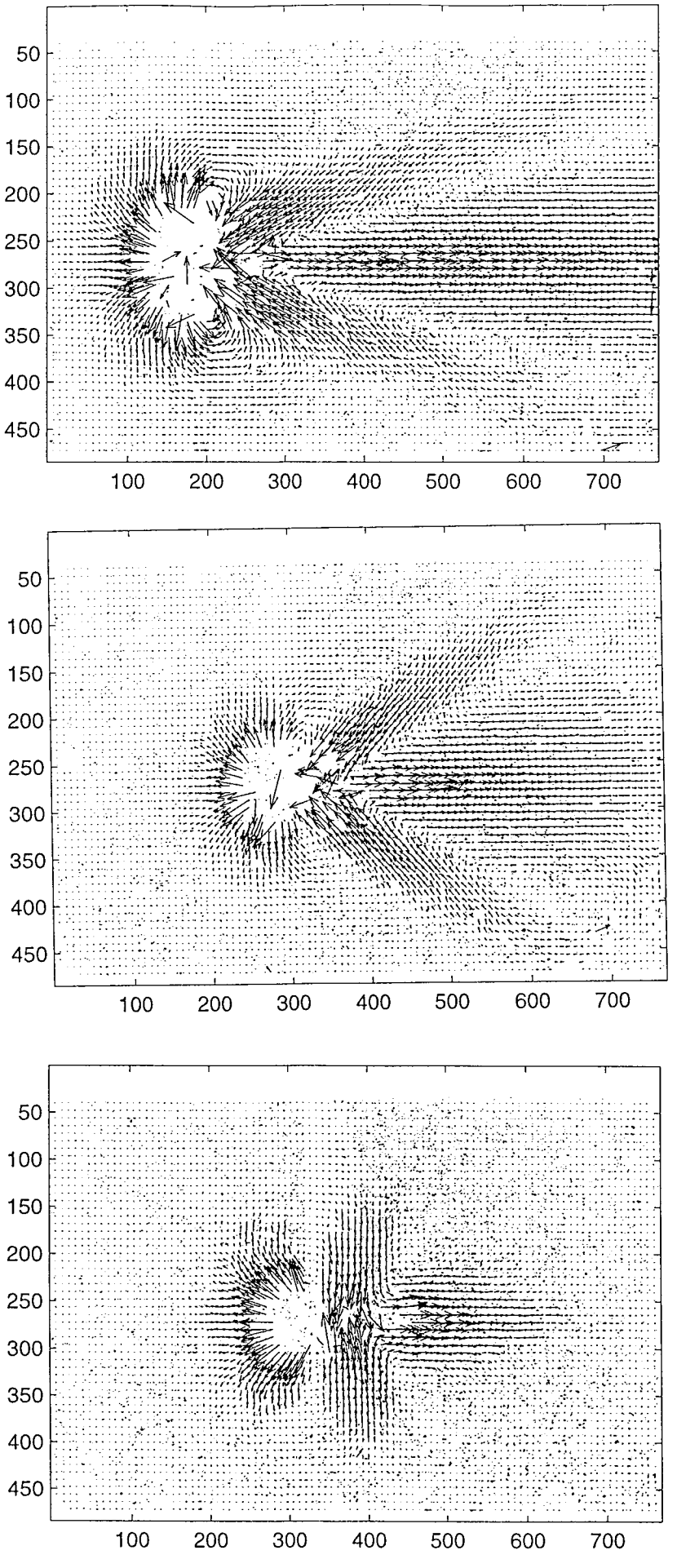


Figure VI.C.11, 12 et 13 : Ascensiond'une bulle de 100 - 250 et 1200x10^{-9} m^3, dans une solution de PAAm 0,75%, vitesse ascensionnelle 0,02 - 0,1 et 0,25 m/s, nombres de Reynolds 0,047 - 0,84 et 4,7 respectivement

Annexe chapitre VII

Annexe VII.A : Rappels d'électromagnétisme - biréfringence d'écoulement

Annexe VII.B : Propriétés rhéologiques d'une solution d'Hydroxy Propyl Cellulose

Annexe VII.A : Rappels sur l'électromagnétisme - biréfringence d'écoulement

VII.A.1 Rappels sur l'électromagnétisme

Selon la théorie de l'électromagnétisme, les phénomènes lumineux peuvent être considérés comme liés à la propagation simultanée d'un champ électrique $\vec{E}$ et d'un champ magnétique $\vec{H}$, deux vecteurs fonctions sinusoïdales du temps, constamment perpendiculaires entre eux ainsi qu'à la direction de propagation. La lumière naturelle est formée de vibrations rectilignes émises par les atomes ou les molécules lorsque leur état d'excitation varie. Ces variations interviennent à des intervalles de temps irréguliers, très grands par rapport aux périodes de vibration T (qui sont de l'ordre de 10^{-15}s alors que la « durée de vie » d'un atome excité est de l'ordre de 10^{-9}s), mais très petits par rapport aux temps des récepteurs de lumière (10^{-3}s, parfois plus) (Encyclopédie Universalis).

Pour un rayon se propageant dans la direction z, le champ électrique oscille et l'onde peut s'exprimer par :

$$E(z,t) = E_m \cos(2\pi\nu t - k z)$$

avec : ν la fréquence d'oscillation [s^{-1}]

λ la longueur d'onde [m]

$k = \frac{2\pi}{\lambda}$ le vecteur d'onde [m^{-1}]

Le terme kz détermine la disposition spatiale de l'onde, notamment son amplitude et l'oscillation de son amplitude à un instant donné. Le vecteur d'onde k dépend de l'indice de réfraction du milieu, n, au travers de la longueur d'onde λ, car :

$$\lambda = C\,T = \frac{\lambda_o}{n} = \frac{C_o}{n}\,T$$

C_O : vitesse de propagation de la lumière dans le vide [m/s]

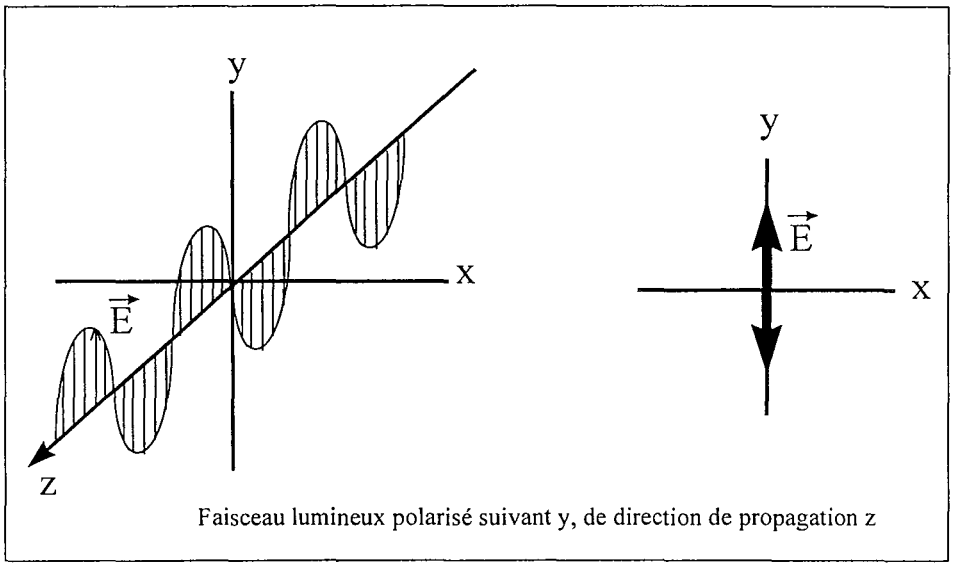
C : vitesse de propagation de la lumière dans le milieu d'indice n

λ_O : longueur d'onde dans le vide [m]

T : période des oscillations [s]

Polarisation d'une onde électromagnétique

Un rayon lumineux est dit polarisé rectilignement suivant la direction y lorsque les directions de vibration de tous les vecteurs champs électriques des champs électromagnétiques composant ce rayon lumineux, sont suivant l'axe y (figure VII.A.1). De même, un rayon lumineux est non polarisé, lorsque les vecteurs champ électrique des ondes électromagnétiques ont une orientation aléatoire (figure VII.A.2).



FigureVII.A.1 : Polarisation rectiligne de la lumière suivant y

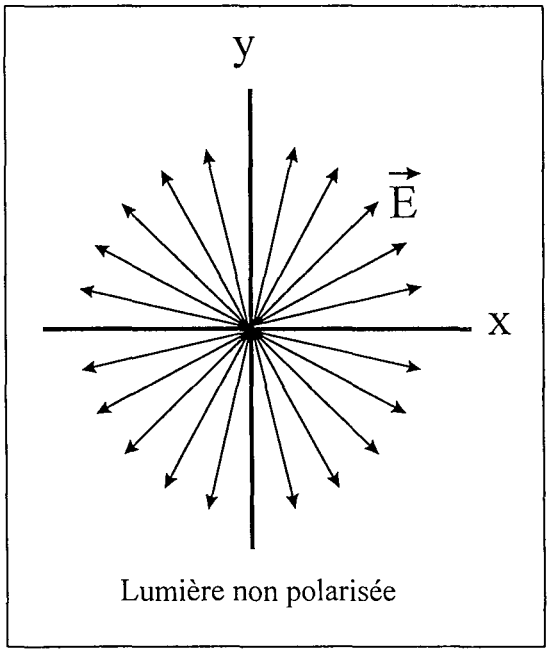


Figure VII.A.2 Faisceau lumineux non polarisé

Angle de phase entre deux ondes polarisées

Pour comprendre l'importance de l'angle de phase, considérons deux ondes polarisées suivant x et y respectivement, de même amplitude et ayant un angle relatif ϕ.

$$E_x = E_o \cos(2\pi\nu t)$$

$$E_y = E_o \cos(2\pi\nu t + \phi)$$

Les ondes lumineuses obéissent au principe de superposition, la figure VIi.A.3 donne la résultante de ces deux ondes.

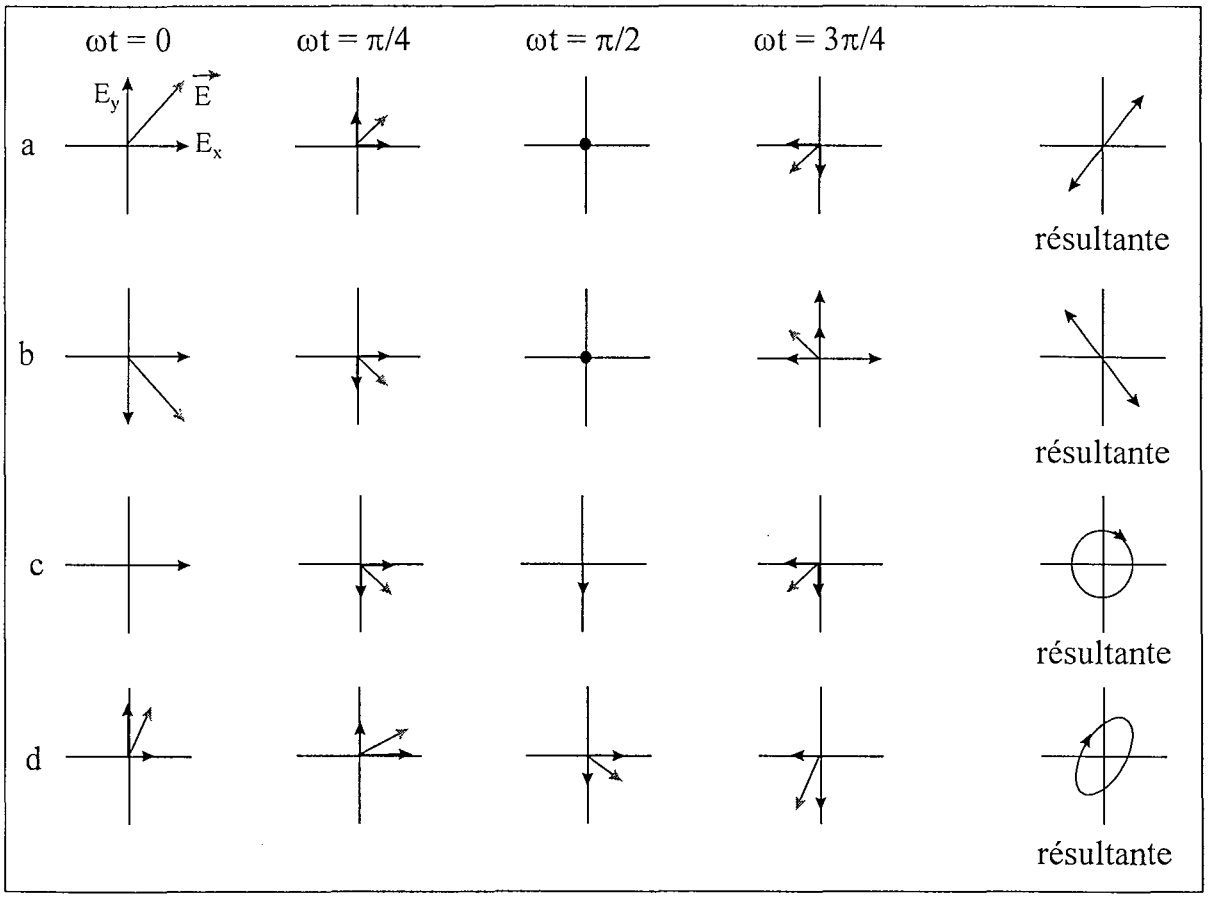


Figure VII.A.3 : résultante de la superposition de deux ondes lumineuses polarisées

Cas a : $\phi = 0°$

E_X et E_Y sont en phase, la résultante est une lumière polarisée rectilignement qui oscille sur la ligne à 45°

Cas b : $\phi = 180°$

Au cours du temps, E_X passe par son maximum quand E_Y est à son minimum et inversement. La résultante est une lumière polarisée rectilignement qui oscille sur la ligne à - 45°.

Cas c : $\phi = 90°$

E_X passe par son maximum ou son minimum lorsque $E_Y = 0$ et vice versa. La résultante décrit dans le plan x-y un cercle, la lumière est polarisée elliptiquement.

Cas d : ϕ quelconque

Pour ϕ quelconque et différent des cas précédents, la résultante décrit une ellipse dans le plan x-y. La lumière est polarisée elliptiquement.

Action d'une lame biréfringente

Considérons maintenant le cas d'une lumière polarisée rectilignement au travers d'une lame de mica possédant deux indices de réfraction n_1 et n_2 suivant les directions x et y respectivement. La lumière polarisée fait un angle θ avec la direction x. L'onde se décompose en deux champs électriques en phase :

$$E_x = E_o\cos(\theta)\cos(2\pi\nu t)$$
$$E_y = E_o\sin(\theta)\cos(2\pi\nu t)$$

Après la traversée d'une longueur L de mica, les ondes sont :

$$E_x = E_o\cos(\theta)\cos(2\pi\nu t - k_1 L)$$
$$E_y = E_o\sin(\theta)\cos(2\pi\nu t - k_2 L)$$

La différence de phase ou retard est alors $\delta = k_1 L - k_2 L$

$$\delta = \frac{2\pi L}{\lambda_1} - \frac{2\pi L}{\lambda_2} = \frac{2\pi n_1 L}{\lambda_0} - \frac{2\pi n_2 L}{\lambda_0}$$

$$\delta = \frac{2\pi\,\Delta n\, L}{\lambda_0}$$

Lorsque $\delta = \pi$, le retard est d'une demie période et la lame est appelée lame demi-onde $\lambda/2$.

Lorsque $\delta = \frac{\pi}{2}$, le retard est égale au quart d'une période. La lame est alors appelée lame quart d'onde $\lambda/4$.

Dans le cas particulier où l'orientation de la lumière polarisée incidente coïncide avec l'un de deux axes principaux, $\theta = 0$ ou $\theta = \frac{\pi}{2}$, l'un des vecteurs projetés E_X ou E_Y est nul. Il ne peut donc y avoir de retard de phase : ce sont les lignes neutres.

VII.A.2 Quelques notions de biréfringence

La biréfringence naturelle est connue depuis fort longtemps pour certains matériaux comme le spath d'Islande. Une lumière qui les traverse ne se propage pas à la même vitesse suivant que son plan de polarisation est parallèle à l'une ou l'autre des deux directions perpendiculaires propres au corps biréfringent. Cette différence de vitesses de propagation est due à une anisotropie du matériau. Suivant une direction propre, le matériau a un indice de réfraction n_1 tandis que dans les directions perpendiculaires, l'indice de réfraction est n_2. Si la lumière incidente est polarisée, l'anisotropie du matériau traversé induit un retard de phase entre les deux composantes de la lumière. Ce retard de phase sera visible sur un analyseur.
Suivant leur origine, on peut distinguer deux sortes de biréfringence : une biréfringence de forme et une biréfringence d'écoulement.

La biréfringence de forme provient d'une orientation permanente des molécules du matériau comme dans le spath d'Islande ou les cristaux smectiques, nématiques, myéliniques ou cholestériques. Dans ces derniers exemples, l'anisotropie vient de l'orientation des chaînes ou tout au moins d'une partie de ces chaînes de polymère. Les cristaux liquides sont l'application la plus répandue de la biréfringence de forme. Dans ce dernier cas, les cristaux liquides nématiques entre polariseurs croisés s'orientent sous l'effet d'une tension électrique.

La biréfringence d'écoulement qui nous intéresse plus particulièrement ici, provient de l'orientation des molécules de polymère sous l'effet de l'écoulement.
L'amplitude de la biréfringence mesurée dépend de deux facteurs (Makosco 1994) :

- le premier facteur est le degré d'orientation des molécules. Il est proportionnel à la contrainte, ce qui est à l'origine de l'intérêt de cette technique
- le second facteur est la différence d'indice de réfraction suivant les deux axes propres du matériau. Ce facteur reflète l'anisotropie de la polarisabilité des unités de monomère et détermine le signe et l'amplitude de la constante C de Brewster.

Une loi photoélastique relie le tenseur des indices de réfraction avec le tenseur des contraintes.
D'une part, ces tenseurs ont des axes principaux confondus, d'autre part, il existe une relation de proportionnalité entre les composantes de ces deux tenseurs :

$$n - \langle n \rangle I = C(\tau + pI)$$

$\langle n \rangle$ tenseur des indices de réfraction moyens °
p pression hydrostatique [Pa]
I tenseur identité
C coefficient de Brewster ou coefficient contrainte-optique

τ tenseur des contraintes [Pa]

Considérons un écoulement de cisaillement simple où x est la direction de l'écoulement et y est perpendiculaire au plan de cisaillement. En notant σ_1 et σ_2 les contraintes principales, et χ l'angle entre un axe principal et la direction de l'écoulement, on obtient les relations :

$$2\tau_{12} = \Delta\sigma \sin(2\chi)$$

$$\tau_{11} - \tau_{22} = \Delta\sigma \cos(2\chi)$$

où $\Delta\sigma = \sigma_1 - \sigma_2$

Par la loi rhéo-optique, on peut écrire :

$$2\tau_{12} = \left(\frac{1}{2C}\right) \Delta n_{12} \sin(2\chi)$$

$$\tau_{11} - \tau_{22} = \left(\frac{1}{C}\right) \Delta n_{12} \cos(2\chi)$$

Dans la pratique, pour détecter la biréfringence, on fait traverser par un faisceau lumineux, un dispositif comprenant deux polaroïdes croisés, situés de part et d'autre de la cellule de visualisation. Le premier polaroïde appelé polariseur transforme le faisceau incident en une lumière polarisée rectilignement.
Quand il n'y a pas de biréfringence dans la cellule de visualisation, le deuxième polaroïde, appelé analyseur, entraîne une extinction lumineuse totale s'il est croisé (i.e. si sa direction de polarisation fait un angle de 90° avec le polariseur).
Par contre, s'il y a écoulement, la biréfringence entraîne un changement dans la direction de polarisation de la lumière. Ainsi l'extinction, après l'analyseur, ne sera plus totale là où le matériau est biréfringent.

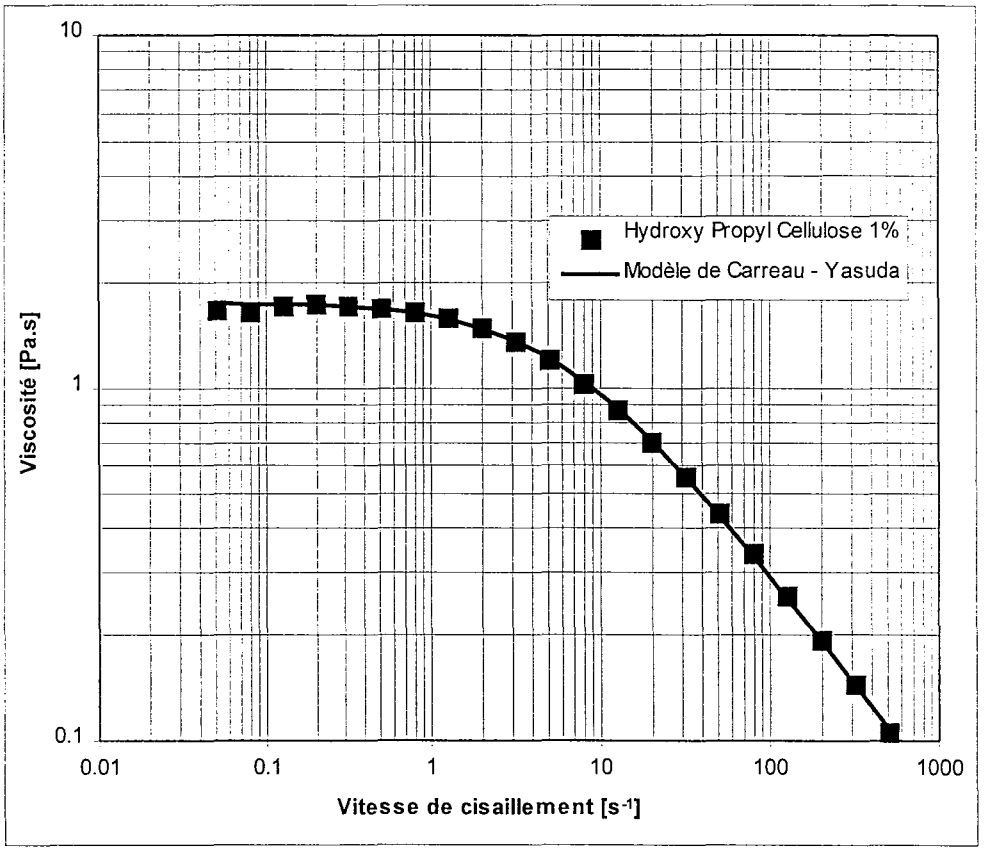
Dans un montage comportant deux polaroïdes croisés, lorsque la direction de polarisation de la lumière incidente est suivant une des deux directions des contraintes principales, la projection de l'onde électromagnétique incidente n'a qu'une composante dans le repère formé par les directions principales des indices de réfraction. Ainsi, il ne peut y avoir de déphasage, et la direction de polarisation de la lumière reste inchangée. Ceci se traduit par une extinction totale après l'analyseur, et donc la présence d'une frange noire.
En pratique, pour remédier à cela, on crée une lumière incidente polarisée circulairement. En sortie, l'analyseur sera un analyseur circulaire.

Dans les montages des rhéomètres optiques, en plus des polaroïdes croisés, une lame tournante $\lambda/4$ ou un polariseur tournant sont souvent utilisés. Ceci permet de connaître la contrainte mais aussi la direction des contraintes principales par la connaissance de l'angle d'extinction.

Annexe VII.B : Propriétés rhéologiques d'une solution d'Hydroxy Propyl Cellulose

Pour étudier les contraintes crées par l'ascension des bulles par biréfringence d'écoulement, une solution d'Hydroxy Propyl Cellulose de 1% dans de l'eau permutée est utilisée. Cette solution est hautement biréfringente. Dans cette annexe, nous présentons les principales caractéristiques rhéologiques de cette solution.

Viscosité en fonction du cisaillement :



La solution d'HPC 1% est rhéofluidifiante, et possède un premier plateau newtonien bien marqué. La viscosité du HPC 1% se modélise bien par le modèle de Carreau-Yasuda :

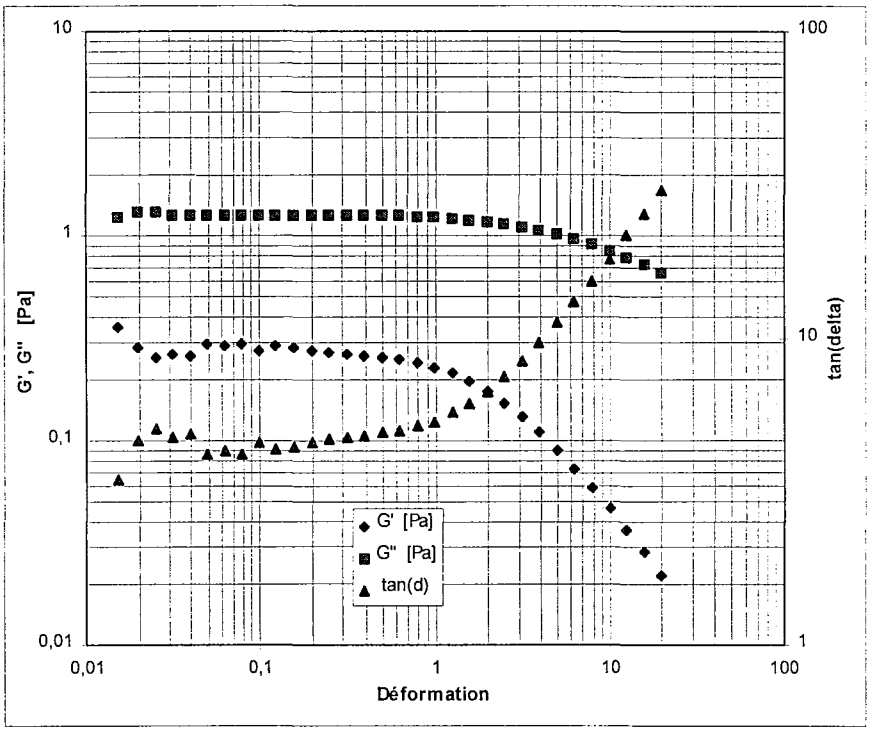
$$\eta = \eta_0 \left[1 + (\lambda\dot{\gamma})^a\right]^{\frac{m-1}{a}} = 1{,}74\left[1 + (0{,}15\dot{\gamma})^{1{,}03}\right]^{\frac{0{,}37-1}{1{,}03}}$$

Dans la zone de rhéofluidification, le fluide suit à peu près la loi de puissance :

$$\eta = K\dot{\gamma}^{n-1} = 3{,}2\,\dot{\gamma}^{1-0{,}47}$$

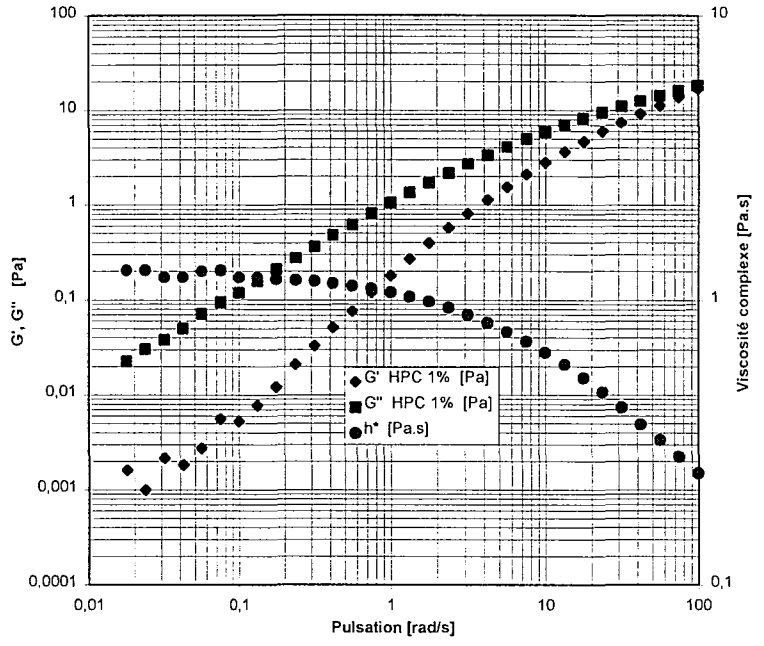
Domaine d'élasticité linéaire :

Pour une fréquence de 1 rad/s, un balayage en déformation est effectuée. D'après ce test, comme on le voit sur le diagramme, le domaine d'élasticité linéaire va jusqu'à une déformation de 0,8.



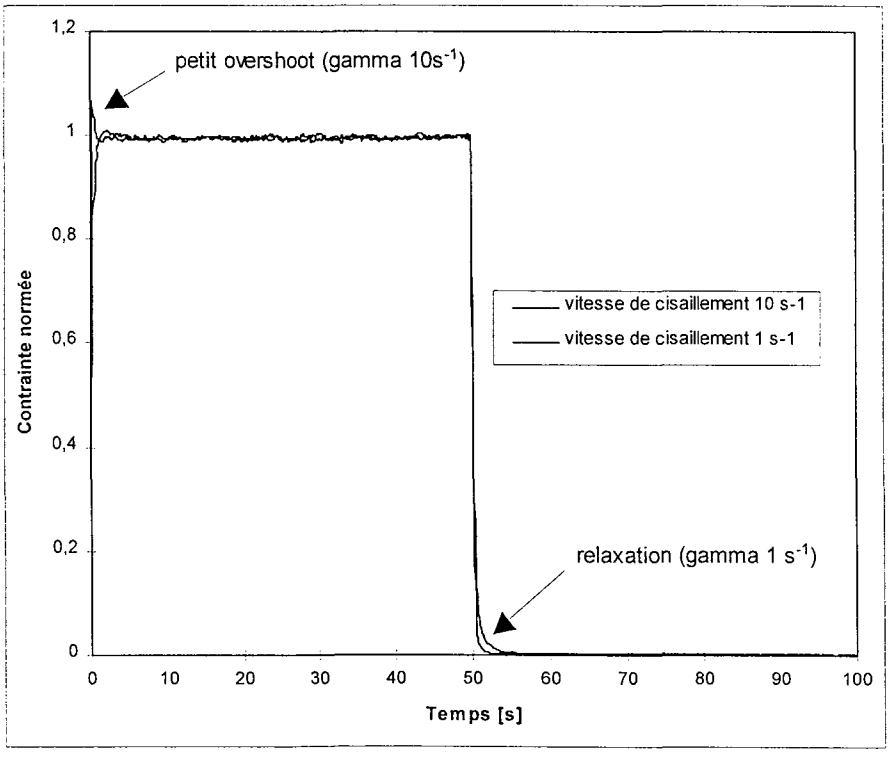
Spectre mécanique

Pour une déformation de 0,5, un balayage en fréquence est effectué.



La solution d'HPC 1% possède une certaine élasticité. Cette élasticité est cependant bien plus faible que celle des solutions de PAAm.

Relaxation des contraintes après un échelon de cisaillement



Suite à un échelon de vitesses de cisaillement, la solution de HPC 1% présente un petit overshoot ou dépassement de contrainte pour la vitesse de cisaillement de 10 s^{-1}. Après arrêt du cisaillement, la contrainte met quelques secondes à se relaxer. Ce temps nécessaire à la relaxation de la contrainte est plus important après l'échelon de vitesse de cisaillement de 1 s^{-1}.

Annexe chapitre VIII

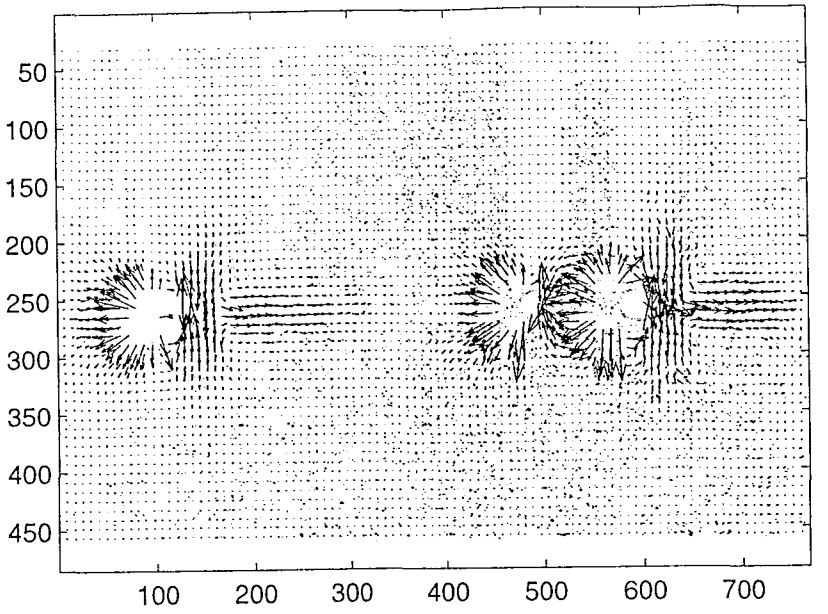
Annexe VIII.A : Superposition du contour des bulles et du champ de vitesses lors d'une coalescence

Annexe VIII.B : Superposition du contour des bulles et du champ de vitesses pour différents débits de gaz

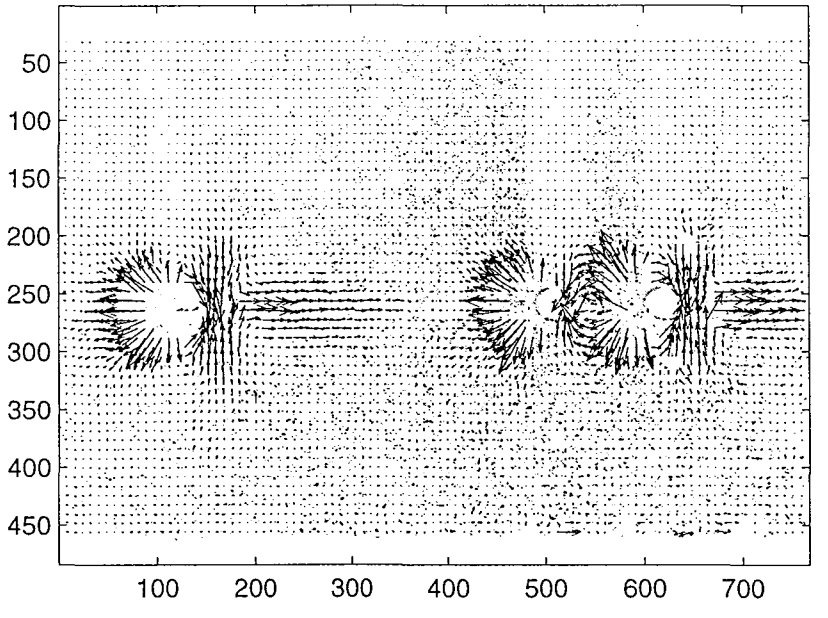
Annexe VIII.C : Influence de très faibles périodes d'injection sur la vitesse ascensionnelle des bulles

Annexe VIII.A : Superposition du contour des bulles et du champ de vitesses lors d'une coalescence

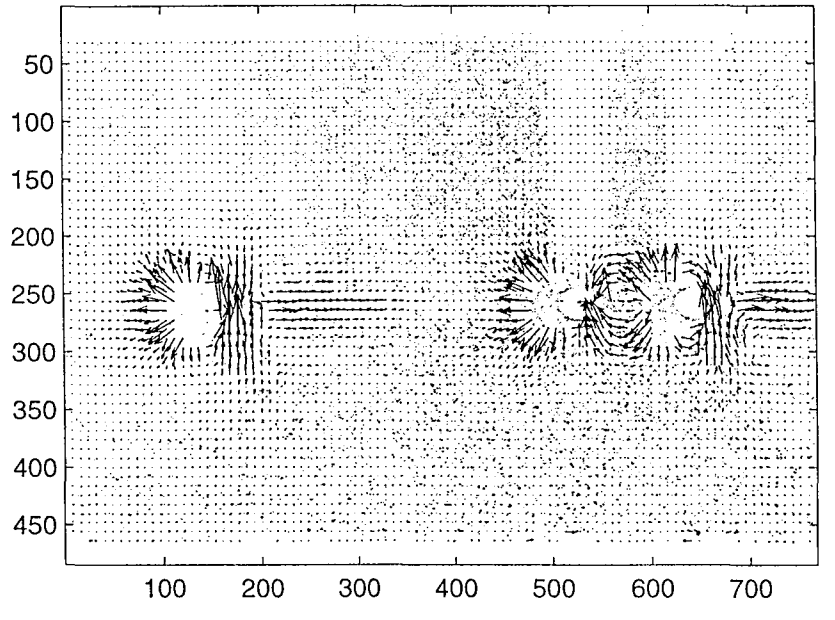
Ces images correspondent aux champs de vitesses VIII.1.a à VIII.1.l et VIII.2.a à VIII.2.f. Il est intéressant de voir l'évolution du champ de vitesses lors de l'approche des deux bulles en même temps que leurs positions relatives.



VIII.A.1.c

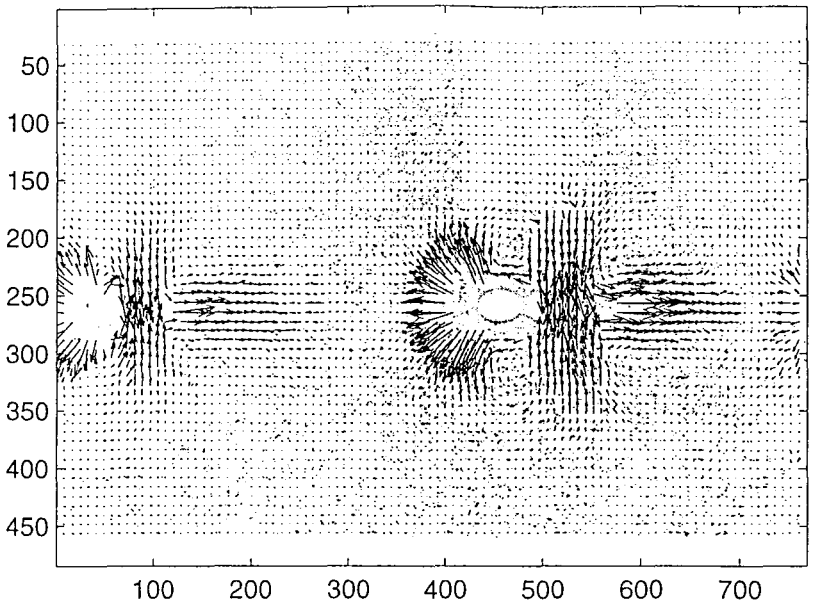


VIII.A.1.b

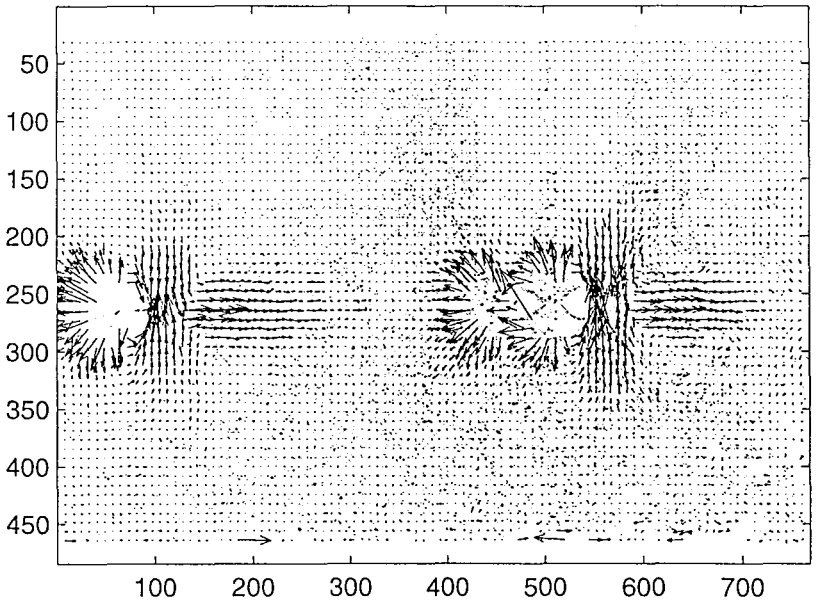


VIII.A.1.a

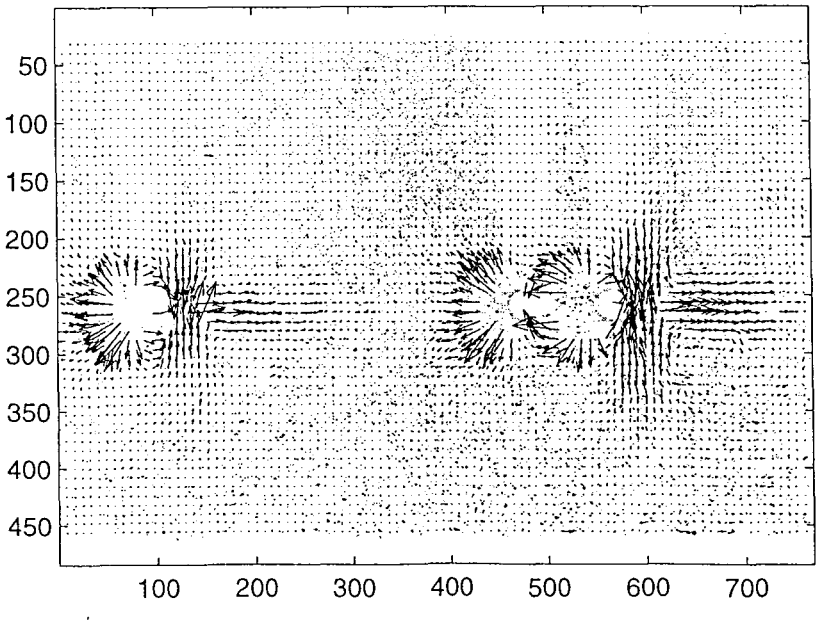
Figure VIII.A.1.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,75%, pour un débit de 0,1x10^{-6} m^3/s. Temps entre images 1/15s



VIII.A.1.f

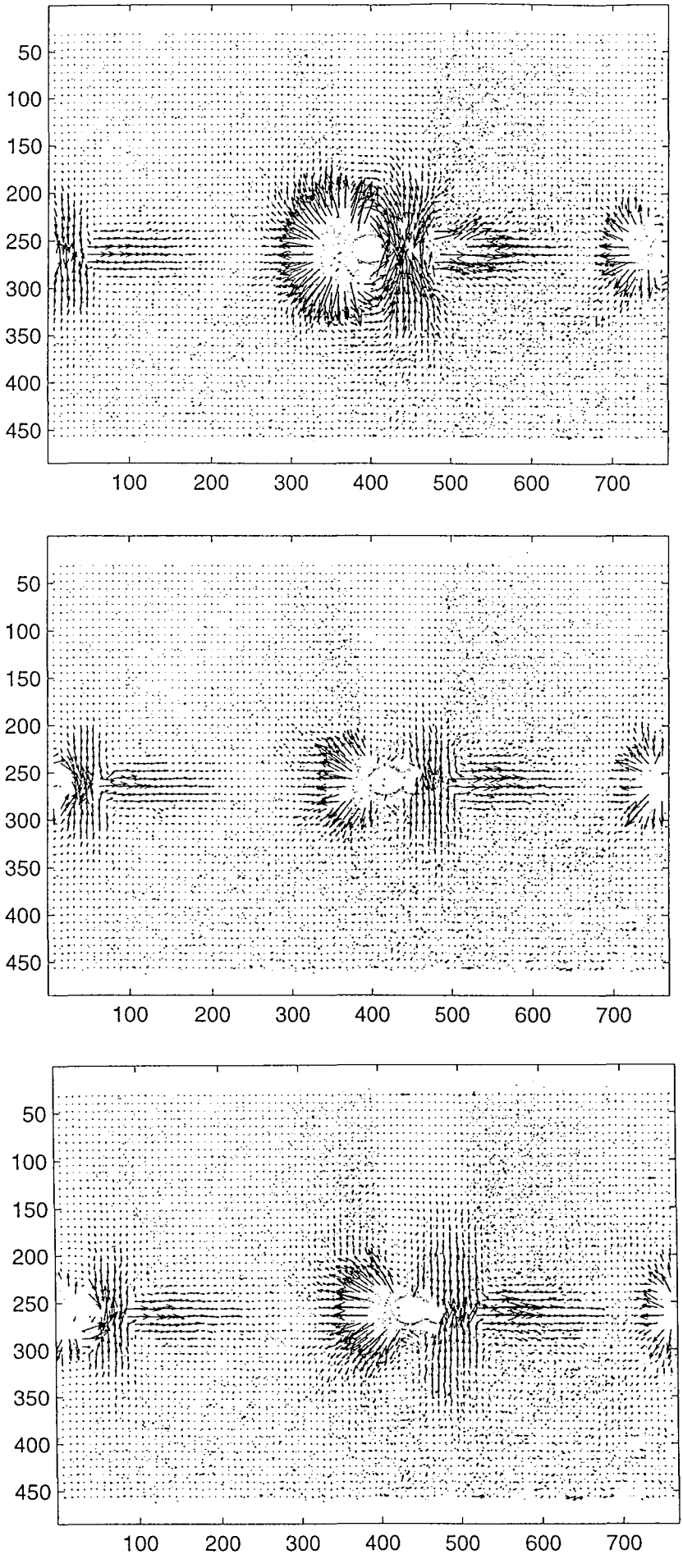


VIII.A.1.e



VIII.A.1.d

Figure VIII.A.1.d - e et f : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,75%, pour un débit de 0,1x10^{-6} m^3/s. Temps entre images 1/15s

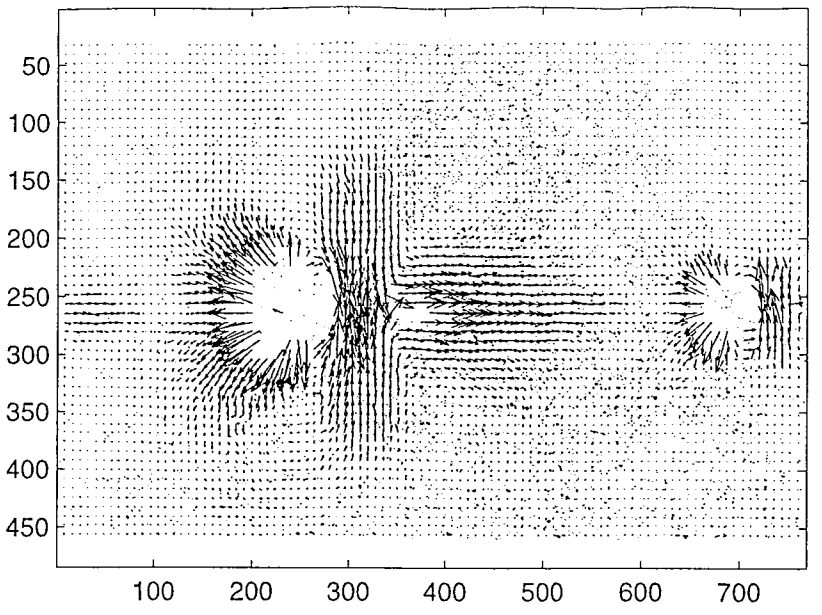


VIII.A.1.i

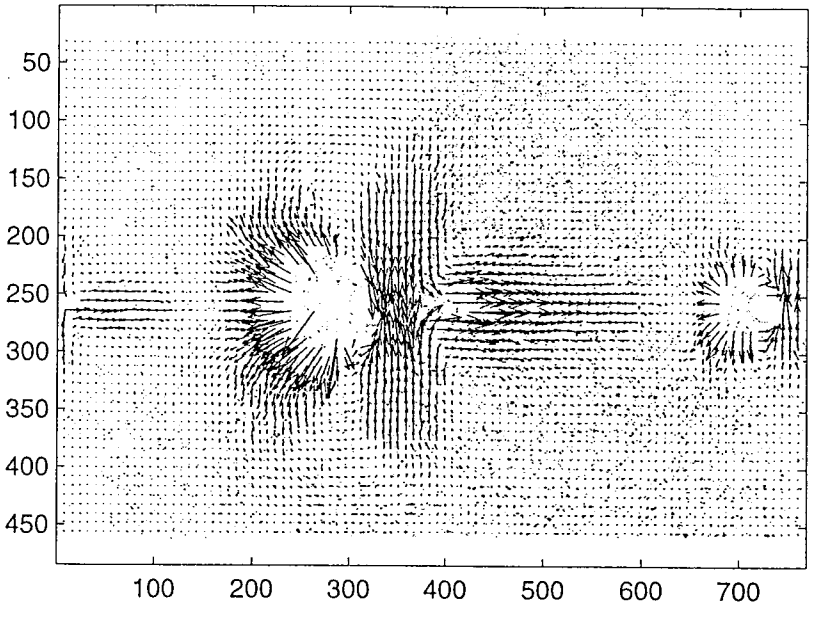
VIII.A.1.h

VIII.A.1.g

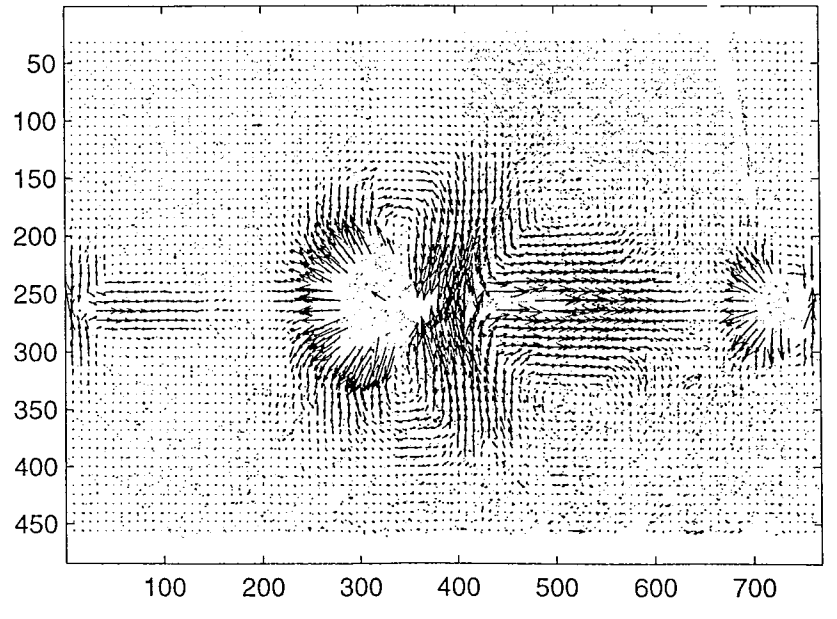
Figure VIII.A.1.g - h et i : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,75%, pour un débit de 0,1x10⁻⁶ m³/s. Temps entre images 1/15s



VIII.A.1.l

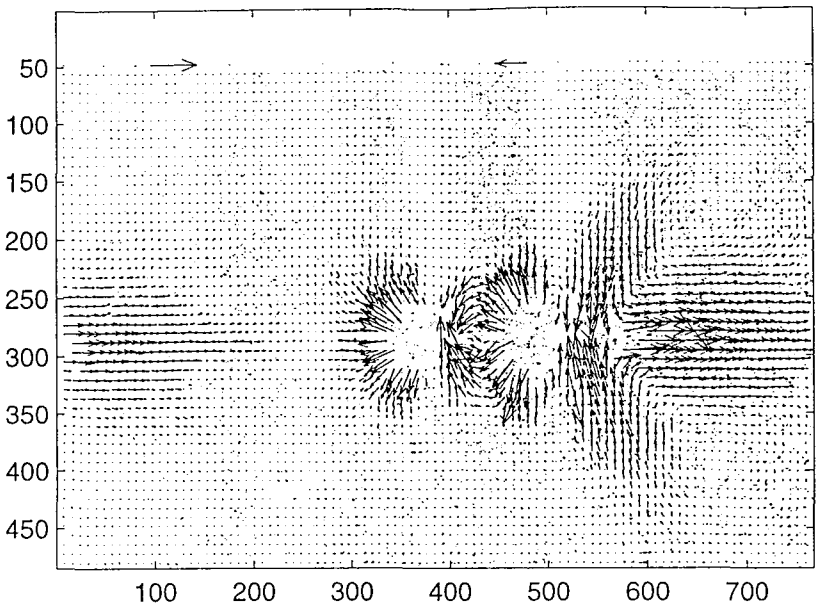


VIII.A.1.k

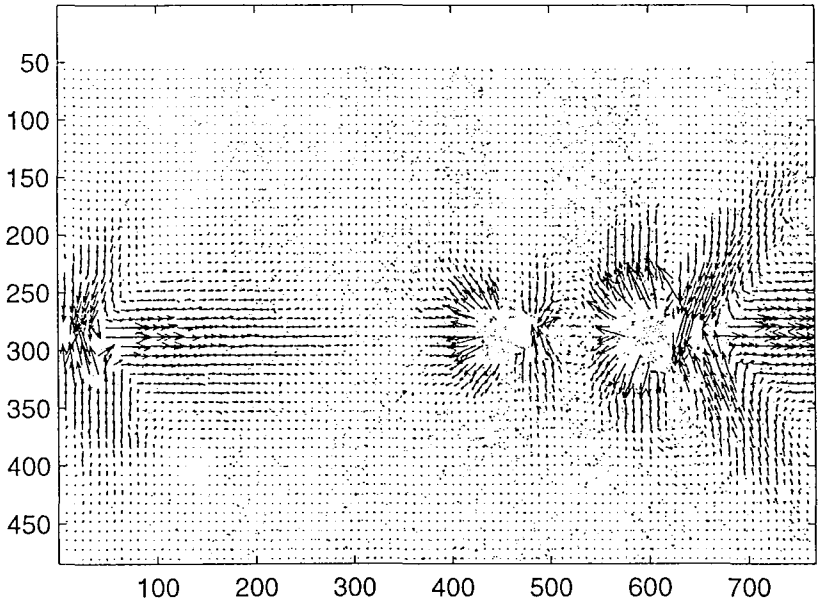


VIII.A.1.j

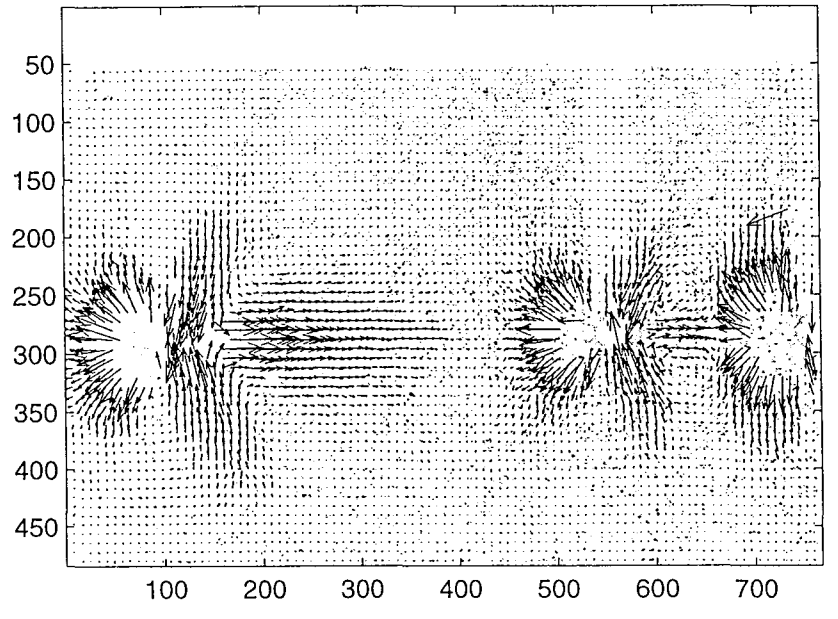
Figure VIII.A.1.j - k et l : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,75%, pour un débit de 0,1x10^{-6} m^3/s. Temps entre images 1/15s



VIII.A.2.c

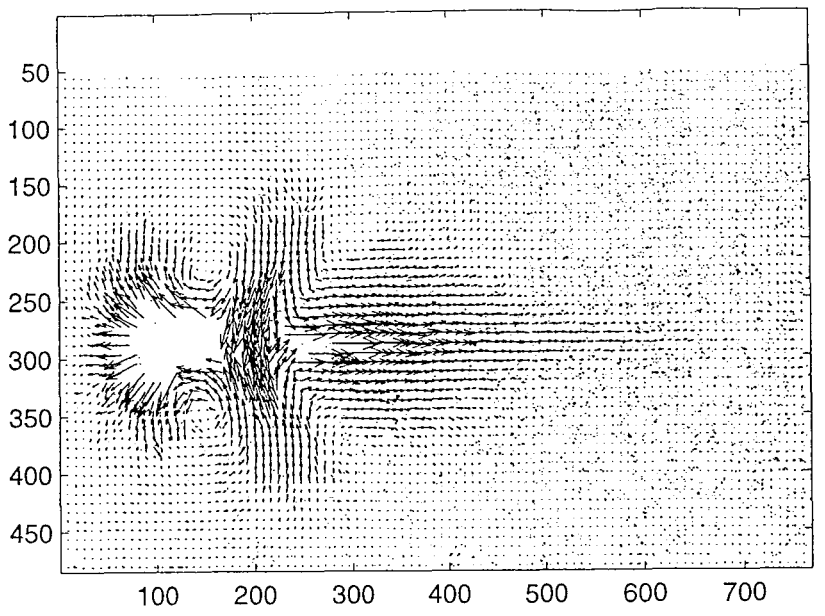


VIII.A.2.b

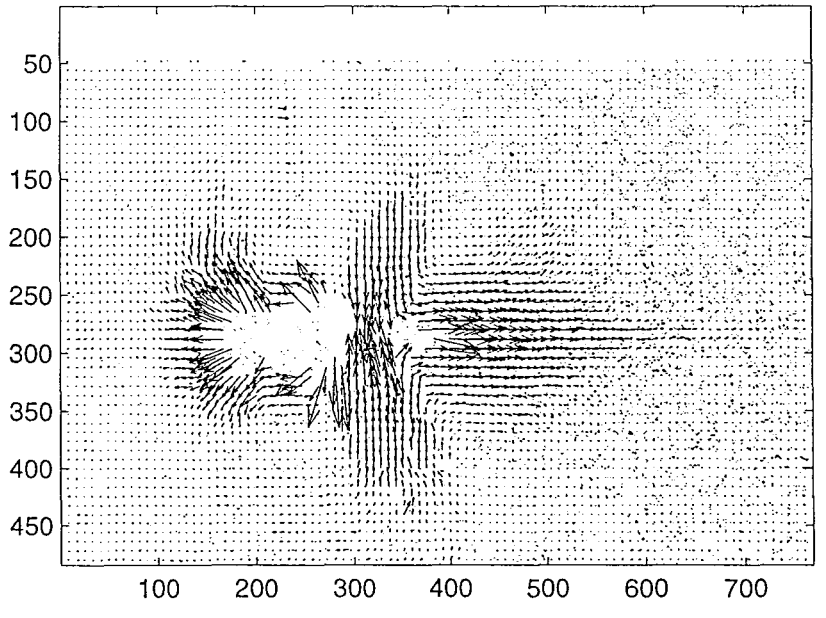


VIII.A.2.a

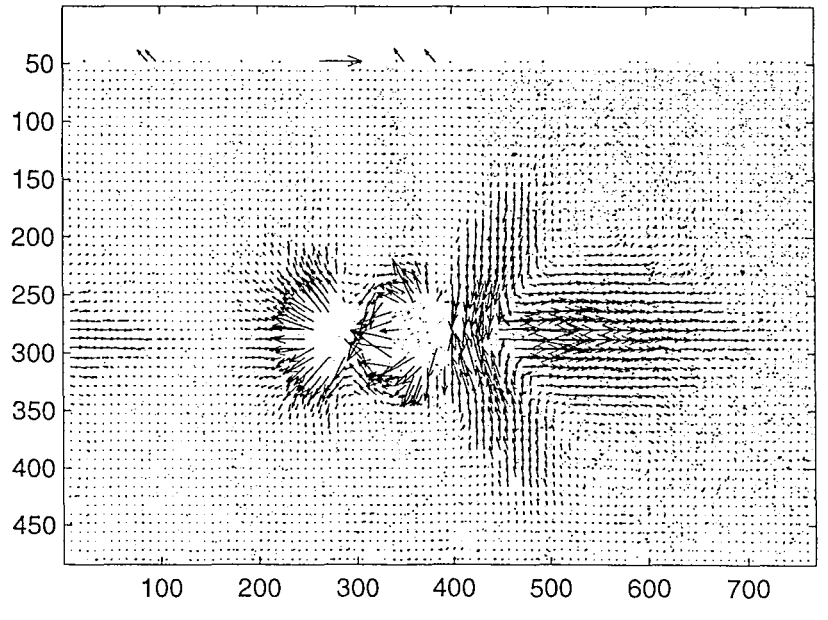
Figure VIII.A.2.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,5%. Bulles de $80x10^{-9}$ m^3 injectées à une période de 0,5s. Temps entre images 2/15s.



VIII.A.2.f



VIII.A.2.e



VIII.A.2.d

Figure VIII.A.2.d - e et f : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,5%. Bulles de $80x10^{-9}$ m^3 injectées à une période de 0,5s. Temps entre images 2/15s.

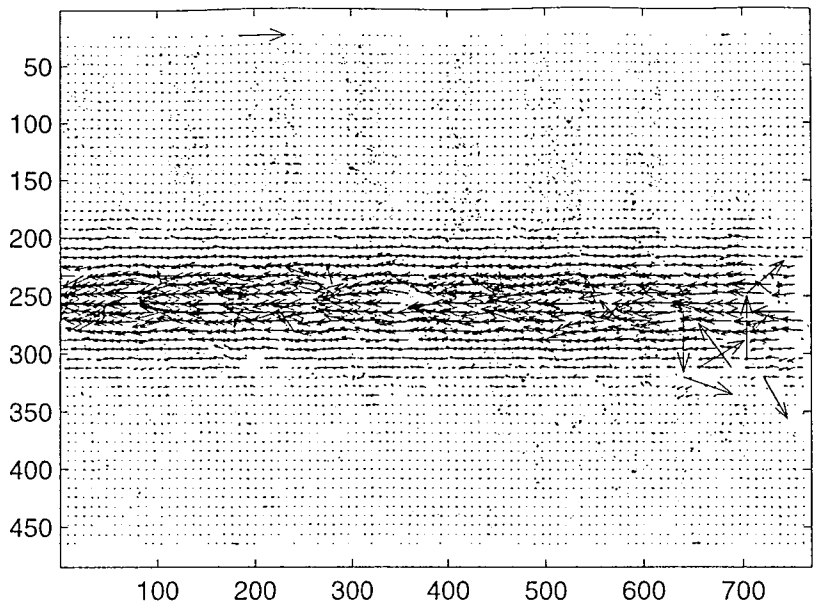
Annexe VIII.B : Superposition du contour des bulles et du champ de vitesses pour différents débits de gaz

Pour les champs de vitesses représentés dans le chapitre VIII, (figures VIII.4 à VIII.11), le champ de vitesses est superposé au contour des bulles (en fait, pour que les contours de bulles apparaissent, la couleur des images est inversée). Ceci permet de connaître le nombre de bulles ainsi que leur position relatives vis à vis du champ de vitesses qui les entoure.

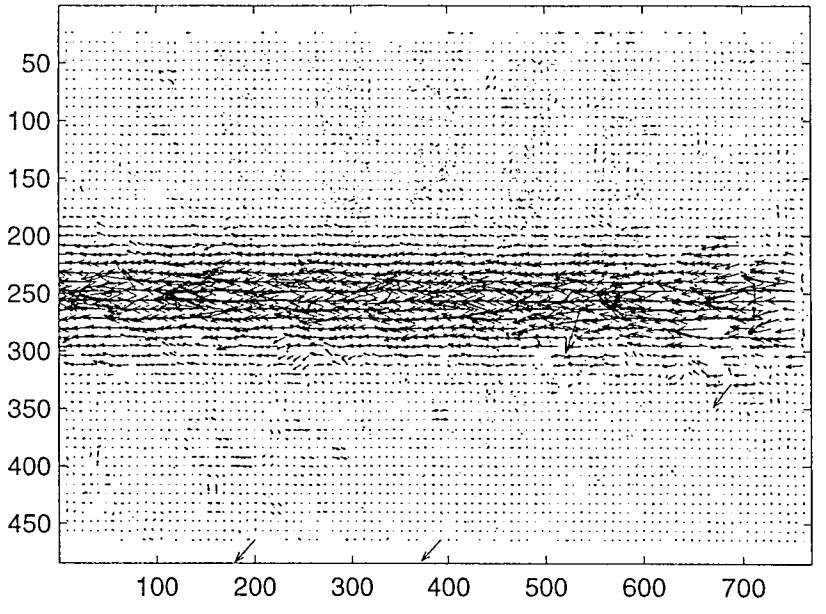
Le champ de vitesse est représenté pour trois débits de gaz : 0,017 - 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s dans les différents fluides utilisés tout au long de la thèse.

Solution	N° Figure	Débit	Volume bulle	Vitesse bulles	Reynolds
		x10^{-6} [m^3/s]	x10^{-9} [m^3]	[m/s]	
Glycérol 99,5%	VIII.B.1.a	0,017	19	0,013	0,05
Glycérol 99,5%	VIII.B.1.b	0,1	35	0,027	0,11
Glycérol 99,5%	VIII.B.1.c	0,2	57	0,033	0,16
CMC 2%	VIII.B.2.a	0,017	23	0,028	0,21
CMC 2%	VIII.B.2.b	0,1	32	0,050	0,45
CMC 2%	VIII.B.2.c	0,2	40	0,060	0,59
PAAm 0,25%	VIII.B.3.a	0,017	27	0,105	3,23
PAAm 0,25%	VIII.B.3.b	0,1	41	0,112	3,76
PAAm 0,25%	VIII.B.3.c	0,2	53	0,120	4,34
PAAm 0,5%	VIII.B.4.a	0,017	40	0,028	0,17
PAAm 0,5%	VIII.B.4.b	0,1	56	0,060	0,63
PAAm 0,5%	VIII.B.4.c	0,2	73	0,076	0,97
PAAm 0,75%	VIII.B.5.a	0,017	43	0,023	0,05
PAAm 0,75%	VIII.B.5.b	0,1	70	0,032	0,11
PAAm 0,75%	VIII.B.5.c	0,2	90	0,050	0,23

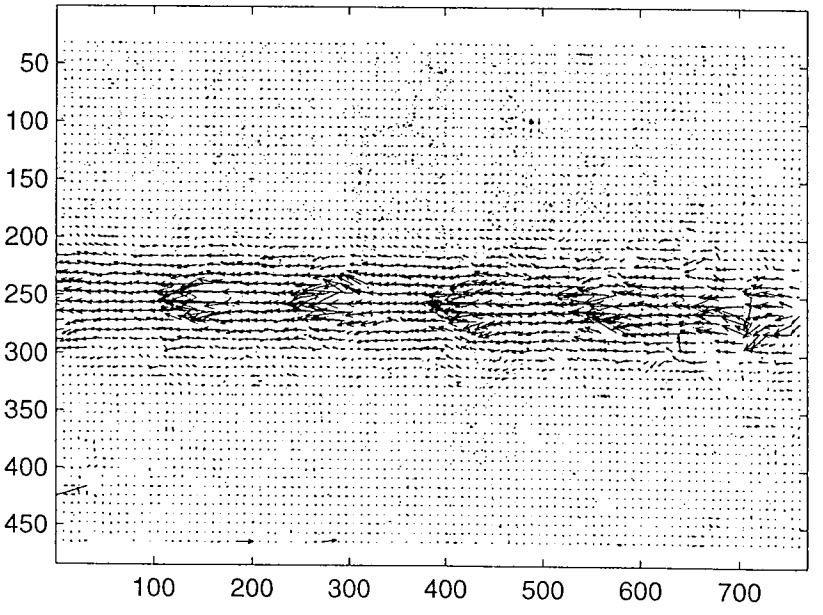
Tableau 1 : Conditions des expériences



VIII.B.1.c Re = 0,16

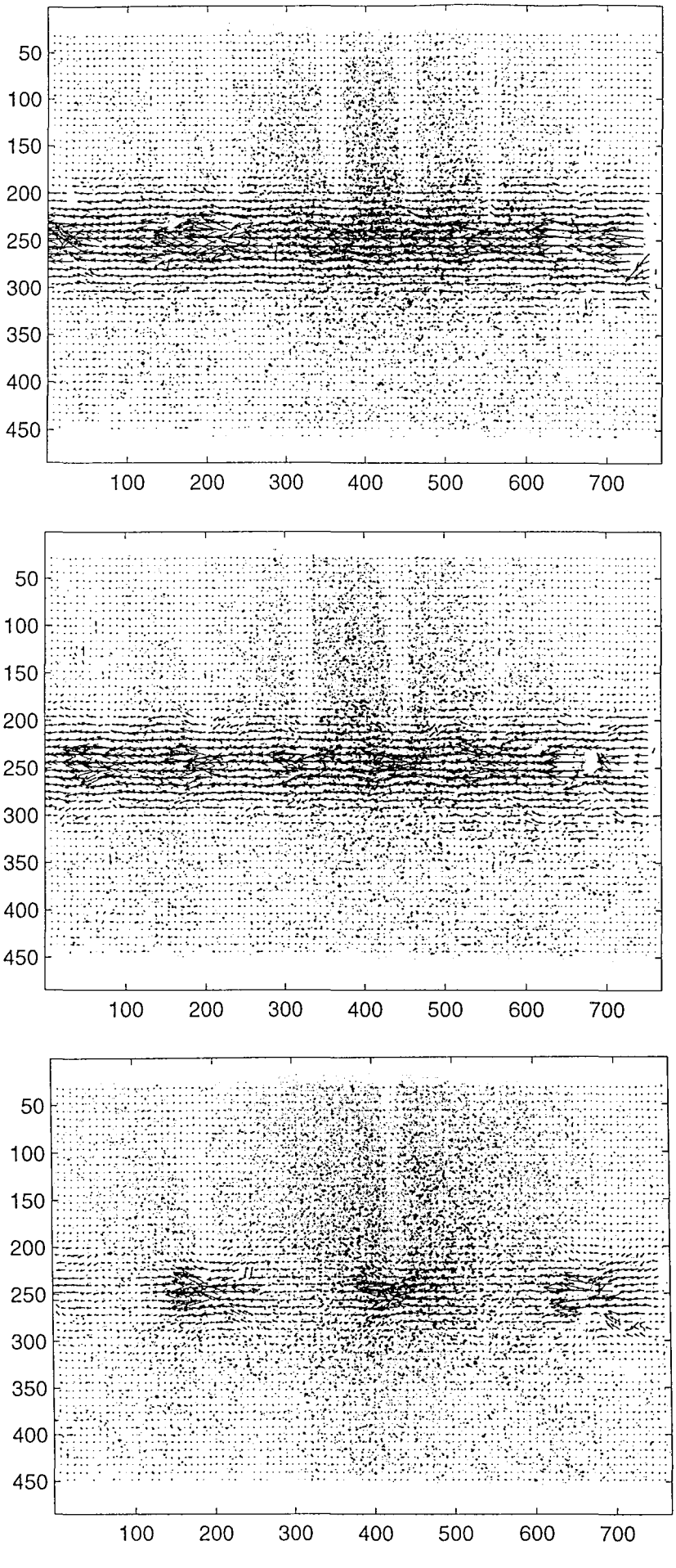


VIII.B.1.b Re = 0,11



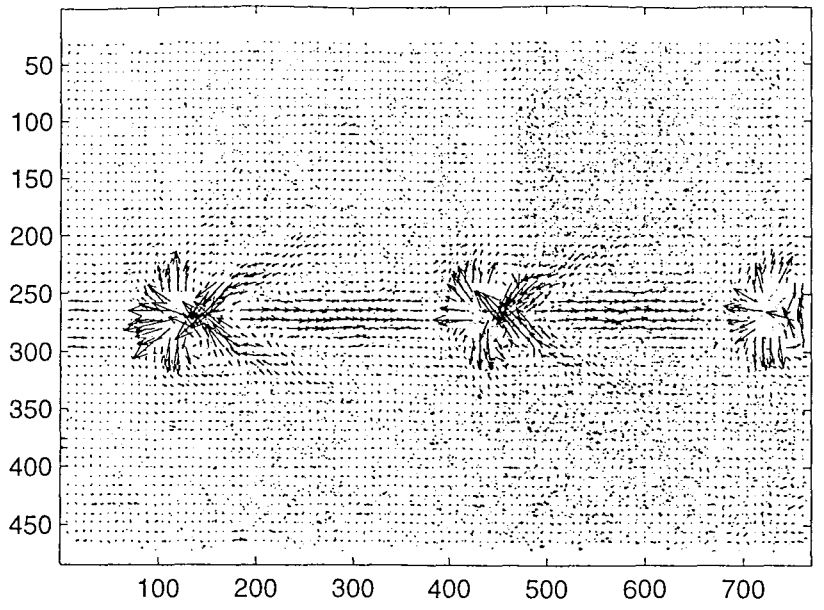
VIII.B.1.a Re = 0,05

Figure VIII.B.1.a - b et c : Train de bulles en ascension dans du glycérol, débits 0,017 - 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s respectivement

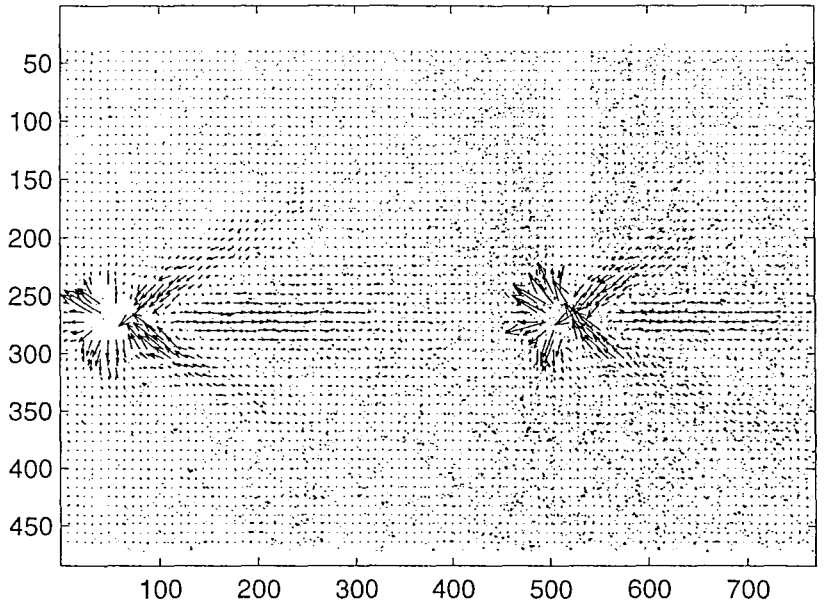


VIII.B.2.a Re = 0,21 *VIII.B.2.b Re = 0,45* *VIII.B.2.c Re = 0,59*

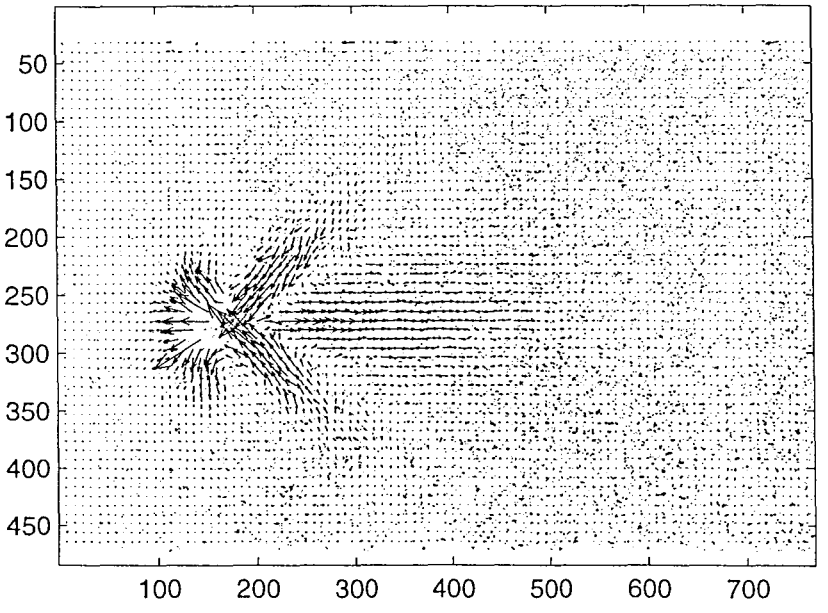
Figure VIII.B.2.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de CMC 2%, débits 0,017 - 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s respectivement



VIII.B.3.c Re = 4,34

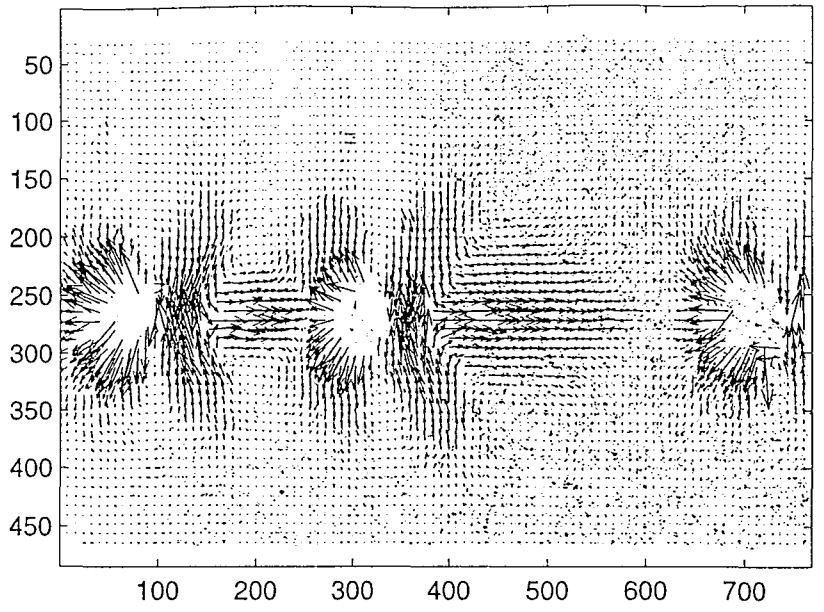


VIII.B.3.b Re = 3,76

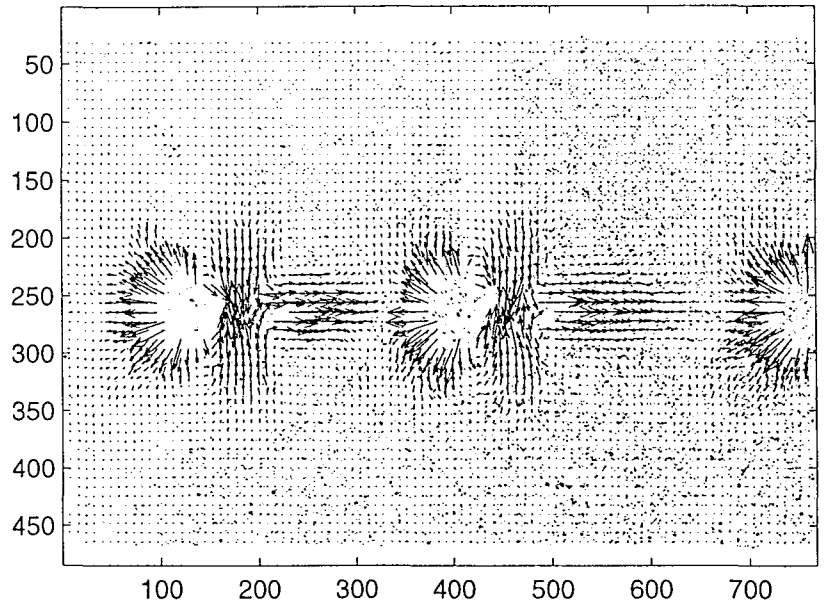


VIII.B.3.a Re = 3,23

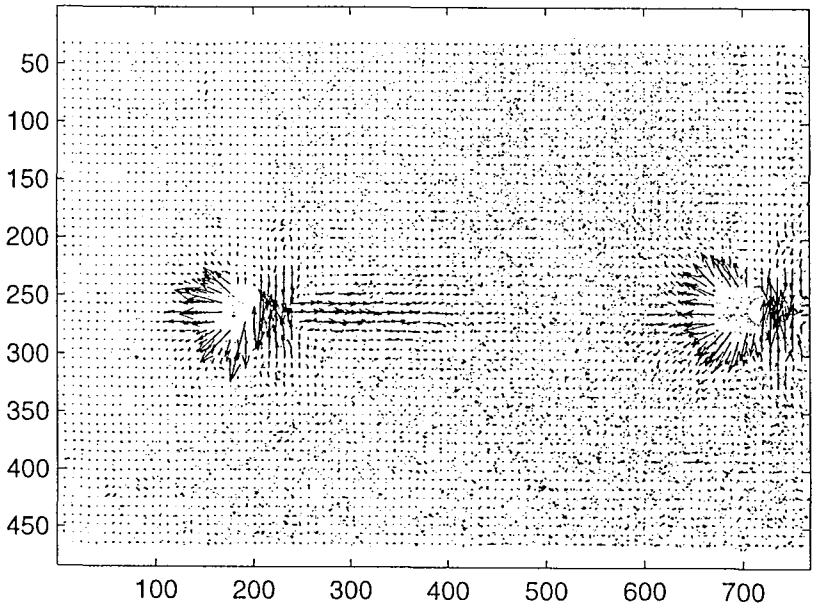
Figure VIII.B.3.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,25%, débits 0,017 - 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s respectivement



VIII.B.4.c Re = 0,97

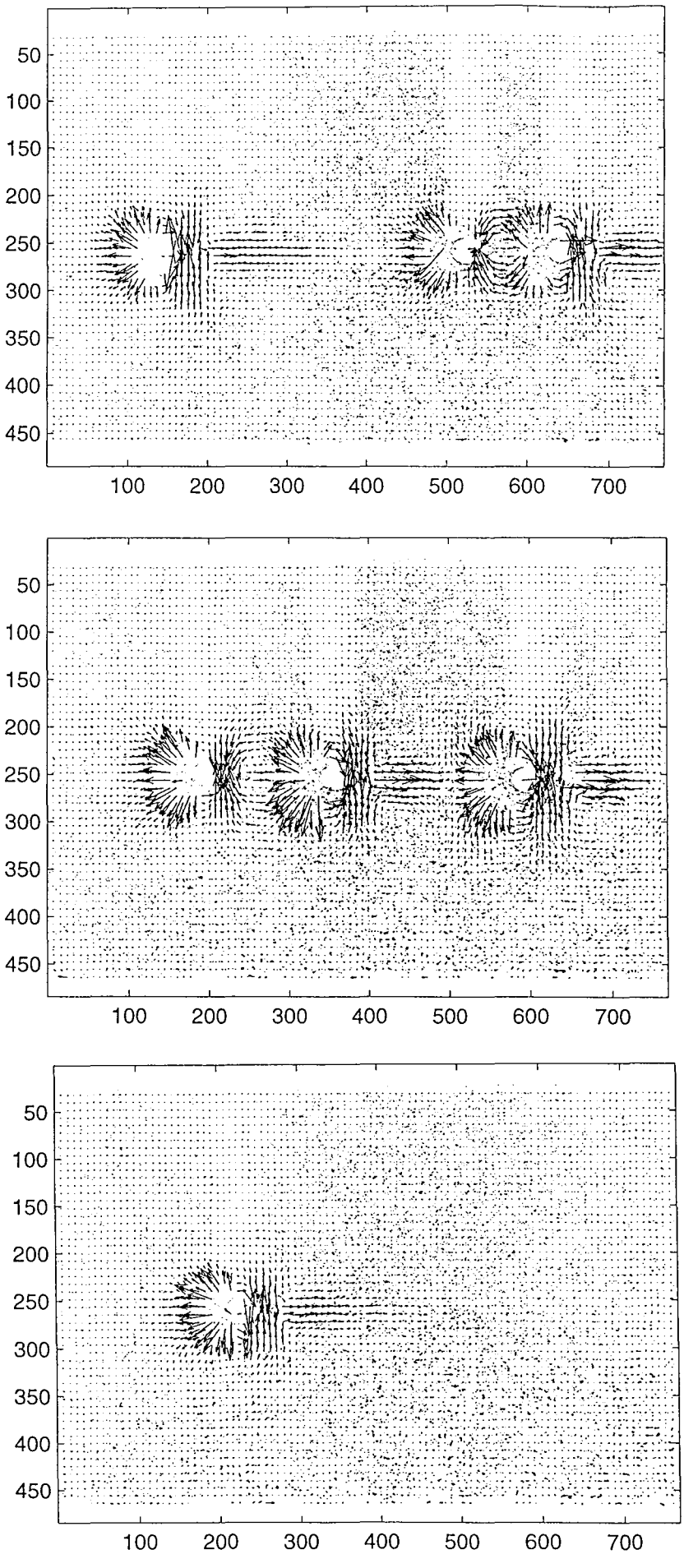


VIII.B.4.b Re = 0,63



VIII.B.4.a Re = 0,17

Figure VIII.B.4.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,5%, débits 0,017 - 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s respectivement



VIII.B.5.a Re = 0,05

VIII.B.5.b Re = 0,11

VIII.B.5.c Re = 0,23

Figure VIII.B.5.a - b et c : Train de bulles en ascension dans une solution de PAAm 0,75%, débits 0,017 - 0,1 et 0,2x10^{-6} m^3/s respectivement

Annexe VIII.C : Influence de faibles périodes d'injections sur la vitesse ascensionnelle des bulles

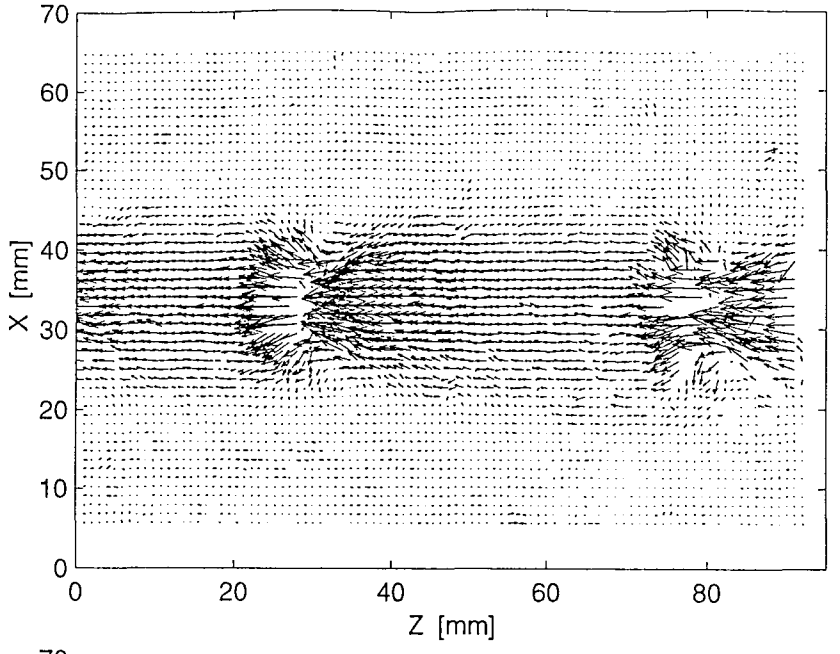
Dans le chapitre IV, nous avions observé que pour une période d'injection de 0,3s, la vitesse ascensionnelle des bulles dans les solutions de glycérol et CMC était plus élevée que pour une période d'injection de 1s. Par contre, pour des périodes d'injections au-delà de 1s, la période d'injection des bulles n'influe plus sur la vitesse ascensionnelle des bulles.

Cette influence de faibles périodes d'injection avait été attribuée à un mouvement résiduel du fluide mis en mouvement par la bulle précédents. Il convient ici d'en apporter une vérification expérimentale par la mesure du champ de vitesses pour des périodes d'injections courtes.

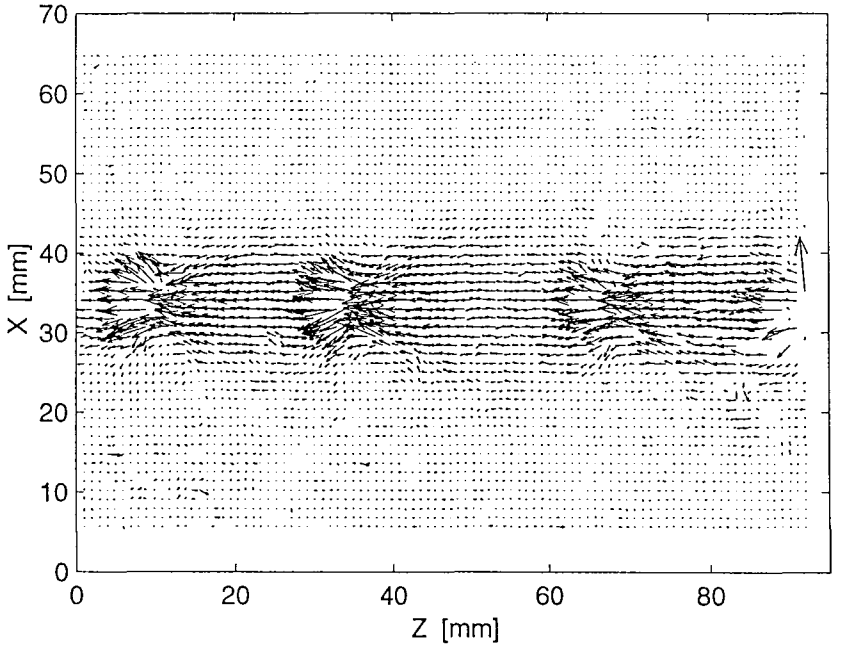
Solution	N° Figure	T injection	Volume bulle	Vitesse
		[s]	[m^3]	[m/s]
CMC 2%	VIII.C.1	1	$174x10^{-9}$	0,12
CMC 2%	VIII.C.2	0,2	$206x10^{-9}$	0,133
CMC 2%	VIII.C.3	0,2	$727x10^{-9}$	0,25
Glycérol	VIII.C.4	1	$1124x10^{-9}$	0,1
Glycérol	VIII.C.5	0,2	$421x10^{-9}$	0,04
PAAm 0,5%	VIII.C.6	0,35	$73x10^{-9}$	0,26

Tableau 1 : Conditions expérimentales

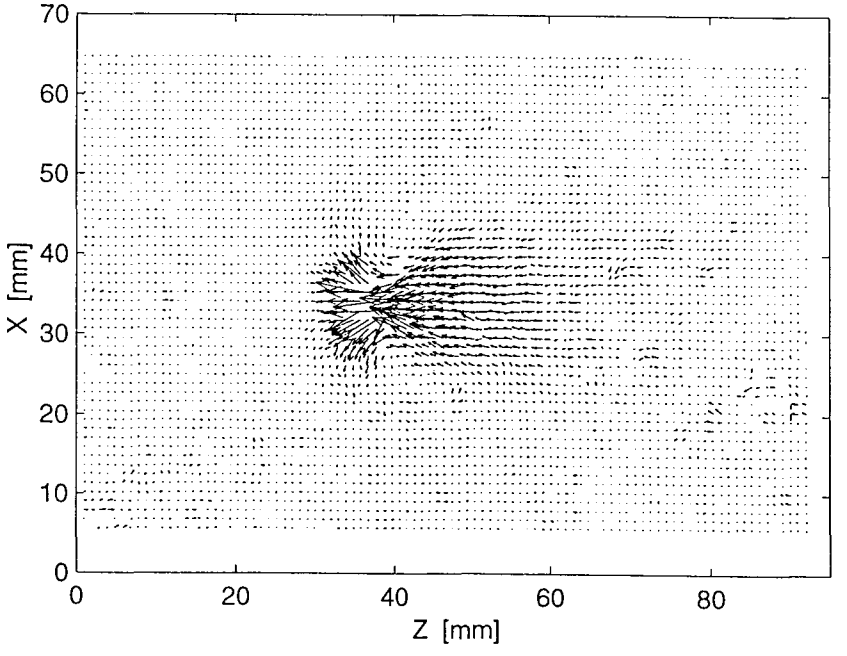
On constate que pour une période d'injection de 0,2s, le fluide entourant le train de bulle a un mouvement ascensionnel global vers le haut, aussi bien pour la solution de CMC que pour le glycérol. Par contre, pour une période d'injection de 1s, il n'y a pas de mouvement ascensionnelle global du fluide, les bulles montent comme si elles étaient isolées, ce qui justifie l'hypothèse faite.



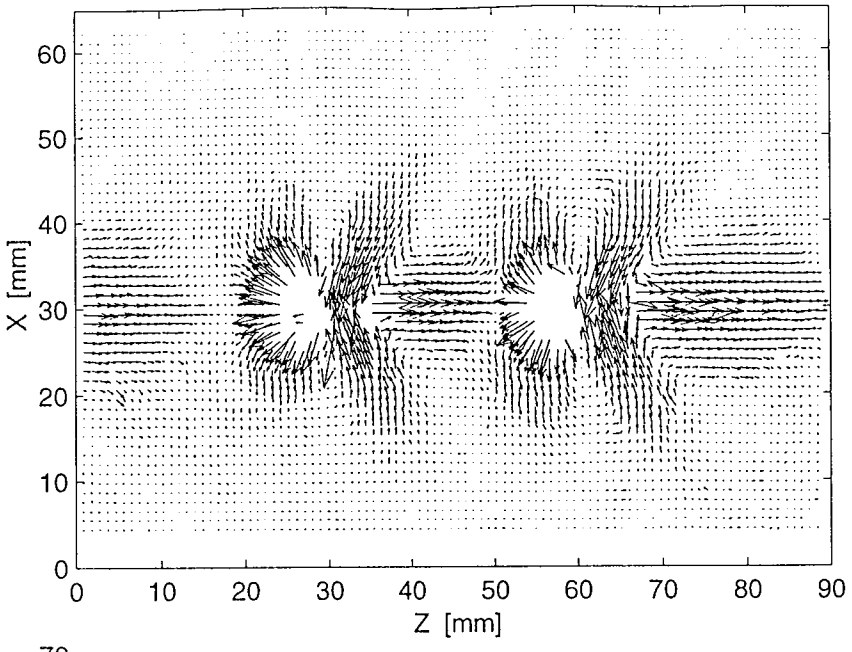
CMC : T=0,2s
V=727x10^{-9} m^3
U=0,25 m/s



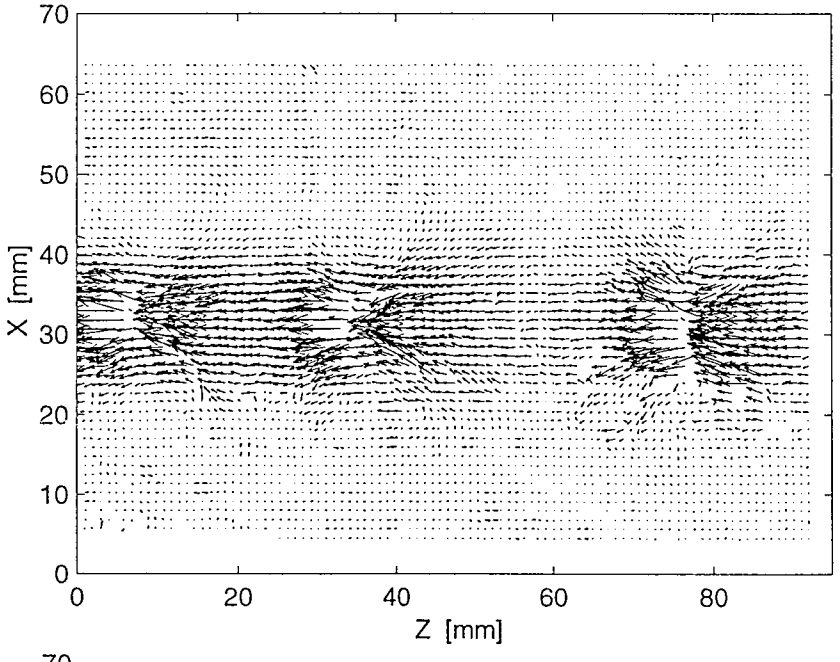
CMC : T=0,2s
V=206x10^{-9} m^3
U = 0,133 m/s



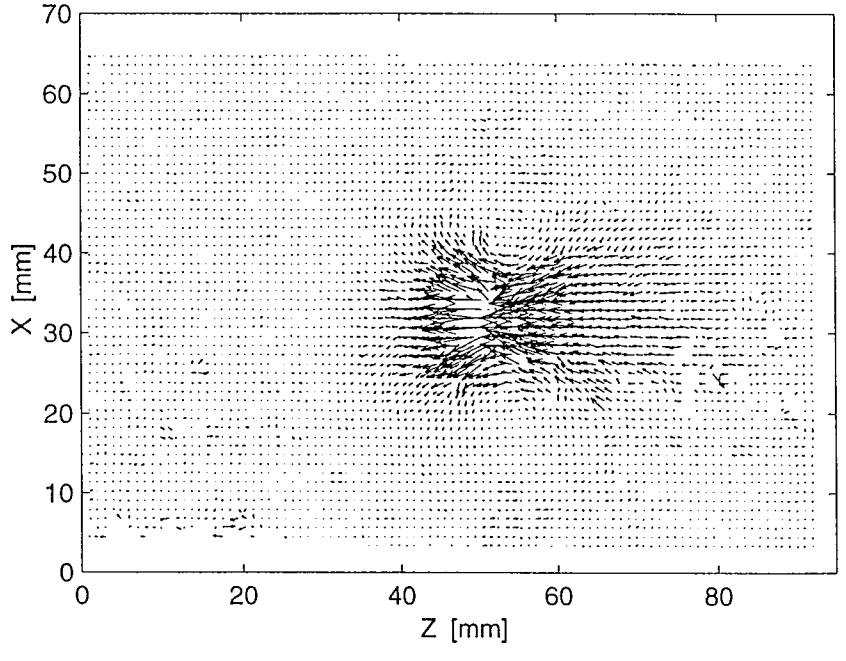
CMC : T=1s
V = 174x10^{-9} m^3
U = 0,12 m/s



PAAm 0,5% : T=0,35s
V=73x10^{-9} m^3
U=0,26 m/s



Glycérol : T=0,2s
V=421x10^{-9} m^3
U = 0,04 m/s



Glycérol : T=1s
V = 1124x10^{-9} m^3
U = 0,10 m/s

INSTITUT NATIONA
POLYTECHNIQU
DE LORRAIN

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :
Monsieur GOURDON Christophe, Professeur, INP de Toulouse
Monsieur LANCE Michel, Professeur, E.C. de Lyon, Ecully

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur FUNFSCHILLING Denis

NANCY BRABO
2, AVENUE DE L
FORET-DE-HAY
BOITE POSTALE
F - 5 4 5 0
VANDŒUVRE CED

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE, une thèse intitulée :

"Dynamique de bulles dans des fluides rhéologiquement complexes"

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : " GENIE DES PROCEDES"

Fait à Vandoeuvre le, 20 septembre 1999
Le Président de l'I.N.P.L.,
J. HARDY

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE NANCY

Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois

TEL. 33/03.83.59.59
FAX. 33/03.83.59.59

Dynamique de bulles dans des fluides rhéologiquement complexes

Résumé :

Les conditions de fonctionnement d'une colonnes à bulles sont étudiées en fluides newtoniens et non-newtoniens. L'influence de la rhéologie des fluides sur le phénomène de coalescence en ligne est étudiée au niveau d'un train de bulles. Dans les fluides viscoélastiques, le nombre de bulles dans un train de bulles diminue fortement avec la distance à l'orifice par suite de coalescences. En faisant varier la distance entre deux buses d'injection traversées par un même débit de gaz, on constate que pour des fluides hautement viscoélastiques, l'influence d'un train de bulles sur l'autre est négligeable. Ainsi, la coalescence en ligne semble être un phénomène interne au train de bulles.

Le champ de vitesses autour d'une bulle est mesuré par la méthode P.I.V. (Particle Image Velocimetry). Dans les fluides viscoélastiques, le champ de vitesses permet de connaître la taille et l'importance de la traînée négative, ainsi que de découvrir l'existence d'une zone en forme de cône creux située autour de cette traînée négative et dont les vecteurs sont dirigés vers les côtés de la bulle. Cette traînée négative est une particularité des fluides viscoélastiques. La biréfringence d'écoulement montre que des contraintes existent autour de la bulle et qu'elles se relaxent lentement dans la traîné de la bulle. Enfin, la mesure du champ de vitesses autour d'un train de bulles montre qu'en fluide newtonien, un train de bulles est à l'origine d'une importante recirculation du fluide, alors que pour un fluide viscoélastique, cette recirculation est très faible voire inexistante.

Mots clés : Bulle - colonne à bulles - fluide non-newtonien - viscoélasticité - champ de vitesses - coalescence - biréfringence - forme des bulles - vitesse ascensionnelle - train de bulles

Bubble dynamics in rheological complex fluids

Summary :

This study deals with a bubble column filled with Newtonian and non-Newtonian fluids.

The influence of the fluid rheology on in-line bubble interactions is studied at the level of a bubble train. The number of bubbles greatly decreases during ascension in viscoelastic fluids, due to coalescence. By varying the distance between two injection nozzles with the same flow rate, we observe that for highly elastic fluids, the influence of a bubble train on another one is weak, and has nearly no consequence on in-line bubble coalescence. This leads us to consider the in-line bubble coalescence as an internal phenomenon of the bubble train.

The flow field is measured around a single bubble with the P.I.V. (Particle Image Velocimetry) method.

In viscoelastic fluids, the flow field shows the size and the importance of the negative wake, and the existence of a hollow cone like region located around this negative wake, whose velocity vectors are directed towards the sides of the bubble. This negative wake is typical for viscoelastic fluids. Flow birefringence measurements show that stresses exist around the bubble, and that they relax slowly in the wake of the bubble. The measurement of the flow field around a bubble train shows the presence of an important recirculation in a Newtonian or in a shear-thinning fluid, whereas in viscoelastic fluids, the recirculation is nearly non-existent.

Key words : Bubble - bubble column - non-Newtonian fluid - viscoelasticity- flow field - coalescence - birefringence - bubble shape - rise velocity - bubble train