Université de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par *l'Institut Polytechnique National de Toulouse*
Discipline ou spécialité : *Génie des Procédés et de l'Environnement*

Présentée et soutenue par *Nicolas ABI CHEBEL*
Le *11 décembre 2009*

Titre : *Dynamique et rhéologie interfaciales à haute fréquence d'une goutte oscillante*

JURY

Dominique LANGEVIN	Rapporteur
Arie BIESHEUVEL	Rapporteur
Cees van der GELD	Président
Jiří Vejražka	Invité
Christine NOIK	Invitée
Pascal GUIRAUD	Co-encadrant
Frédéric RISSO	Directeur de Thèse
Olivier MASBERNAT	Directeur de Thèse

Ecole doctorale : *Mécanique, Energétique, Génie civil et Procédés (MEGeP)*
Unité de recherche : *Laboratoire de Génie Chimique (LGC)*
Directeur(s) de Thèse : *Olivier MASBERNAT, Frédéric RISSO*

A ma grand-mère

A mes parents

Remerciements

Je tiens tout d'abord à adresser mes remerciements à tous les membres du jury pour leurs remarques pertinentes et constructives. Je remercie Mme Dominique Langevin et M. Arie Bisheuvel pour m'avoir fait l'honneur d'être rapporteurs de cette thèse, ainsi que M. Cees van der Geld qui m'a fait l'honneur de présider ce jury.

Je suis très reconnaissant à Christine Noïk, promotrice de cette thèse à l'IFP, pour la confiance qu'elle m'a accordée dès nos premiers contacts. Je tiens à exprimer mes très sincères remerciements à Christine Dalmazzone, pour toutes les discussions que nous avons eues lors de mes séjours à l'IFP, mais aussi pour ses encouragements et son soutien.

Dans le cadre de ce travail, j'ai eu la chance d'effectuer un séjour de deux semaines à l'Institute of Chemical Processes Fundamentals à Prague. Je remercie vivement Jiří Vejražka pour son excellent accueil et sa contribution précieuse à ce travail.

Ma gratitude la plus sincère va à mes directeurs de thèse Olivier Masbernat et Frédéric Risso. Merci pour tout ce que vous m'avez appris pendant ces trois années, pour l'enthousiasme que vous avez su me communiquer lors de nos réunions de travail. Malgré l'écart de connaissances et d'expérience qui nous sépare, vous m'avez permis de mener ces travaux avec vous comme une équipe de chercheurs et je vous en suis très reconnaissant. Je remercie également Pascal Guiraud, qui a participé à l'encadrement de cette thèse. Pascal, ton aide fut essentielle au jeune débutant que j'étais, par ta volonté constante de synthétiser les discussions et de mettre les idées au clair.

Je voudrais également remercier toutes les personnes qui sont venues à mon aide, à un moment ou à un autre de ces années de thèse, que ce soit pour des démarches administratives ou des problèmes techniques ou scientifiques. Merci à Claudine Lorenzon, Jean-Luc Labeyrie, Jocelyne Barale, Dany Bouscary, Jackie Labadie, Alain Muller, Alain Philippe, Marie-Line De Solan, au LGC. A l'IMFT je remercie particulièrement Sébastien Cazin et Florent Ravelet et, à l'IFP, Aurélie Mouret-Henriques, Laurence Podesta-Foley, Corinne Veyrat d'Urbet et Jacqueline Vigier.

Bien que mes séjours à Rueil-Malmaison furent courts, je me souviendrai toujours des moments passés avec mes collègues doctorants et stagiaires de l'IFP: Céline, Arnaud,

Gwendoline, ainsi que Carlos et Gaby que je remercie pour les échanges que nous avons eus autour de la rhéologie interfaciale.

J'ai eu la chance de passer un peu plus de trois ans au LGC, au sein d'une grande communauté de doctorants, stagiaires et jeunes chercheurs. Je garderai un très bon souvenir des moments passés avec vous. Je pense particulièrement à mes collègues de bureau (annexes comprises) à Basso et à Labège, Christophe, Romain, Lynda, Soualo, Asif, Nicolas, Baptiste, Kader, Riccardo, Jean-Sébastien et Constant ainsi qu'à mes collègues de l'Alambic, Alain, Julien et Julie et nos prédécesseurs Cathy et Caroline.

Mon séjour au laboratoire m'a permis de nouer des amitiés avec des personnes adorables, à qui j'aimerai bien exprimer ma plus sincère affection : Dominique, Nancy, Maha, Micheline et Youssef, mes compatriotes, Alicia et son mari Jesus, Nelson l'Asturien, Mallorie, Félicie et Ilyes, Marianne, Charlotte, Laurie, Zoé et Yoan, Edgar, Amélie et Nicolas…

J'ai eu l'occasion, durant ma thèse, d'encadrer les travaux de deux stagiaires. Waritha et Clément, merci pour l'implication dont vous avez fait preuve au cours de vos stages mais surtout pour le plaisir que vous m'avez donné à travailler avec vous.

Cela fait maintenant plus de cinq ans que je vis en France. Je ne me suis presque jamais senti étranger dans ce pays qui, à la base, n'est pas le mien. Merci à tout les amis sur qui j'ai pu compter au cours de mes séjours à Paris, à Toulouse et partout en France : Rita, Maroun, Charbel, Helga, Noemì et Richard, Elena, Eva, Wissam et May, Marie-Claude et Raphaël et enfin, ma seconde famille, Jean et Claudine.

Le mot de la fin ira à ma famille. Je remercie de tout cœur tous ceux qui m'ont soutenu, malgré la distance qui nous sépare, je pense particulièrement à mes deux petits frères Patrick et Josselin. Je remercie enfin mes parents pour tout ce qu'ils ont fait et font pour moi. Merci d'avoir accepté de vivre le sacrifice de l'éloignement, et d'avoir su, tout au long des étapes de ma vie, me donner des conseils éclairés sans essayer de m'imposer des choix. Les mots ne suffiront pas à exprimer ma reconnaissance envers vous…

Résumé

Ce travail présente une étude de la dynamique interfaciale de gouttes oscillantes dans une plage étendue de fréquences, en particulier dans le domaine des hautes fréquences. Nous avons développé une méthode de caractérisation de la dynamique des oscillations de gouttes, en présence d'un forçage externe imposé, sous la forme de variations de volume périodiques de faible amplitude sur une goutte attachée à l'extrémité d'un capillaire. Cette méthode permet d'identifier les modes d'oscillation des gouttes et d'en mesurer les fréquences et les taux d'amortissement. Cette méthode a été appliquée à différents systèmes liquide-liquide, en l'absence ou en présence de surfactants. Dans ce dernier cas, elle permet d'évaluer l'effet du comportement viscoélastique des interfaces sur la dynamique des oscillations. Ainsi 3 types d'interfaces ont été identifiés. Pour les interfaces de premier type (heptane/eau sans ajout de surfactant), chaque mode propre est modélisé par un oscillateur linéaire peu amorti. Les fréquences propres et les taux d'amortissement sont bien prédits par la théorie linéaire. Les interfaces de types 2 et 3 sont obtenues en ajoutant du pétrole brut à la phase dispersée. Les surfactants naturellement présents dans le pétrole (asphaltènes, résines) s'adsorbent à l'interface et lui confèrent des propriétés viscoélastiques. Pour les interfaces jeunes (type 2, moins de 20 minutes de vieillissement), les fréquences propres mesurées restent bien prédites par la théorie, qui considère des interfaces non contaminées, tandis que les taux d'amortissement sont de loin supérieurs aux valeurs théoriques. D'autre part, les interfaces vieillies (type 3) présentent des modes propres différents avec des fréquences de résonance supérieures à celles des interfaces jeunes. Dans ce cas, la dynamique de l'interface à haute fréquence est régie par l'élasticité du réseau formé par les espèces amphiphiles du pétrole brut.

Les oscillations libres d'une goutte en ascension dans une phase externe stagnante, pour un système liquide-liquide sans ajout de surfactants, ont été étudiées. Les valeurs mesurées de la fréquence d'oscillation des 4 premiers modes sont en adéquation avec la théorie linéaire. Cependant les valeurs mesurées du taux d'amortissement sont très élevées par rapport aux valeurs théoriques, pour une interface non contaminée. En effet, des espèces résiduelles adsorbées à l'interface provoquent l'apparition d'un gradient de tension interfaciale par effet Marangoni et par suite une production de vorticité plus intense dans les couches-limites, ce qui conduit à l'augmentation de l'amortissement des oscillations.

Abstract

We present an experimental study of oscillating drop interfacial dynamics at a wide frequency range, especially at high frequency. A characterization method of drops oscillation dynamics has been developed. The oscillations are generated by imposing low amplitude periodic variation of volume to a drop which is attached to a capillary tip. The present method is based on the identification of the drop eigenmodes and the determination of their frequencies and damping rates. It has been applied to characterize several liquid-liquid systems. Three types of interface have been identified. For interfaces of type 1 (heptane/water without added surfactant), each eigenmode is modelled by a weakly damped linear oscillator. Eigenfrequencies and damping rates are well predicted by the linear theory. Interfaces of Types 2 and 3 are obtained by adding crude oil to the disperse phase. Oil native surfactants (asphaltenes, resins) adsorb on the drop interface and provide the latter with viscoelastic behaviour. For young interfaces (type 2 with aging time below 20 minutes), eigenfrequencies remain well predicted by the theory, which deals with non contaminated interfaces, whereas the measured damping rates are significantly higher than the theoretical values. On the other hand, aged interfaces (type 3) exhibit different eigenmodes, of which eigenfrequencies are much higher than the resonance frequencies measured for the young interfaces. At high frequency, the dynamics of aged interfaces are governed by the elasticity of the network constituted by the crude oil amphiphilic species, while the dynamics of young interfaces are governed by interfacial tension.

Freely decaying oscillations of a rising drop in a liquid at rest without added surfactant were also considered. Measured frequencies for the first four eigenmodes are in good agreement with the linear theory. However, measured damping rates are much higher than the theoretical rates for non contaminated interfaces. In fact, residual adsorbed species at the heptane/water interface induce Marangoni effects and thus gradients of interfacial tension. Therefore, vorticity production within the boundary layers is enhanced, which explains the observed increase of the oscillation damping rates.

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE 13

1 RHEOLOGIE INTERFACIALE A BASSE FREQUENCE. CARACTERISATION D'INTERFACES PETROLE DILUE / EAU. 19

1 INTRODUCTION 19
2 RHEOLOGIE INTERFACIALE PAR DILATATION – ELEMENTS DE THEORIE 19
2.1 EQUATION D'ETAT - MODELE DE KELVIN-VOIGT 20
2.2 MESURES RHEOLOGIQUES – METHODE DE LA GOUTTE PENDANTE OSCILLANTE 21
3 SYSTÈME DE PHASES 23
4 DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL 24
5 COMPARAISON ENTRE DEUX TYPES DE PETROLE BRUT 25
6 EFFET DU VIEILLISSEMENT DE L'INTERFACE 26
7 EVOLUTION DES PARAMETRES RHEOLOGIQUES EN FONCTION DE LA FREQUENCE D'OSCILLATION 28
8 CONCLUSION 31

2 DYNAMIQUE DES OSCILLATIONS D'UNE GOUTTE PENDANTE A HAUTE FREQUENCE 33

1 INTRODUCTION 33
2 SYSTEME DE PHASES 40
3 DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL. MODE OPÉRATOIRE. 41
3.1 GÉNÉRATEUR D'OSCILLATIONS VOLUMIQUES 42
3.2 DISPOSITIF DE CAPTURE D'IMAGES HAUTE VITESSE - OMBROSCOPIE 43
3.3 MODE OPÉRATOIRE 44
4 OBSERVATIONS 45
4.1 GOUTTE AU REPOS 45
4.2 GOUTTE OSCILLANTE 47
5 TRAITEMENT DES IMAGES ET DES SIGNAUX 49
5.1 TRAITEMENT DES IMAGES 49
5.2 ANALYSE DES SIGNAUX TEMPORELS 52
6 ETUDE DE LA LINEARITE, INCERTITUDE DES MESURES 57
7 REPONSES EN FREQUENCE. 63
7.1 DES HARMONIQUES SPHERIQUES AUX MODES PROPRES 63
7.2 MODELE DE L'OSCILLATEUR LINEAIRE FORCE. 74
8 DISCUSSION 76
8.1 NATURE DU FORÇAGE 76
8.2 PARAMETRES DE LA GOUTTE – OSCILLATEUR. ORIGINE DE L'AMORTISSEMENT. 76
8.3 EFFET DE L'ATTACHEMENT 80
9 CONCLUSION 83

3 EFFET DES SURFACTANTS SUR LA DYNAMIQUE DES OSCILLATIONS D'UNE GOUTTE PENDANTE A HAUTE FREQUENCE 85

1 INTRODUCTION 85
2 SYSTEME DE PHASES ET MODES OPERATOIRES 88
2.1 SYSTEME DE PHASES 88

2.2 MODE OPERATOIRE ET TYPES D'INTERFACE 89
3 ETUDE DE LA LINEARITE, INCERTITUDE DES MESURES 91
3.1 INTERFACE DE TYPE 1 93
3.2 INTERFACE DE TYPE 2 96
4 REPONSE EN FREQUENCE : RESULTATS ET DISCUSSION 99
4.1 INTERFACES DE TYPE 1 99
4.2 INTERFACES DE TYPE 2 105
- COMPORTEMENT DANS LE DOMAINE DES BASSES ET MOYENNES FREQUENCES (INTERFACE 2B) 112

5 CONCLUSION 113

4 OSCILLATIONS LIBRES DE GOUTTES EN ASCENSION DANS UNE PHASE CONTINUE STAGNANTE 117

1 INTRODUCTION 117
2 SYSTÈME DE PHASES 118
3 DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL ET MODE OPÉRATOIRE 118
4 SIGNAUX TEMPORELS 120
5 ETUDE DES PARAMETRES DE LA GOUTTE-OSCILLATEUR POUR DIFFERENTES VALEURS DU DIAMETRE. 128
6 CONCLUSION 141

CONCLUSION GENERALE 143

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES 147

ANNEXE : CALCUL DE LA DISSIPATION A L'INTERFACE. EVALUATION DU TAUX D'AMORTISSEMENT INTERFACIAL. 151

Introduction Générale

Une émulsion (du latin *emulgere*, traire) désigne un système comprenant au moins deux liquides non miscibles, dont l'un est dispersé dans l'autre (Brochette, 1999). Produites et utilisées depuis l'antiquité, les émulsions ont suscité un intérêt croissant depuis le début du XXe siècle. Les émulsions sont présentes dans de nombreux domaines et applications. Citons par exemple l'industrie alimentaire (beurre et autres produits laitiers), cosmétique (laits et crèmes), pharmaceutique (encapsulation de produits actifs), les peintures (encapsulation de pigments). Les émulsions ont été également utilisées dans le transport et l'application du bitume routier.

Lors de la production de pétrole, le fluide extrait est souvent constitué d'un mélange complexe de pétrole brut, d'eau, de gaz et de sédiments. Pour des puits en fin de vie, le volume d'eau coproduite peut dépasser 70 % du volume extrait. La formation d'émulsions se produit lorsque le mélange eau-pétrole traverse des zones dans lesquelles le cisaillement ou la turbulence sont intenses et peut avoir lieu à différentes étapes de la production, lors du forage, de la récupération et du transport. Il s'agit souvent d'émulsions d'eau dans le pétrole, stabilisées par des espèces amphiphiles naturellement présentes dans le pétrole brut : asphaltènes, résines, acides naphténiques, particules de sédiments (Sjöblom et al, 2003, Yan et al 1999).

La formation d'émulsions eau/pétrole constitue un des problèmes majeurs qui surviennent lors de l'exploitation des gisements pétroliers, du point de vue des procédés mis en œuvre ainsi que pour ce qui concerne la qualité du produit. Les sels dissous dans les gouttes d'eau peuvent entraîner la corrosion des installations, en particulier des oléoducs, et peuvent constituer des poisons pour les catalyseurs lors du raffinage.

L'amélioration des procédés de séparation fait partie des préoccupations principales des opérateurs pétroliers, d'autant plus que les pétroles extraits actuellement sont de plus en plus visqueux, et que les émulsions pétrolières formées sont de plus en plus stables et riches en

eau. En outre, le développement de la production en haute mer renforce la nécessité de l'optimisation des séparateurs que l'on voudrait pouvoir installer sur une plateforme.

L'étude et la modélisation des mécanismes de formation des émulsions est une étape essentielle dans l'amélioration des procédés de séparation. Elles doivent en effet permettre de prédire des grandeurs, comme la distribution de taille des gouttes de l'émulsion à séparer, qui sont indispensables à la conception des séparateurs.

La formation des émulsions se fait souvent à partir d'une dispersion de gouttes de tailles plus grandes, qui se fragmentent sous certaines conditions liées à l'écoulement, comme un fort cisaillement ou une turbulence intense.

Les premiers travaux concernant la rupture de gouttes sont dus à Taylor (1934) qui étudie la déformation de gouttes en écoulement cisaillé simple ou élongationnel à faible nombre de Reynolds. Taylor établit une relation entre la déformation de la goutte et le cisaillement de la phase continue en résolvant les équations de Navier et Stokes à l'intérieur et à l'extérieur de la goutte et en introduisant une condition de raccordement à l'interface qui fait intervenir les forces capillaires.

Hinze (1955) généralise cette approche à d'autres types d'écoulements, notamment turbulents, en effectuant également un bilan de forces à la surface de la goutte. Cette dernière se déforme sous l'effet d'une contrainte τ, générée par l'écoulement. La contrainte τ, de type visqueux pour des écoulements à faible nombre de Reynolds, s'écrit $\mu_c \dot{\gamma}$ (μ_c étant la viscosité dynamique de la phase continue et $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement). Pour des nombres de Reynolds plus élevés, la contrainte subie par la goutte est inertielle et s'exprime sous la forme $\rho_c U^2$, U étant la vitesse relative entre la goutte et la phase continue. D'autre part, la contrainte capillaire $\frac{\sigma}{d}$ (σ étant la tension interfacilae et d le diamètre de la goutte) s'oppose à la déformation. Le rapport entre ces deux contraintes donne un nombre adimensionnel, appelé nombre capillaire dans le cas d'une contrainte visqueuse et nombre de Weber dans le cas d'une contrainte inertielle.

L'analyse devient plus complexe dans le cas d'un écoulement turbulent. La turbulence étant un processus stochastique, seule une description statistique peut en être faite. En outre, le forçage que subit une inclusion en écoulement turbulent résulte très souvent d'une combinaison des effets de la turbulence et du mouvement moyen des fluides.

La théorie développée par Kolmogorov (1949) et Hinze (1955) s'applique dans le cas où la turbulence peut être considérée comme le seul phénomène responsable de la rupture. Elle s'appuie sur une approche par bilan de forces statique : la rupture a lieu quand le nombre de Weber dépasse une valeur critique. Pour un diamètre de goutte supérieur à l'échelle de Kolmogorov λ_k, la contrainte visqueuse n'est pas significative. Hinze (1955) considère alors que la contrainte agissant sur la goutte est due à des forces de pression dynamique. Elle est par suite proportionnelle à la fluctuation moyenne de vitesse sur des distances de l'ordre du diamètre de la goutte, qui s'ecrit: $\overline{\delta u^2(d)} = \overline{\sum_i \left[u_i(x+d/2) - u_i(x-d/2)\right]^2}$, où x est la position de la goutte, d son diamètre et u_i la fluctuation de vitesse de la phase continue dans la direction i. Le nombre de Weber turbulent s'écrit alors $We = \frac{\rho_c \overline{\delta u^2(d)} \cdot d}{\sigma}$, où ρ_c est la masse volumique de la phase continue et σ la tension interfaciale. Cependant, la théorie de Hinze-Kolmogorov ne tient pas compte du temps de séjour de la goutte dans le champ de turbulence, le critère de rupture se limite à une condition sur le nombre de Weber.

Risso et Fabre (1998) mettent en évidence le rôle de la dynamique de l'inclusion dans la déformation et la rupture, pour une bulle dans une turbulence isotrope sans mouvement moyen. La bulle est modélisée par un oscillateur caractérisé par une fréquence d'oscillation (ou un temps de réponse) et un taux (ou temps) d'amortissement. Le temps de réponse de la bulle détermine notamment la quantité d'énergie maximale que peut lui transmettre un tourbillon, tandis que la bulle accumule de l'énergie en oscillant. La déformation de la bulle peut augmenter ou diminuer selon que ses oscillations sont en phase ou en opposition de phase avec la sollicitation du tourbillon. La rupture peut alors être provoquée par deux mécanismes. Le premier se produit quand la bulle rencontre un tourbillon suffisamment intense pour la rompre en un temps inférieur au temps de réponse de la bulle. Ce mécanisme est régi par un bilan de forces statique, à l'instar de la théorie de Hinze-Kolmogorov : si le nombre de Weber local rencontré par la goutte dépasse la valeur critique, la goutte se rompt. Le second mécanisme met en jeu un phénomène de résonance avec les fluctuations dont la fréquence est égale à la fréquence propre d'oscillation de la bulle. La rupture a lieu si le temps d'amortissement de la bulle est supérieur au temps séparant deux fluctuations intenses successives.

Galinat et al (2007) ont conduit l'étude dynamique de la rupture d'une goutte dans un écoulement turbulent en aval d'une restriction de section en conduite. La goutte est modélisée

par un oscillateur linéaire forcé, le forçage étant représenté par un nombre de Weber local déterminé expérimentalement. Les deux mécanismes de rupture proposés par Risso et Fabre (1998) ont été testés et les probabilités de rupture obtenues par le modèle comparées aux valeurs expérimentales. L'emploi d'un critère de rupture basé sur le dépassement par le nombre de Weber instantané d'un seuil critique ne permet pas de reproduire les probabilités de rupture expérimentales. En revanche, l'emploi d'un critère de rupture basé sur la déformation instantanée de l'interface permet de reproduire la statistique des occurrences de rupture. En d'autres termes, la goutte qui se déforme durant son séjour dans le champ turbulent, se fragmente quand sa déformation atteint ou dépasse une valeur critique. Ces résultats montrent les limites de l'approche par bilan de forces statiques, et mettent en évidence l'importance de la dynamique de la goutte dans l'analyse de la déformation et la rupture. Une détermination précise des fréquences d'oscillation et des taux d'amortissement est donc indispensable à l'établissement de modèles prédictifs de rupture.

La déformation et la rupture en écoulement turbulent sont donc régies par l'interaction entre deux systèmes : d'une part la goutte-oscillateur qui est caractérisée par ses propriétés dynamiques (fréquence d'oscillation et taux d'amortissement) et, d'autre part l'écoulement qui est caractérisé par les fluctuations de pression à l'échelle de la goutte. Les travaux que nous présentons dans ce document sont consacrés à l'étude du premier système, celui de la goutte-oscillateur. Pour cela, nous avons développé une méthode de caractérisation de la dynamique des oscillations de gouttes, en présence d'un forçage externe imposé et pour une large plage de fréquences (0.1 Hz – 150 Hz), incluant les fréquences propres d'oscillation des gouttes considérées. Les gouttes étudiées sont attachées à l'extrémité d'un capillaire, qui transmet le forçage externe à la goutte, sous la forme de variations de volume périodiques de faible amplitude.

Nous avons appliqué cette méthode à différents types d'interfaces liquide-liquide, notamment en présence de surfactants adsorbés. En effet, la présence de surfactants à l'interface modifie les propriétés de celles-ci en lui conférant un comportement viscoélastique. Contrairement au cas où le système de phases est constitué de liquides purs, la tension interfaciale varie dans le temps avec la variation d'aire engendrée par la déformation. En outre, des gradients de tension interfaciale apparaissent, provoquées par la déformation mais aussi par l'écoulement, en particulier lorsque la vitesse relative entre la goutte et la phase continue n'est pas nulle.

Le premier chapitre de ce document est consacré à la caractérisation rhéologique à basse fréquence d'interfaces liquides-liquides en présence de surfactants provenant du pétrole brut. Cette première partie a pour but d'identifier un système de phases dont l'interface présente un comportement viscoélastique significatif que nous caractérisons par des méthodes classiques de rhéologie interfaciale. Ce système sera utilisé par la suite afin de mettre en évidence l'effet des propriétés viscoélastiques de l'interface sur la dynamique des oscillations à des fréquences élevées, pouvant atteindre 150 Hz.

Dans le second chapitre nous introduisons tout d'abord les fondements théoriques des oscillations de bulles et de gouttes, depuis la théorie potentielle pour les fluides parfaits (Rayleigh, 1879, Lamb, 1932) jusqu'à la théorie visqueuse pour les fluides réels (Miller et Scriven, 1968, Marston, 1980, Lu et Apfel, 1991). Nous présentons ensuite la méthode de caractérisation de la dynamique des oscillations, appliquée à un système liquide-liquide en l'absence de surfactants. Les premiers modes d'oscillation de gouttes sont identifiés, les fréquences et taux d'amortissement correspondants sont alors mesurés et interprétés à la lumière des études théoriques.

La caractérisation de la dynamique interfaciale en présence de surfactants est présentée dans le troisième chapitre. Ces derniers proviennent d'un pétrole brut qui, dilué dans l'heptane, constitue la phase interne de la goutte. Les résultats obtenus son originaux et ont des conséquences essentielles sur un sujet très peu abordé dans la littérature, malgré son importance du point de vue industriel, notamment dans le cas des émulsions pétrolières : la déformation et la rupture d'une goutte en écoulement turbulent en présence de surfactants.

Enfin, nous avons abordé la situation où les gouttes sont en ascension libre dans la phase continue. Des gouttes de diamètres différents sont produites à l'extrémité d'un capillaire puis relâchées dans une phase continue au repos. Nous observons des oscillations amorties tandis que la goutte s'élève et que sa forme, initialement non sphérique, relaxe vers sa géométrie stationnaire finale. La décomposition de la forme en harmoniques sphériques nous permet alors de mesurer les fréquences et les taux d'amortissement des principaux modes propres. L'effet du glissement entre les phases sur les paramètres de la gouttes-oscillateur peut ainsi être évalué.

Les travaux de thèse que nous présentons ici ont été réalisés dans le cadre d'un partenariat entre l'IFP et le Laboratoire de Génie Chimique (contrat Cifre). Ils s'inscrivent également dans le thème de recherche *Microphysique des milieux dispersés (MUMID)* de la fédération de recherche FERMaT et sont ainsi l'objet d'une collaboration entre le Laboratoire

de Génie Chimique, l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse et le Laboratoire d'Ingénierie des Systèmes Biologiques et Procédés. Les expériences présentées dans le chapitre 4 ont été réalisées à Prague, dans le cadre d'une collaboration avec l'*Institute of Chemical Processes Fundamentals* de l'Académie des Sciences de la République Tchèque.

1 Rhéologie interfaciale à basse fréquence. Caractérisation d'interfaces pétrole dilué / eau.

1 Introduction

La présence de surfactants à l'interface confère à celle-ci un comportement viscoélastique qui se manifeste par une dépendance de la tension interfaciale vis-à-vis de l'aire interfaciale. Ce comportement peut avoir un effet important sur la stabilité des émulsions et des mousses, en particulier sur le drainage de film lors de la coalescence (Langevin, 2000). Plusieurs travaux ont montré le rôle des tensioactifs adsorbés à l'interface sur la rupture de goutte dans les écoulements à faible Reynolds (Stone et Leal, 1990 Janssen et al, 1994, Williams et al, 1997).

Ce premier chapitre est consacré à des mesures de rhéologie interfaciale par dilatation pour des systèmes liquide-liquide, en présence de surfactants provenant du pétrole brut. Ces systèmes seront utilisés, dans la suite de ce travail, afin de mettre en évidence l'effet des surfactants adsorbés sur la dynamique interfaciale de gouttes oscillant à haute fréquence, et par suite sur la déformation et la rupture de ces gouttes dans un écoulement turbulent.

Les campagnes de mesures ont eu lieu à l'IFP, Rueil-Malmaison (direction Chimie et Physicochimie appliquées).

2 Rhéologie interfaciale par dilatation – Eléments de théorie

La rhéologie a pour but d'étudier l'écoulement et la déformation de corps soumis à des contraintes. Comme son nom l'indique, la rhéologie interfaciale (ou bidimensionnelle) s'intéresse à la déformation d'interfaces liquide-liquide ou liquide-gaz. La déformation de l'interface consiste en une variation de l'aire interfaciale (compression ou dilatation). La réponse de l'interface à une telle déformation se manifeste par une variation de la tension

interfaciale. Cette réponse est généralement quantifiée à l'aide du module interfacial dilatationnel *E* (Lucassen et Van Den Tempel, 1972)

$$E = \frac{d\sigma}{d\ln A}, \qquad (1.1)$$

où σ est la tension interfaciale et A est l'aire interfaciale à un instant donné. Pour de faibles déformations, nous pouvons écrire :

$$E = A_0 \frac{\Delta\sigma}{\Delta A}. \qquad (1.2)$$

Par analogie avec la rhéologie tridimensionnelle, nous pouvons définir une déformation de surface et une vitesse de déformation de surface, respectivement (Ivanov et al) :

$$\alpha = \frac{\Delta A}{A_0} = \frac{A - A_0}{A_0}, \qquad \dot{\alpha} = \frac{1}{A_0}\frac{dA}{dt} = \frac{d\alpha}{dt}. \qquad (1.3)$$

D'autre part, la contrainte à l'interface est définie comme étant la différence entre la pression de surface au repos (interface non déformée) et la pression de surface à un instant donné, après une déformation. Elle s'écrit

$$\tau \equiv \pi_0 - \pi = \sigma - \sigma_0, \qquad (1.4)$$

avec π_0 pression de surface au repos, π pression de surface à un instant donné, σ_0 tension interfaciale en l'absence de déformation, σ tension interfaciale à un instant donné.

Le module interfacial peut s'écrire alors, pour les déformations de faible amplitude :

$$E = \frac{\sigma - \sigma_0}{\alpha}. \qquad (1.5)$$

2.1 Equation d'état - modèle de Kelvin-Voigt

Le comportement d'une interface être décrit par un modèle rhéologique, qui s'exprime mathématiquement par une équation d'état. Cette équation met en relation la contrainte à l'interface, sa dérivée par rapport au temps, la déformation ainsi que la vitesse de déformation (Ivanov *et al*, 2005).

Pour une interface ayant un comportement purement élastique, la contrainte à l'interface (variation de tension interfaciale) est proportionnelle à la déformation et le module interfacial est égal à l'élasticité de Gibbs. Cela requiert que l'espèce adsorbée à l'interface soit insoluble et qu'elle ne subisse pas de réarrangement pendant la déformation. La seconde condition n'est

pas nécessaire dans le cas de déformations quasi-statiques, lorsque le temps caractéristique de déformation est grand devant le temps caractéristique de réarrangement à l'interface.

Dans la plupart des cas, la vitesse de dilatation ou de compression de l'interface est finie et le temps caractéristique de réarrangement des molécules adsorbées n'est pas négligeable devant celui de la déformation. Le réarrangement des molécules nécessite alors un apport d'énergie supplémentaire. Le modèle de Kelvin-Voigt en tient compte en introduisant dans l'équation d'état un terme de contrainte *visqueuse*, proportionnel à la vitesse de déformation.

L'équation d'état rhéologique s'écrit alors

$$\sigma = \sigma_0 + \varepsilon_V \alpha + \eta_V \dot{\alpha}\,, \tag{1.6}$$

où ε_V et η_V sont respectivement une élasticité et une viscosité interfaciales dilatationnelles. Notons que les valeurs de l'élasticité et de la viscosité dépendent du modèle choisi, d'où la nécessité de préciser le modèle rhéologique dont elles sont issues. Le modèle de Kelvin-Voigt est schématisé par une analogie mécanique qui consiste à placer en parallèle un ressort obéissant à la loi de Hooke et un amortisseur obéissant à la loi de Newton.

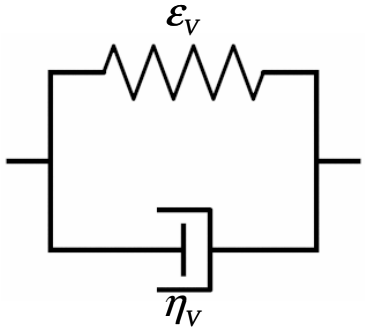

Figure 1.1. Représentation mécanique du modèle de Kelvin-Voigt

2.2 Mesures rhéologiques – Méthode de la goutte pendante oscillante

Afin de déterminer les propriétés rhéologiques d'une interface, celle-ci est soumise à une variation d'aire sinusoïdale, qui entraîne une variation sinusoïdale de la tension interfaciale.

Ainsi, la déformation α s'écrit

$$\alpha = \tilde{\alpha} \exp i(\omega t)\,, \tag{1.7}$$

et la tension interfaciale instantanée est donnée par

$$\sigma = \sigma_0 + \tilde{\sigma} \exp\, i(\omega t + \varphi)\,, \tag{1.8}$$

où $\tilde{\alpha}$ est l'amplitude de la déformation oscillante, $\tilde{\sigma}$ l'amplitude de la tension interfaciale oscillante, ω la pulsation de l'oscillation et φ le déphasage entre la déformation et la tension interfaciale.

Par suite le module viscoélastique s'écrit :

$$E = \frac{\sigma - \sigma_0}{\alpha} = \frac{\tilde{\sigma}}{\tilde{b}} \exp(i\varphi)\,, \tag{1.9}$$

où

$$E = |E| \cos\varphi + i|E| \sin\varphi\,, \tag{1.10}$$

avec $|E| = \frac{\tilde{\sigma}}{\tilde{\alpha}}$, norme du module viscoélastique.

La partie réelle $E' = |E| \cos\varphi$ dite aussi composante élastique (Benjamins et al, 1996) représente l'énergie stockée par le système. La partie imaginaire, ou composante visqueuse $E'' = |E| \sin\varphi$ représente l'énergie dissipée lors de la déformation.

En comparant l'expression du module viscoélastique complexe à l'équation d'état de l'interface, nous pouvons déterminer les valeurs de l'élasticité et de la viscosité interfaciales correspondant à un modèle donné. Pour celui de Kelvin-Voigt (eq. 1.6) on a

$$\sigma - \sigma_0 = (\varepsilon_V + i\omega\eta_V)\alpha\,, \tag{1.11}$$

et le module viscoélastique complexe s'écrit donc

$$E = \varepsilon_V + i\omega\eta_V\,. \tag{1.12}$$

Les valeurs de l'élasticité et de la viscosité interfaciales se déduisent alors de sa norme $|E|$ de sa phase φ :

$$\varepsilon_V = E' = E\cos\varphi \quad , \quad \eta_V = \frac{E''}{\omega} = \frac{E\sin\varphi}{\omega}\,. \tag{1.13}$$

3 Système de phases

La phase continue est constituée d'eau distillée, ou dans certains cas, d'eau du robinet. Quant à la phase dispersée, elle est constituée d'un mélange de pétrole brut (10 % en volume) et d'heptane (VWR, pureté 99.5 %). Les mélanges sont préparés la veille des campagnes de mesures. Le pétrole fournit ainsi les substances amphiphiles, principalement les asphaltènes et les résines, responsables du comportement viscoélastiques de l'interface. La dénomination *asphaltènes* regroupe les composants du pétrole brut insolubles dans le pentane. Cette famille est constituée de macromolécules (500 – 1500 g/mol) comportant des cycles aromatiques et des hétéroatomes. Les résines sont également des molécules aromatiques polaires et comportent des hétéroatomes. Leur masse moléculaire est inférieure à celle des asphaltènes. La famille des résines est définie comme étant la fraction du brut qui est soluble dans les alcanes légers (heptane, pentane) mais qui précipite dans le propane liquide (Sjoblom et al, 2003).

Tableau 1.1 Analyse SARA et propriétés physiques des pétroles testés

Analyse SARA de la coupe 344 + (résidu de la distillation à 344°C)	Pétrole 1	Pétrole 2
Saturés (% en masse)	47.5	29.7
Aromatiques (% en masse)	39.1	46.1
Résines (% en masse)	12.6	18.9
Asphaltènes (% en masse)	0.1	4.8
Rendement en masse de la coupe (%)	50.76	56.34
Propriétés physiques (brut complet)		
Masse volumique à 15°C	0.85	0.88
Viscosité à 20°C (cP)	9	10

Nous avons testé deux pétroles bruts légers et peu visqueux, différant par leur taux d'asphaltènes. La composition SARA de la coupe 344+ (résidu de la distillation préparative à 344°C), la masse volumique et la viscosité des bruts complets sont présentées dans le

Tableau 1.1. Enfin, la dilution du pétrole brut permet de conserver des valeurs de densité et de viscosité proches de celles du système de référence qui est constitué d'eau comme phase continue et d'heptane comme phase dispersée.

4 Dispositif expérimental

Les mesures sont réalisées à l'aide d'un tensiomètre à goutte dynamique (Tracker, IT Concept) représenté sur la Figure 1.2. La goutte est formée à l'extrémité d'un capillaire, relié à une seringue contenant la phase interne. Le piston de la seringue est piloté par un moteur, qui permet de former la goutte et de lui imposer des variations de volume périodiques. L'extrémité du capillaire est immergée dans la phase continue. Des images successives de la goutte formée sont obtenues à l'aide d'une caméra CCD dont la vitesse maximale d'acquisition est de 25 images par seconde. Les images sont binarisées et les contours de la goutte extraits. L'analyse du profil de la goutte permet d'en déterminer l'aire et la tension interfaciales. La détermination de la tension interfaciale se fait par résolution de l'équation de Laplace-Young sur le contour de la goutte.

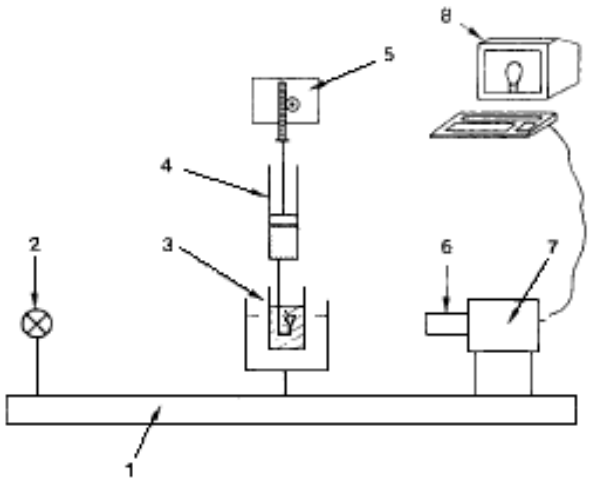

Figure 1.2. Tensiomètre à goutte dynamique (Benjamins et al.,1996), (1) Banc optique, (2) Source lumineuse, (3) cuve thermostatée et capillaire en U, (4) seringue contenant la phase dispersée, 5) moteur, 6) système optique 7) Caméra CCD, 8) PC de pilotage.

L'aire interfaciale de la goutte (maintenue au bout du capillaire) est soumise à une déformation sinusoïdale. En réalité c'est le volume de la goutte qui subit des variations sinusoïdales qui lui sont transmises par le moteur à travers le piston de la seringue. Pour de

faibles amplitudes, une variation sinusoïdale en volume se traduit par une variation sinusoïdale en surface, d'amplitude proportionnelle.

Afin d'évaluer l'effet de l'âge de l'interface sur les propriétés rhéologiques, plusieurs séries d'oscillations sont appliquées à la goutte au cours du temps, toutes les 15 minutes. La durée d'une série d'oscillations est de 90 secondes. La fréquence d'oscillation est comprise entre 0.1 et 1 Hz. L'amplitude de la variation de l'aire interfaciale est égale à 5 % de l'aire au repos.

Deux signaux oscillants sont alors représentés : l'aire et la tension interfaciales. Ces signaux sont analysés par le logiciel de contrôle du tensiomètre. Le rapport des amplitudes et le déphasage entre les deux signaux sont déterminés et le module viscoélastique en est déduit. La température est régulée par un thermo-cryostat et fixée à 30°C, ce qui permet d'éviter la cristallisation des paraffines d'une part et de limiter l'évaporation de solvant et des espèces les plus volatiles d'autre part.

5 Comparaison entre deux types de pétrole brut

La Figure 1.3 montre que l'interface entre le pétrole 1 (dilué dans l'heptane) et l'eau présente un module viscoélastique $|E|$ plus élevé que celle entre le pétrole 2 (dilué) et l'eau alors que la concentration en asphaltènes du pétrole 2 est supérieure à celle du pétrole 1. Les asphaltènes constituant une partie importante des espèces amphiphiles du brut, le fait que leur activité interfaciale évolue en sens contraire par rapport à leur concentration peut paraître surprenant. Cependant, il faut noter que l'activité interfaciale des agrégats d'asphaltènes dépend de leur taille et donc de leur état de solvatation (McLean et Kilpatrick, 1997). A plus forte concentration dans un solvant paraffinique, la grande taille des agrégats est défavorable à leur adsorption à l'interface et à la formation d'un réseau interfacial. En outre, le rapport de la concentration en résines sur celle des asphaltènes est supérieur dans le cas du pétrole 1. Or les résines jouent un rôle essentiel dans la constitution du réseau interfacial, comme l'ont montré Dichary et al (2006) et Quintero (2008). Pour les expériences qui suivent, notre choix portera donc sur le pétrole 1.

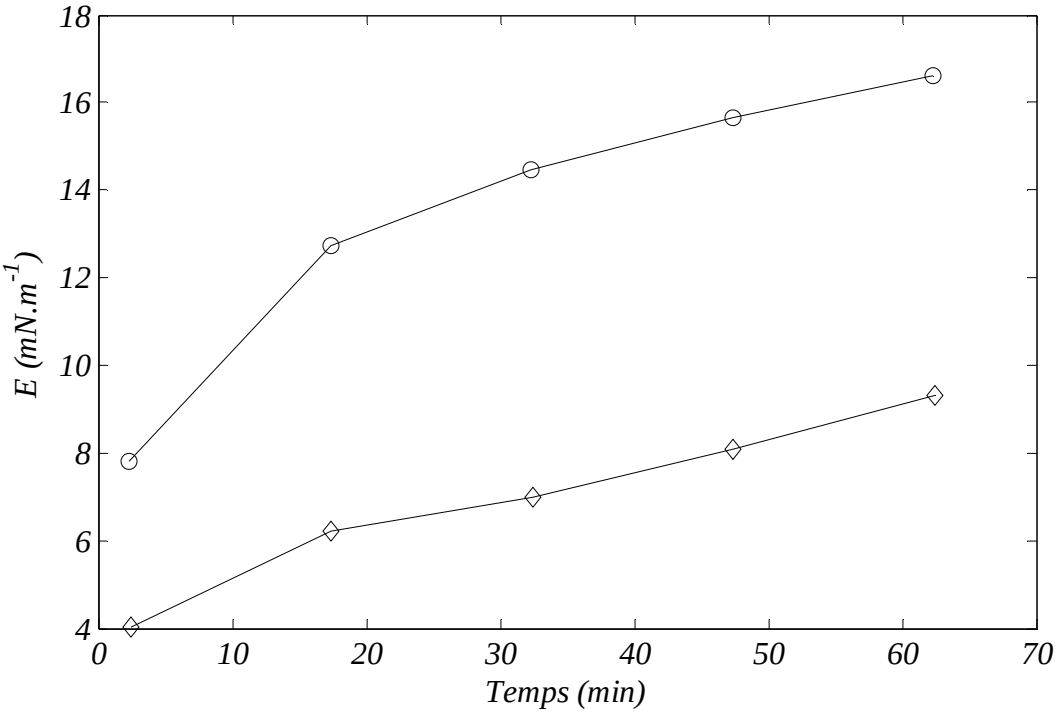

Figure 1.3. Norme du module viscoélastique interfacial |E| en fonction de l'âge de l'interface pour 2 pétroles, dilués (10 %) dans l'heptane. Fréquence d'oscillation 0.1 Hz, T=30°C

6 Effet du vieillissement de l'interface

La Figure 1.4 présente l'évolution de la tension interfaciale et du module viscoélastique de l'interface pétrole 1 (dilué) / eau au cours du temps. Nous pouvons observer une diminution de la tension interfaciale et une augmentation du module viscoélastique de l'interface avec le temps de contact entre les phases. A partir de 5 minutes, la décroissance de la tension est beaucoup plus faible que l'augmentation des paramètres rhéologiques. En effet, la formation du film interfacial implique deux processus : un processus rapide de diffusion et d'adsorption, et un processus plus lent de réorganisation sur l'interface qui débute dès la mise en contact mais se poursuit ensuite sur une très longue durée (Jeribi et al, 2002, Bouriat et al, 2004).

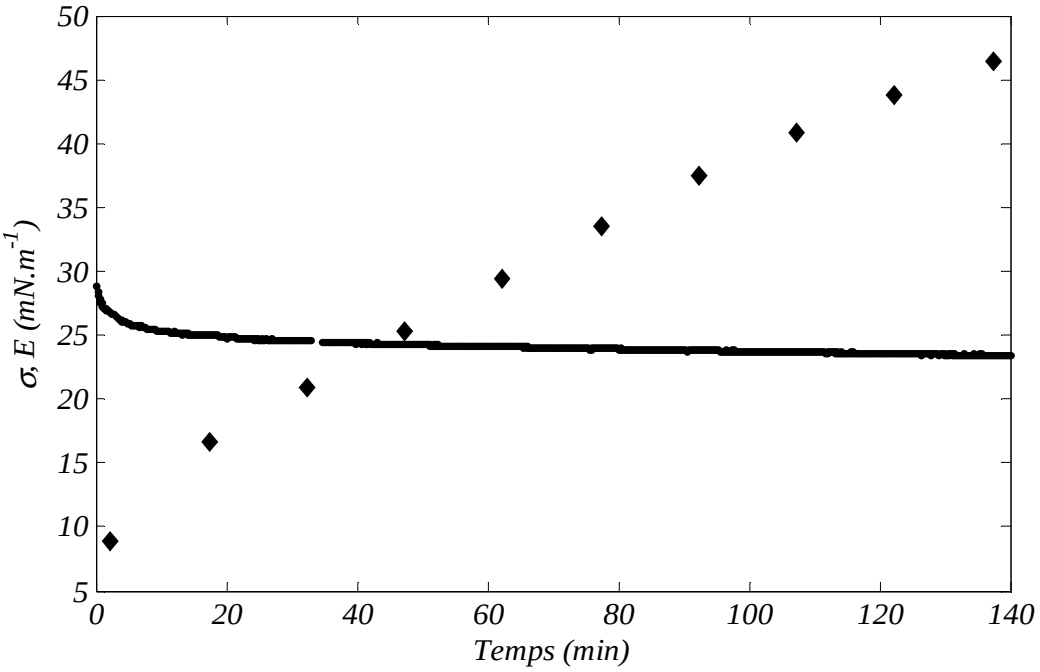

Figure 1.4. Tension, interfaciale (▬) et norme du module viscoélastique |E| (♦) en fonction de l'âge de l'interface. Pétrole 1 dilué / eau. Fréquence d'oscillation 0.1 Hz, T=30°C

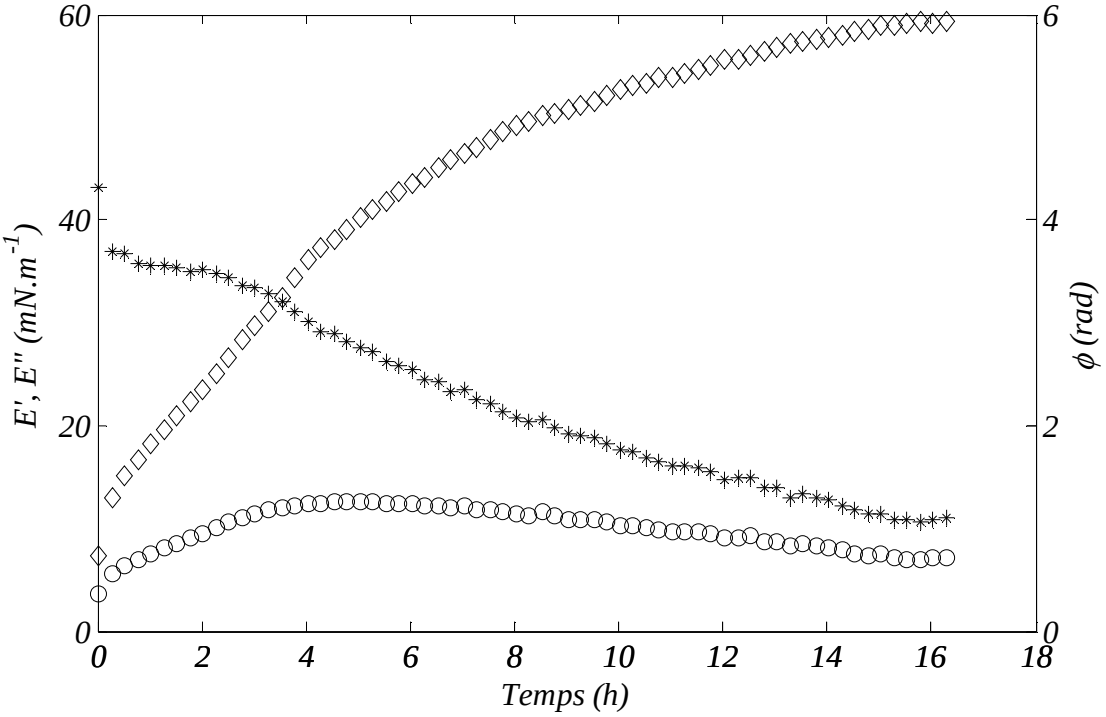

Figure 1.5 Evolution des modules élastiques (◇), visqueux (○), et le déphasage (*) entre le signal de la déformation et celui de la tension interfaciale, en fonction de l'âge de l'interface. Fréquence d'oscillation 0.2 Hz, T=30°C

La Figure 1.5 montre que le module élastique croît de manière rapide et continue durant l'intervalle de temps considéré alors que le module visqueux croît d'abord d'une manière plus modérée pour ensuite diminuer après 5 heures. Nous assistons donc à une rigidification de l'interface au cours du temps. Aux temps très longs, l'interface pourrait se comporter comme un réseau élastique comparable à un matériau solide.

7 Evolution des paramètres rhéologiques en fonction de la fréquence d'oscillation

La Figure 1.6 présente l'évolution de l'élasticité interfaciale de Voigt ε_V (qui est égale au module élastique *E*) en fonction de la fréquence d'oscillation. Nous constatons que cette évolution suit une loi de puissance $\varepsilon_V = A \cdot f^B$, avec B = 0.25 en moyenne. La viscosité de Voigt, η_V, diminue avec la fréquence d'oscillation (Figure 1.7) et suit également une loi de puissance avec un exposant B' = -0.8.

Le déphasage entre la variation d'aire et la tension interfaciale est représenté sur la Figure 1.8. Nous constatons, qu'à partir d'un temps de vieillissement de 15 minutes, ce déphasage est presque constant et vaut 0.4 rad en moyenne. Ce comportement est attribué à la formation d'un gel bidimensionnel à l'interface (Bouriat et al, 2004, Quintero, 2008). En effet, selon Winter et Chambon (1986, 1987), un polymère proche de son point de gel est caractérisé par un rapport constant entre les modules élastiques et visqueux, ce qui signifie que le déphasage entre le signal de la contrainte et celui de la déformation est également constant et vaut $\varphi = \frac{\pi}{2} B$, où B est l'exposant de la loi de puissance qui relie le module élastique à la fréquence d'oscillation. En admettant que l'analogie entre les gels tridimensionnels et les réseaux interfaciaux est valide (Bouriat et al, 2004), nous constatons que pour un vieillissement de 15 min, $\varphi = \frac{\pi}{2} B = 0.4$ rad. Nous en déduisons alors que le réseau interfacial commence à prendre forme à partir d'un vieillissement de 15 min. Ce constat rejoint les observations de Quintero (2008), pour le même type de pétrole, mais en l'absence de dilution. Enfin, l'existence d'un réseau à l'interface peut être mise en évidence en diminuant le volume de la goutte, ce qui a pour conséquence le rétrécissement de l'interface, et par suite l'apparition de rides comme le montre la Figure 1.9.

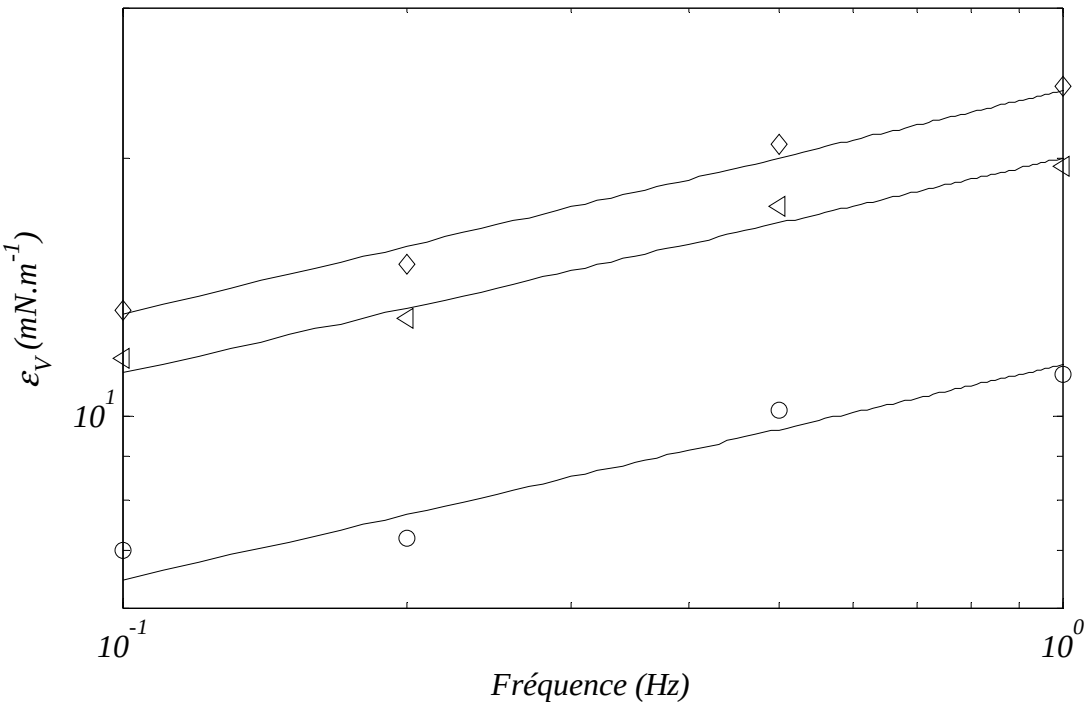

Figure 1.6 Elasticité interfaciale de Voigt en fonction de la fréquence d'oscillation. Temps de vieillissement des interfaces de 1.5 min (o), 15 min (Δ) et 30 min (◊) Lignes continues : lois de puissance avec des exposants de 0.25, 0.25 et 0.26, respectivement.

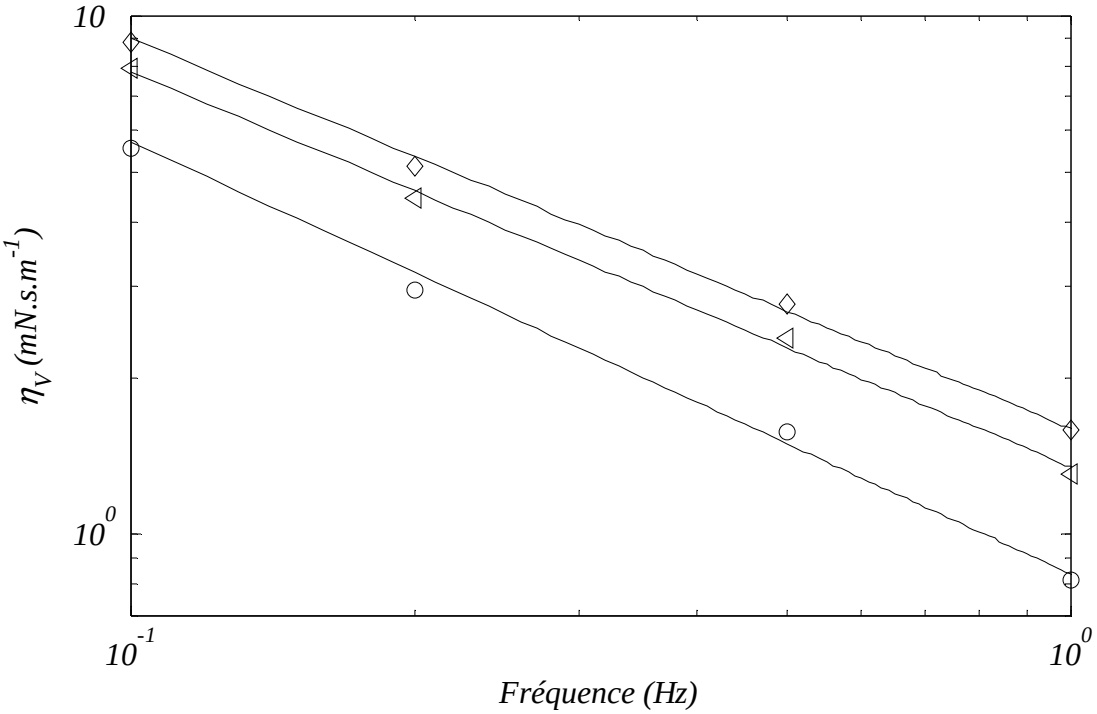

Figure 1.7 Viscosité interfaciale de Voigt en fonction de la fréquence d'oscillation. Temps de vieillissement des interfaces de 1.5 min (o), 15 min (Δ) et 30 min (◊). Lignes continues : lois de puissance avec des exposants de -0.83, -0.76 et -0.75, respectivement.

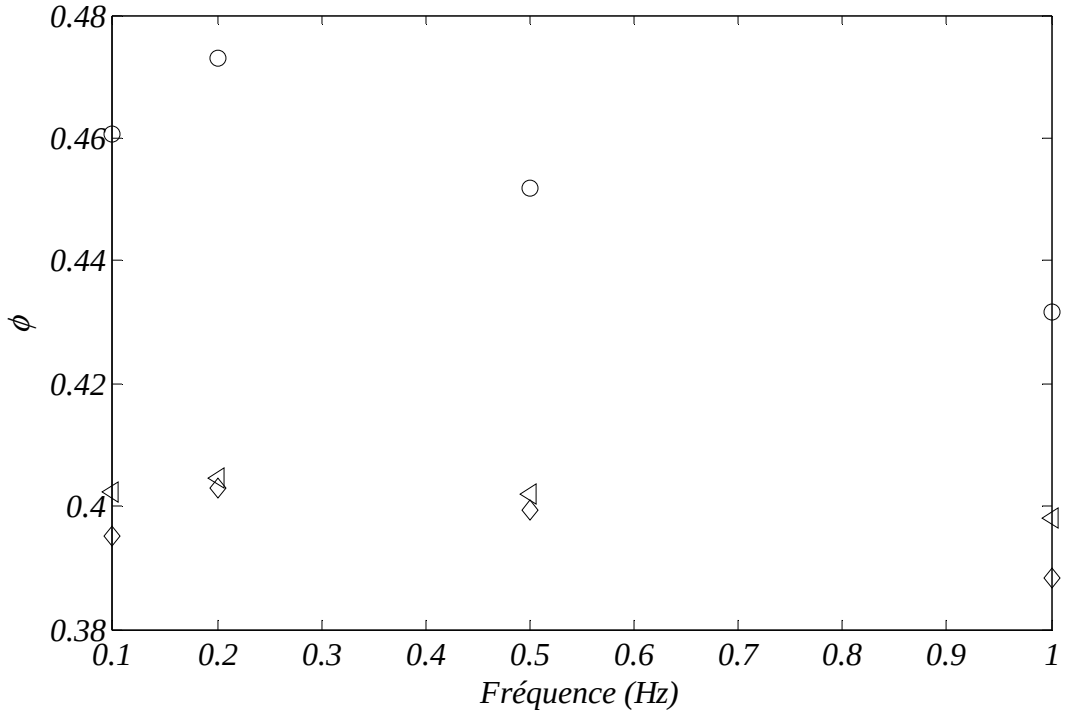

Figure 1.8 Déphasage entre le signal de la variation d'aire et celui de la tension interfaciale Temps de vieillissement des interfaces de 1.5 min (o), 15 min (Δ) et 30 min (◊).

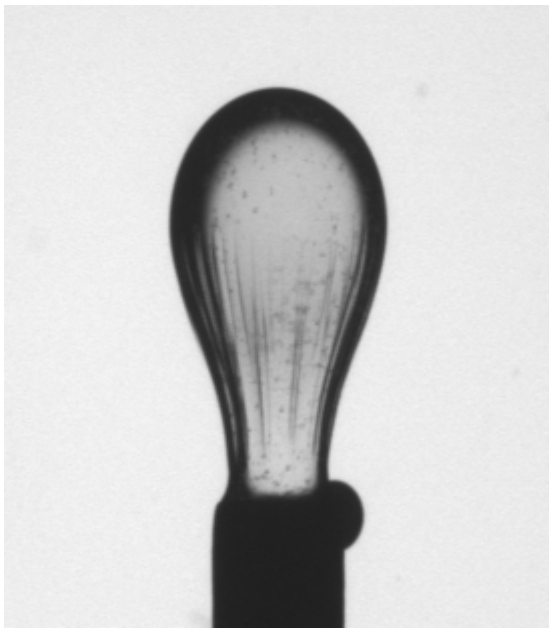

Figure 1.9 Rétrécissement de l'interface d'une goutte de pétrole dilué. Vieillissement préalable de 2 h 30 min.

8 Conclusion

Cette étude préliminaire a permis tout d'abord de choisir un système liquide-liquide dont l'interface présente un comportement viscoélastique. Cette interface a été caractérisée à l'aide d'une méthode classique de rhéologie interfaciale par dilatation. La formation d'un gel bidimensionnel à l'interface a été mise en évidence, pour un vieillissement supérieur ou égal à 15 minutes. Aux temps longs, ce réseau interfacial devient de plus en plus rigide, son comportement se rapproche de celui d'un solide élastique.

Enfin, ce travail met en évidence la dépendance des paramètres rhéologiques interfaciaux vis-à-vis de la fréquence d'oscillation. Il est en outre essentiel de rappeler que les mesures de rhéologie interfaciale par la méthode de la goutte oscillante ne sont valables que dans une gamme restreinte de fréquences, typiquement comprise entre 0.1 et 1 Hz. Au-delà de la limite supérieure, les contraintes hydrodynamiques inertielles et visqueuses à l'interface ne pourront plus être négligées et la forme de l'interface ne sera plus régie par l'équilibre entre les seules forces de gravité et de capillarité.

Par ailleurs, des phénomènes cruciaux pour les applications à l'industrie pétrolière comme la déformation et la rupture en écoulement turbulent impliquent des fréquences élevées, de l'ordre de plusieurs dizaines de Hertz. Les mesures rhéologiques à basse fréquence ne sont donc pas suffisantes pour l'interprétation de tels phénomènes. Une intéressante tentative d'extrapolation des valeurs de modules interfaciaux, basée sur le principe thermodynamique d'équivalence temps-température, a été mise en œuvre par Bouriat et al (2004) pour des fréquences allant jusqu'à 80 Hz. Cependant, cette approche ne prenant en compte que les interactions entre les molécules adsorbées, elle ne permet pas d'appréhender des situations où l'hydrodynamique joue un rôle important, à la fois dans la dynamique de la déformation de l'interface et dans le transfert de molécules ou d'agrégats entre l'interface et les fluides qui l'entourent.

2 Dynamique des oscillations d'une goutte pendante à haute fréquence

1 Introduction

La caractérisation de la dynamique des oscillations des inclusions fluides revêt un caractère essentiel dans la prédiction de la déformation et de la rupture en écoulement turbulent. Le rôle de la dynamique de bulles dans la rupture en écoulement turbulent a été mis en évidence par Risso et Fabre (1998), qui ont identifié deux mécanismes de fragmentation. Le premier est régi par un bilan de force statique (Kolmogorov- Hinze) et a lieu lorsqu'une bulle rencontre un tourbillon d'une intensité suffisante pour provoquer la rupture. Ce mécanisme est donc caractéristique des nombres de Weber élevés. Le deuxième mécanisme a lieu quand le nombre de Weber local est peu élevé. Dans ce cas, l'énergie d'un tourbillon est insuffisante pour conduire à la rupture. Cette dernière est alors due à un phénomène de résonance où la bulle se comporte comme un oscillateur caractérisé par une fréquence propre et un taux d'amortissement. La bulle accumule de l'énergie en interagissant avec des tourbillons successifs et finit par se rompre quand elle a atteint un niveau d'énergie suffisamment élevé. Les travaux de Risso et Fabre ont abouti à la mise en place d'un modèle dynamique de déformation fondé sur le couplage entre les théories de Kolmogorov-Hinze et de Rayleigh-Lamb. Ce modèle dynamique a été étendu par Galinat et al (2007) aux systèmes liquide-liquide, particulièrement au cas de gouttes dans un écoulement turbulent en conduite. Associé à un seuil de déformation au-delà duquel la rupture a lieu, il permet de reproduire les probabilités de rupture expérimentales.

Ce chapitre présente une méthode de caractérisation de la dynamique d'oscillation de gouttes, pour tout système liquide-liquide. En plus de l'intérêt que présente cette méthode en ce qui concerne la détermination des fréquences propres et des taux d'amortissement des systèmes, elle constitue un point de départ pour la caractérisation rhéologique à haute fréquence d'interfaces viscoélastiques, et qui sera abordée dans le chapitre suivant. Nous

allons présenter, dans ce qui suit, le contexte théorique de l'étude, ainsi que les principaux travaux expérimentaux, avant de procéder à la description de la méthode, puis à la présentation et la discussion des résultats.

Rayleigh (1879) a étudié les oscillations de faible amplitude d'une goutte non visqueuse dans le vide. Il est le premier à en avoir calculé les modes propres à l'aide de la théorie linéaire. Lamb (1932, §275) généralise ce calcul pour le cas d'une bulle ou d'une goutte dans une phase externe liquide. La méthode consiste à écrire les équations du mouvement à l'intérieur et à l'extérieur de la goutte en considérant que les écoulements de part et d'autre de l'interface sont des écoulements potentiels. Les oscillations étant supposées de faible amplitude, les conditions de raccordement à l'interface sont écrites pour une sphère correspondant à la goutte non déformée. Ce calcul aboutit à une série de modes d'oscillation caractérisés par deux entiers *m* et *n* tels que $n \geq 2$ et $-n \leq m \leq n$. A chaque mode est associé un vecteur propre, l'harmonique sphérique Y_n^m, qui décrit la forme de l'interface, ainsi qu'une pulsation propre ω_n.

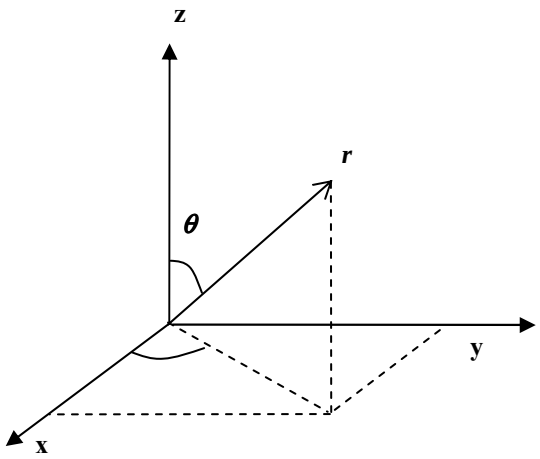

Figure 2.1. Système de coordonnées sphériques

Ainsi, pour une goutte oscillant suivant le mode (*n,m*), la position d'un point de l'interface en coordonnées sphériques (figure 2.1) est donnée, à l'instant *t*, par

$$r = a\left(1 + A_{n,m} Y_n^m(\theta,\phi)\cos(\omega_n t)\right), \qquad (2.1)$$

où *a* est le rayon de la goutte non déformée et $A_{n,m}$ l'amplitude du mode considéré. La pulsation propre s'écrit

$$\omega_n^* = \sqrt{\frac{(n-1)n(n+1)(n+2)}{\rho_d(n+1)+\rho_c(n)}\frac{\sigma}{a^3}}\,, \tag{2.2}$$

où σ est la tension interfaciale du système, ρ_c et ρ_d les masses volumiques des phases interne et externe, respectivement. Notons que la pulsation ne dépend que de *n*, or pour *n* donné, il existe $2n+1$ valeurs de *m* ($-n \le m \le n$) et par suite $2n+1$ modes d'oscillation distincts. Ces modes sont donc dégénérés et ont la même pulsation propre.

Pour un mode (*n*,*m*), la forme de la goutte est décrite à l'aide de l'harmonique sphérique $Y_n^m(\theta,\phi)$. Nous nous intéressons particulièrement aux modes axisymétriques, pour lesquels $m=0$. L'harmonique sphérique correspondante Y_n^0 ne dépend alors que de θ, elle s'écrit à l'aide des polynômes de Legendre

$$Y_n^0(\theta) = P_n(\cos\theta)\,, \tag{2.3}$$

et P_n, polynôme de Legendre d'ordre *n*, est défini par :

$$P_n(x) = \frac{1}{2^n n!}\frac{d^n\left(\left(x^2-1\right)^n\right)}{dx^n}. \tag{2.4}$$

Par suite, pour un mode axisymétrique, l'équation 2.1 devient :

$$r = a\left(1 + A_n Y_n^0(\theta)\cos(\omega_n t)\right). \tag{2.5}$$

Les formes caractéristiques des modes propres aux maxima de déformation ($\cos(\omega_n t) = \pm 1$ dans l'équation 2.5) sont présentées sur la figure 2.2.

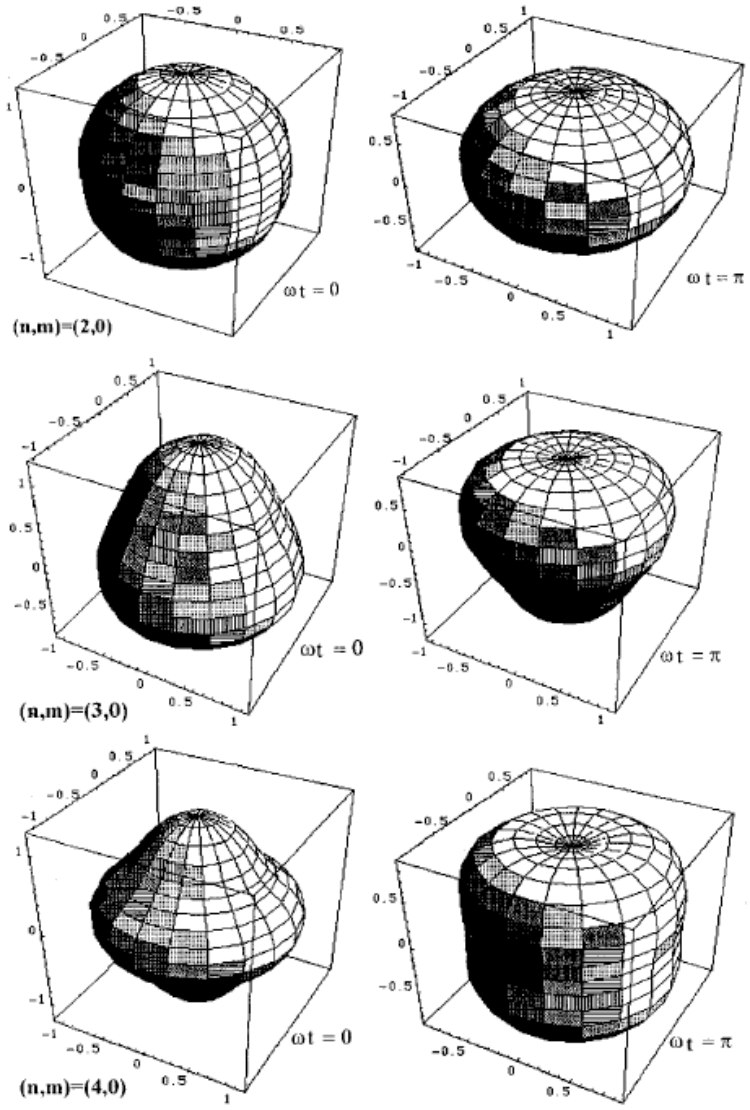

Figure 2.2. Formes de gouttes au maximum de déformation pour les 3 premiers modes axisymétriques (Risso 2000)

Souvent les oscillations libres d'une goutte donnent lieu à une superposition de modes propres, chaque mode étant caractérisé par sa pulsation propre ω_n, l'équation de l'interface à l'instant *t* s'écrit alors

$$r = a\left(1 + \sum_n \left(A_n Y_n^0(\theta)\cos(\omega_n t + \varphi_n)\right)\right). \qquad (2.6)$$

Il est nécessaire ici de faire intervenir pour chaque mode une phase à l'origine des temps notée φ_n, étant donné que les modes ne sont pas nécessairement en phase.

Rappelons que cette analyse néglige la viscosité des fluides et qu'elle est en général appliquée à des systèmes peu visqueux. Cependant, il est évident que même pour des fluides de faible viscosité les oscillations sont amorties et que leur amplitude décroît dans le temps comme le montre l'équation (2.7) :

$$A_n(t) = A_n(0)\exp(-\beta_n t). \tag{2.7}$$

Le taux d'amortissement β_n du mode *n* a été calculé par Lamb dans le cas d'une goutte dans le vide et celui d'une bulle dans un liquide, en s'appuyant également sur la théorie des écoulements potentiels. Les expressions sont établies en évaluant la dissipation visqueuse dans le fluide, loin de l'interface. Pour une goutte de masse volumique ρ_d et de viscosité μ_d dans le vide, le taux d'amortissement s'écrit

$$\beta_n = (n-1)(2n+1)\frac{\mu_d}{\rho_d a^2}, \tag{2.8}$$

et pour une bulle entourée d'un liquide de densité ρ_c et de viscosité μ_c, il s'écrit

$$\beta_n = (n+2)(2n+1)\frac{\mu_c}{\rho_c a^2}. \tag{2.9}$$

Valentine et al (1965) ont généralisé les expressions du taux d'amortissement pour le cas de deux liquides de même densité ρ en additionnant les dissipations des écoulements internes et externes, loin de l'interface :

$$\beta_n = \frac{(n+1)(n-1)\mu_d + n(n+2)\mu_c}{\rho a^2}. \tag{2.10}$$

Pour deux liquides de masses volumiques différentes, cette expression devient

$$\beta_n = \frac{(n+1)(n-1)(2n+1)\mu_d + n(n+2)(2n+1)\mu_c}{(\rho_d(n+1)+\rho_c n)a^2}, \tag{2.11}$$

où les indices *d* et *c* représentent les phases interne et externe respectivement

Valentine *et al.* constatent cependant que le taux d'amortissement calculé (équation 2.11) est 5 à 7 fois plus faible que la valeur expérimentale. Miller et Scriven (1968) remarquent que l'approche potentielle ne permet pas de prendre en compte la continuité des vitesses tangentielles entre les fluides à l'interface. La formule (2.11) ne peut donc être appliquée à des fluides réels, quelle que soit leur viscosité. Miller et Scriven conduisent alors le calcul complet à partir de l'équation de Navier-Stokes linéarisée. Ce calcul permet d'évaluer la fréquence d'oscillation et le taux d'amortissement quel que soit le nombre de

Reynolds. A grand nombre de Reynolds, des couches limites se développent de part et d'autre de l'interface afin de permettre le raccordement des vitesses tangentielles des écoulements loin de celle-ci.

Dans le cas d'une interface libre et non contaminée, l'expression du taux d'amortissement est une somme de deux termes : le premier terme correspond à la dissipation dans l'écoulement à l'extérieur des couches limites, fonction des masses volumiques et des viscosités des deux phases, tandis que le second terme, prédominant, provient de la dissipation visqueuse dans la couche limite de part et d'autre de l'interface. Ce second terme est proportionnel à la racine carrée de la pulsation. Miller et Scriven montrent ainsi que, pour des gouttes millimétriques et des liquides de densité et de viscosité de l'ordre de celles de l'eau, l'écoulement de couche limite est la principale origine de la dissipation visqueuse, et donc de l'amortissement.

L'expression de la pulsation est également modifiée par l'ajout d'un terme de correction, mais ce dernier est négligeable devant la pulsation calculée par Lamb. L'approche potentielle reste donc un bon moyen d'estimation des fréquences propres. Enfin, si la viscosité de l'une des phases est annulée, les expressions de la pulsation et du taux d'amortissement se réduisent aux expressions potentielles correspondantes.

Une analyse similaire est effectuée par Marston (1980) et par Lu et Apfel (1991). Elle aboutit, dans le cas d'un système liquide-liquide, à des expressions quasi-identiques à celles proposées par Miller et Scriven. En effet, l'analyse de Lu et Apfel fait apparaître un terme du second ordre (F^2) dans l'expression du taux d'amortissement, qui a été visiblement omis par Miller et Scriven. Pour un mode d'ordre *n*, la pulsation et le taux d'amortissement s'écrivent, respectivement :

$$\omega_n = \omega_n^* - \frac{\mu_d}{\rho_d a^2} F \sqrt{\mathrm{Re}_d}\ , \tag{2.12}$$

$$\beta_n = \frac{\mu_d}{\rho_d a^2}\left[F\sqrt{\mathrm{Re}_d} - 2F^2 + G\right], \tag{2.13}$$

avec

$$F = \frac{(2n+1)^2(\hat{\rho}\hat{\mu})^{\frac{1}{2}}}{2\sqrt{2}[n\hat{\rho}+n+1][1+(\hat{\rho}\hat{\mu})^{\frac{1}{2}}]}, \tag{2.14}$$

et

$$G = \frac{(2n+1)[2(n^2-1)+(n+2)\hat{\mu}-(n-1)\hat{\rho}\hat{\mu}+2n(n+2)\hat{\rho}\hat{\mu}^2]}{2[n\hat{\rho}+n+1][1+(\hat{\rho}\hat{\mu})^{\frac{1}{2}}]^2}, \qquad (2.15)$$

ρ_c, ρ_d étant respectivement les masse volumiques des phases externe et interne, μ_c, μ_d les viscosités, *a* le rayon de la goutte non déformée et ω_n^* la pulsation de Rayleigh-Lamb (equation 2.2), $\hat{\rho} = \rho_c/\rho_d$ et $\hat{\mu} = \mu_c/\mu_d$. Re_d est le nombre de Reynolds des oscillations, établi à l'aide de la masse volumique et de la densité de la phase dispersée, il s'écrit :

$$\mathrm{Re}_d = \frac{\rho_d a^2 \omega_n^*}{\mu_d}. \qquad (2.16)$$

Ainsi la pulsation ω_n est égale à la somme de la pulsation calculée par Lamb, et d'un terme de correction proportionnel à $\sqrt{\mathrm{Re}_d}$, et qui provient de l'écoulement de couche limite. L'expression du taux d'amortissement comprend également un terme proportionnel à $\sqrt{\mathrm{Re}_d}$, qui représente la dissipation dans les couches limites.

Sur le plan expérimental Trinh *et al.* (1982) ont mis au point une méthode qui permet d'exciter une goutte à l'aide d'un champ acoustique modulé, qui sert également à maintenir la goutte en lévitation. La goutte se trouve entre une source lumineuse qui émet un faisceau parallèle et un photo-détecteur. L'intensité lumineuse non déviée, captée par le photo-détecteur, varie périodiquement et est en phase avec l'oscillation de la goutte. Un balayage de la fréquence de forçage permet d'identifier les premiers modes propres de la goutte. Cependant, l'excitation des modes d'ordre $n \geq 3$ nécessite une pression acoustique élevée qui provoque une déformation moyenne élevée et l'hypothèse de la goutte sphérique n'est plus assurée. L'analyse quantitative se limite donc au mode 2. Les fréquences d'oscillation pour des gouttes de différents diamètres compris entre 10 et 15mm sont conformes aux valeurs prédites par la théorie tandis que les taux d'amortissement sont légèrement sous-estimés.

Les expressions 2.12 et 2.13 ont été également validées par Lu et Apfel (1990), dans le cas de gouttes d'hexane dans l'eau, de diamètre compris entre 0.9 et 2.3 mm, à l'aide de la technique expérimentale développée par Trinh *et al.* (cf ci-dessus). Les gouttes, formées dans la cellule de lévitation sont excitées à une fréquence proche de celle du mode 2 pendant 0.3 secondes. L'amplitude des oscillations libres est mesurée au cours du temps. La fréquence d'oscillation et le taux d'amortissement sont ensuite déterminés directement à l'aide du signal enregistré. Le taux d'amortissement est sous-estimé par la théorie ; Lu et Apfel expliquent cet écart par une contamination inévitable des fluides.

La méthode que nous avons développée consiste à solliciter une goutte pendante en lui imposant des variations de volume sinusoïdales de faible amplitude, à des fréquences comprises entre 0.1 et 200 Hz. Des oscillations de surface prennent alors naissance, et des résonances sont observées à certaines valeurs de la fréquence de forçage. Les modes d'oscillation correspondants sont ainsi identifiés et analysés. Les mesures ont été effectuées pour des gouttes de trois diamètres différents: 4.475, 4.19 et 3.6 mm.

2 Système de phases

La phase continue est constituée d'eau distillée. La phase dispersée est, quant à elle, constituée de n-heptane de grade p.a. (Sigma Aldrich). La tension interfaciale est mesurée au début de la campagne expérimentale à l'aide d'un tensiomètre à goutte pendante (voir ci-dessous). La tension interfaciale mesurée décroît avec l'âge de l'interface ou le temps comme le montre la Figure 2.3. Ce comportement est probablement dû à la présence inévitable de contaminants qui présentent une activité interfaciale. L'âge des gouttes au début d'une série d'oscillation varie entre quelques secondes et 10 minutes. Nous avons retenu la valeur moyenne de 47 mN/m. Le tableau 2.1 récapitule les propriétés physiques des deux liquides à 25°C, température à laquelle a été réalisée l'étude. Enfin trois diamètres de goutte ont été choisis: 4.475, 4.19 et 3.6 mm.

Tableau 2.1. Principales propriétés physiques des fluides constituant le système de phases

	Eau	n-heptane
Masse Volumique $\rho(Kg.m^{-3})$ (handbook of chemistry and physics)	997	680
Viscosité dynamique $\mu(Pa.s)$ (handbook of chemistry and physics)	$0.9\cdot10^{-3}$	$0.4\cdot10^{-3}$
Tension interfaciale $\sigma(N.m^{-1})$	$47\cdot10^{-3}$	

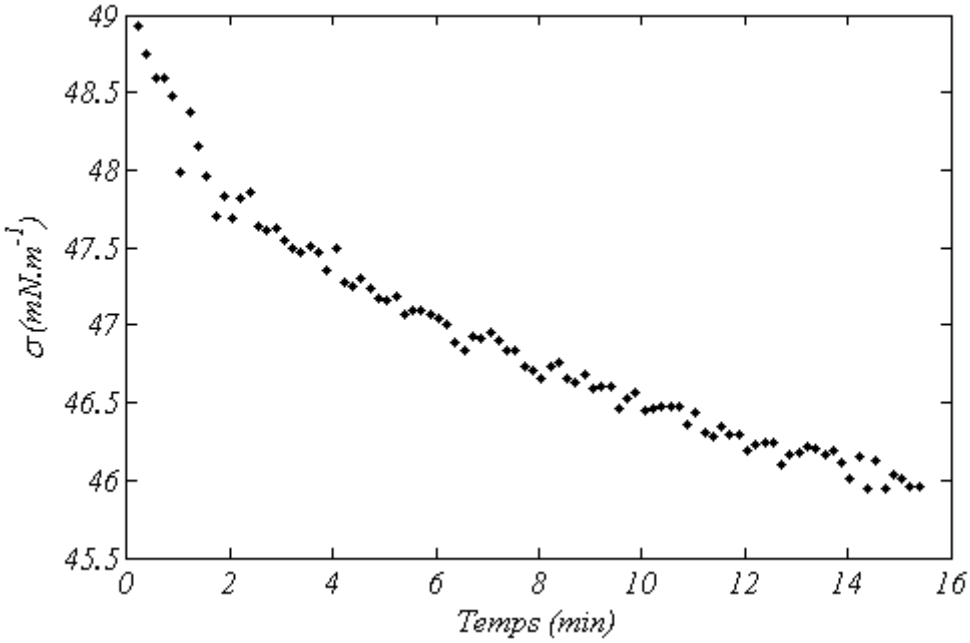

Figure 2.3 Evolution de la tension interfaciale du système heptane / eau au cours du temps.

3 Dispositif expérimental. Mode opératoire.

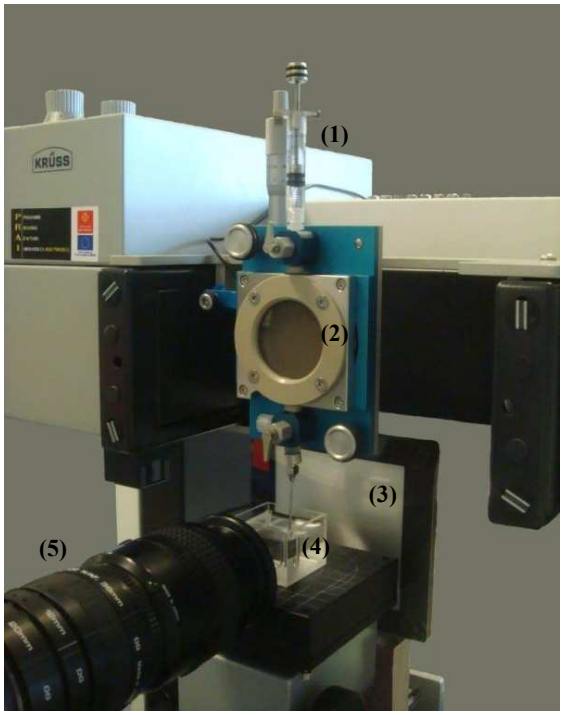

Figure 2.4 Dispositif expérimental. (1) Seringue d'alimentation en phase dispersée, (2) Cellule contenant la phase dispersée, (3) Eclairage par plaque de diodes, (4) Cuvette contenant la phase continue, (5) Objectif caméra rapide

Le dispositif expérimental est constitué de deux parties. D'une part, un générateur d'oscillations permet de former des gouttes et de leur imposer des variations de volume périodiques. D'autre part, un système d'acquisition d'images à haute vitesse permet de capturer des images des gouttes oscillantes.

3.1 Générateur d'oscillations volumiques

Le tensiomètre à goutte (DSA 100 de Krüss, muni du module goutte oscillante ODM), est utilisé ici comme générateur de d'oscillations volumiques sur des gouttes pendantes. Il s'agit d'un appareil dont la fonction première est de mesurer des tensions interfaciales et d'effectuer des mesures de rhéologie interfaciale à basse fréquence (inférieures à 1Hz), comme celles présentées dans le chapitre 1.

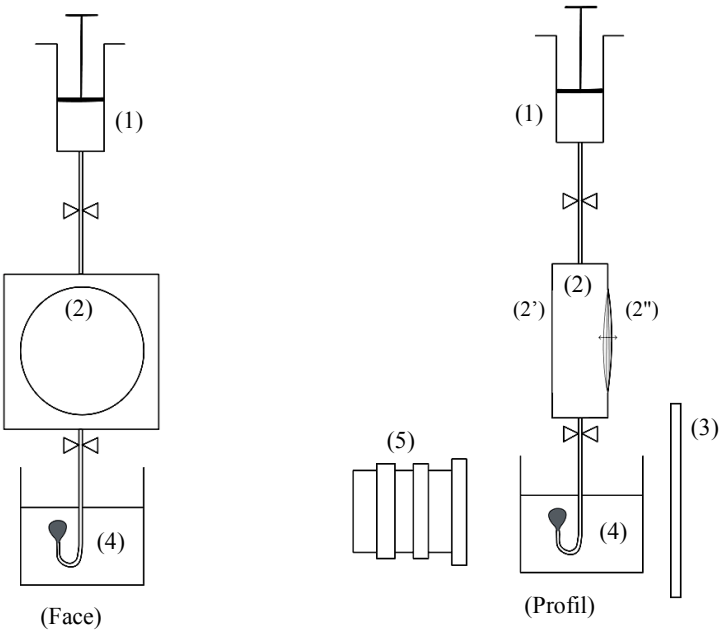

Figure 2.5 Schéma du dispositif expérimental. (1) Seringue d'alimentation en phase dispersée, (2) Cellule contenant la phase dispersée, (2') Hublot, (2") Membrane piézoélectrique (3) Eclairage par plaque de diodes, (4) Cuvette contenant la phase continue, (5) Objectif caméra rapide.

La phase interne est stockée dans une cellule dont l'une des parois est constituée d'une membrane piézoélectrique. L'entrée de la cellule communique avec une seringue qui sert à former la goutte au bout d'un capillaire en U connecté à la sortie de la cellule. Le capillaire a un diamètre externe de 1.5 mm et un diamètre interne de 1.2 mm. L'extrémité du capillaire est immergée dans la phase externe contenue dans une cuvette en quartz.

Quand l'oscillation de la membrane piézoélectrique est activée, son déplacement est transmis à la phase dispersée contenue dans la cellule et dans le capillaire. La variation du volume de la cellule provoque ainsi des oscillations volumiques au sein de la goutte.

Un logiciel fourni avec le module ODM pilote la membrane piézoélectrique. Il permet de fixer la période des oscillations avec une précision de 10^{-3} s. Nous avons choisi une gamme de fréquences comprise entre 0.1 et 200 Hz. Le pas de fréquence est de 2 Hz environ pour les fréquences inférieures à 35 Hz. Pour les fréquences supérieures, le pas est imposé par la précision de la période, il augmente donc lorsqu'on atteint des fréquences de plus en plus élevées.

Le logiciel permet également de faire varier, pour une fréquence donnée, la consigne d'amplitude de déplacement de la membrane. Nous avons observé, lors des premiers essais, que l'amplitude de la variation de volume, proportionnelle à l'amplitude de déplacement de la membrane, dépendait de la fréquence imposée. Ce problème sera abordé dans le paragraphe 4.

3.2 Dispositif de capture d'images haute vitesse - Ombroscopie

Des images de la goutte oscillante sont prises à l'aide d'une caméra à haute fréquence d'acquisition.

Deux caméras numériques rapides, munies toutes les deux d'un capteur CMOS, ont été successivement mises à notre disposition lors des campagnes de mesure. La première, de type Photron RS 3000, permet de travailler à des vitesses d'acquisition allant jusqu'à 3000 images/s pour un format de 1024x1024 pixels. La fréquence d'acquisition maximale de la 2ème caméra, de type Photron APX est de 2000 images/s, pour un format de 1024x1024 pixels.

La vitesse d'acquisition est adaptée à la fréquence d'oscillation de la goutte. Elle est fixée de façon à obtenir un compromis entre un échantillonnage suffisant (10 images par période au moins) et un espace de stockage raisonnable. Elle varie entre 60 images/s et la vitesse maximale de la caméra.

Le temps d'exposition est aussi l'objet d'un compromis entre la netteté de l'image et sa luminosité (et par suite son contraste). Dans la plupart des cas, il est fixé à 1/3000s.

La résolution des images est de 1024x1024 pixels. La calibration (conversion pixel - mm) se fait à l'aide du diamètre externe du capillaire. L'absence de distorsion dans l'image, en particulier sur les bords, est vérifiée à l'aide d'une mire. La calibration par le capillaire a été validée en mesurant le volume de billes de diamètre connu, posées sur le capillaire.

L'optique est constituée, dans la plupart des cas, d'un objectif Micro Nikkor de Nikon (60mm f/2.8 D) et d'un tube d'extension de 60 mm afin d'obtenir un grandissement de 2.4. La taille d'un pixel sur le capteur étant de 17.10^{-3}mm, un pixel représente donc 7.10^{-3}mm sur l'objet.

La source lumineuse est un panneau de 15 cm par 15 cm comportant des diodes électroluminescentes sur les côtés. Cet éclairage présente l'avantage d'être spatialement homogène et quasi parallèle, ce qui assure une bonne détection du contour de la goutte même dans le cas de deux liquides transparents comme l'eau et l'heptane. L'alimentation électrique des LED se fait par courant continu, par suite l'intensité lumineuse est constante au cours du temps. Au cours d'un enregistrement, les images ont donc quasiment toutes la même luminosité, ce qui facilite leur traitement.

3.3 Mode opératoire

Avant le démarrage des mesures, la cellule, le capillaire et la cuve sont nettoyés à l'aide de solvants (acétone, heptane, toluène, éthanol), rincés à l'eau du robinet et à l'eau distillée, puis séchés à l'air comprimé. La cellule et la seringue d'alimentation sont ensuite remplies de phase dispersée et fixées sur l'appareil. La cuve est remplie d'eau distillée et posée sur le porte-échantillon. Le capillaire est fixé sur la cellule et plongé dans la cuve contenant la phase continue.

Ensuite, la caméra, munie de l'optique, est mise en place, en s'assurant que le chemin optique est normal aux faces avant et arrière de la cuve. Les paramètres de prise d'images (taille de l'image, vitesse d'acquisition et temps d'exposition) sont fixés. Un soin particulier est apporté à la mise au point, afin d'assurer une netteté maximale, dont dépend la précision de la détermination du contour. Notons que le temps consacré à la préparation du dispositif expérimental et à la mise au point occupe environ le tiers d'une journée de mesures. Après cette étape de préparation, nous pouvons mettre en route les séries d'oscillations. Chaque série correspond à une valeur de fréquence et une valeur d'amplitude, et par suite à un point de mesure.

Une série d'oscillations débute par la formation d'une goutte au bout du capillaire, à l'aide de la seringue d'alimentation. La taille de la goutte est déterminée approximativement à l'aide de curseurs sur l'image capturée par la caméra, et affichée en direct sur l'écran de contôle de l'ordinateur. Le critère de taille adopté est la hauteur du pôle de la goutte par rapport à l'extrémité du capillaire. La fréquence d'oscillation et l'amplitude de déplacement

de la membrane piézoélectrique sont alors définies et les oscillations sont ensuite déclenchées. Nous attendons un temps équivalent à 4 ou 5 périodes avant de commencer l'enregistrement des images, afin de nous assurer que les oscillations ont atteint le régime permanent. Le temps d'enregistrement correspond aussi à 4 ou 5 périodes d'oscillations. Enfin, les images capturées sont transférées de la mémoire de la caméra vers un disque dur de stockage. Ce transfert de données occupe plus de la moitié du temps consacré à une série d'oscillations.

La mesure de la tension interfaciale du système heptane/eau a révélé la présence de contaminants (*Figure 2.3*). Ces contaminants peuvent provenir par exemple des joints d'étanchéité ou de volumes morts au niveau de la cellule contenant la phase dispersée. Nous pouvons limiter l'impact de cette contamination en formant une nouvelle goutte avant chaque série d'oscillations, ce qui permet de renouveler l'interface. Cependant, nous sommes limités par une autre contrainte liée au volume de la seringue d'alimentation. Nous avons en effet évité le remplacement de la seringue d'alimentation au cours d'une journée de mesures afin de ne pas perturber les réglages optiques. En conséquence, une nouvelle goutte est formée environ toutes les 3 séries d'oscillations.

4 Observations

4.1 Goutte au repos

La forme de la goutte pendante au repos est régie par l'équilibre entre la gravité et la tension interfaciale (Figure 2.6). Elle est décrite par l'équation de Laplace-Young qui exprime la courbure en chaque point M de l'interface

$$C(M) = \frac{2}{R_0} - \frac{\Delta\rho g h}{\sigma}, \tag{2.17}$$

où C est la courbure de l'interface, Δρ la différence entre les masses volumiques des deux fluides, g l'accélération de la pesanteur, h la hauteur entre le point M et le point O et R_0 le rayon de courbure à l'apex (point O).

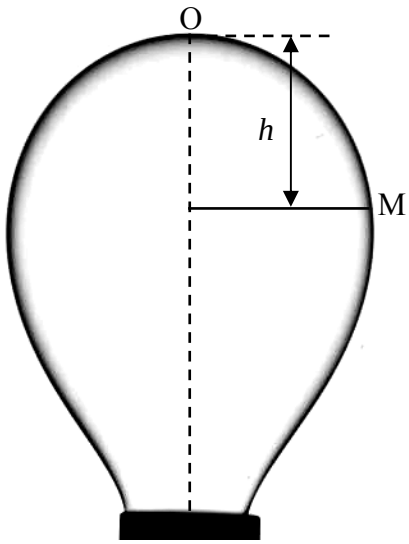

Figure 2.6 Goutte pendante (masse volumique de la phase interne inférieure à celle de la phase externe)

L'équation (2.17) peut être mise sous forme adimensionnelle en utilisant le rayon à l'apex R_0 comme échelle de longueur. Nous obtenons ainsi l'expression suivante

$$C^* = \frac{2}{R_0} - \frac{\Delta\rho g R_0^2}{\sigma} h^*, \tag{2.18}$$

avec $C^* = CR_0$ et $h^* = h/R_0$.

Nous constatons que la forme de la goutte, décrite par $C^*(h^*)$ ne dépend que du rapport $\frac{\Delta\rho g R_0^2}{\sigma}$ qui n'est autre que le nombre de Bond établi à l'aide du rayon à l'apex R_0.

4.2 Goutte oscillante

Une simple observation des images des séquences enregistrées (figure 2.6) permet, même à un œil non averti, de se rendre compte de la présence de déformations singulières de l'interface, qui interviennent plus particulièrement à certaines fréquences d'oscillation. La goutte n'a plus la forme caractéristique d'une goutte pendante et des ventres d'oscillations sont observés.

Quand la goutte oscille à basse fréquence (typiquement à des fréquences inférieures à 1 Hz), l'équation de Laplace-Young (2.17 et 2.18) reste vérifiée à chaque instant. On parle d'état quasi-statique. La forme de la goutte reste pratiquement inchangée au cours du temps (oscillations de faible amplitude) ; elle est plus ou moins allongée selon que son volume augmente ou diminue, comme le montre la Figure 2.7a.

A des fréquences plus élevées (Figure 2.7b-d), nous observons que la forme de la goutte s'éloigne de celle d'une goutte pendante au repos. La condition quasi-statique n'est plus vérifiée et l'équation de Laplace-Young ne permet plus de décrire l'interface à chaque instant. Nous constatons également que les formes que prend la goutte au maximum de sa déformation se rapprochent de celles correspondant aux modes propres d'une goutte non attachée, prédites par la théorie de Rayleigh-Lamb et présentées sur la figure 2.2. L'analyse quantitative des images confirmera ce constat.

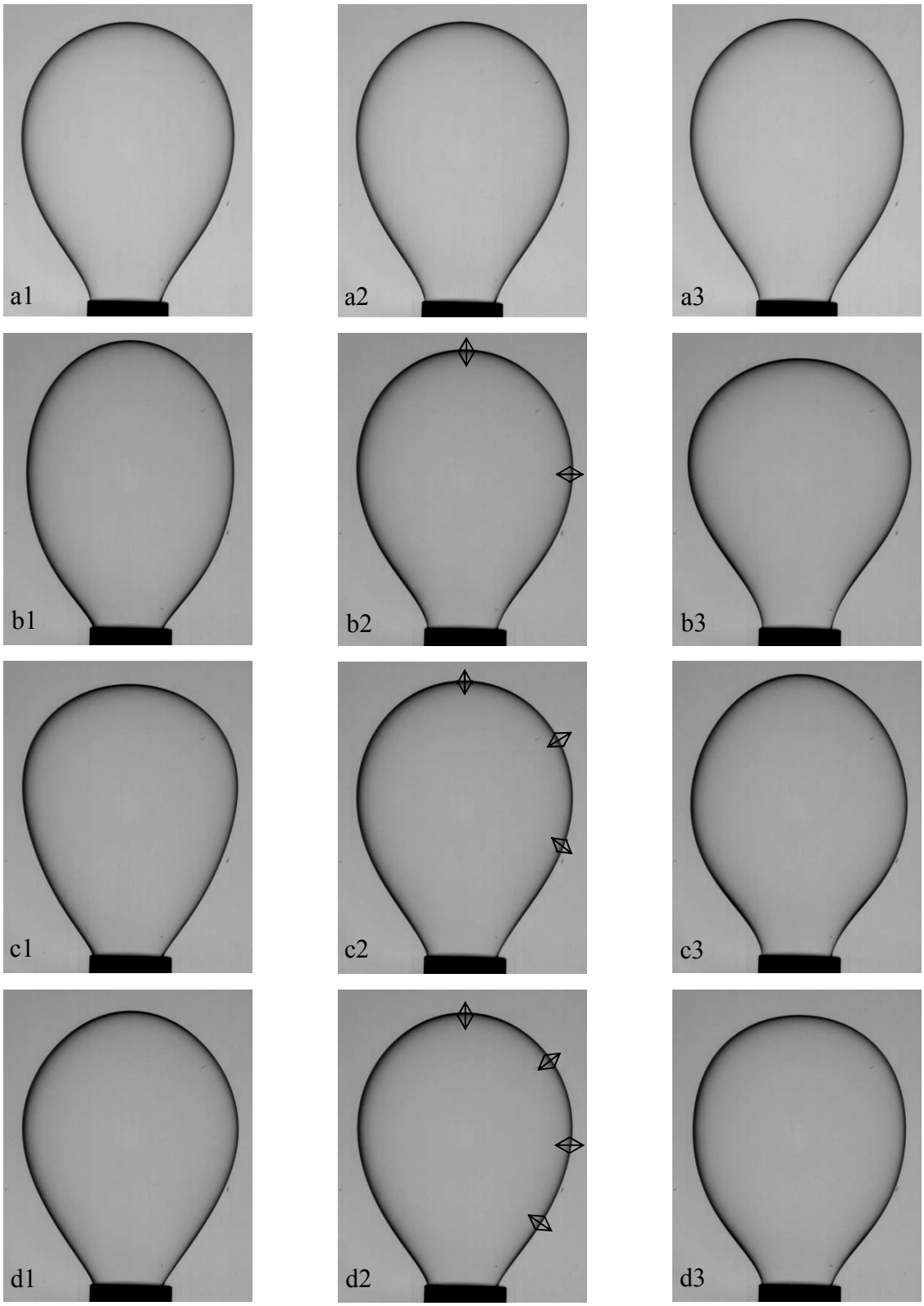

Figure 2.7 Oscillations de gouttes pendantes (heptane/eau). Diamètre équivalent 4.19 mm. Colonnes 1 et 3: forme aux maxima de déformation. Colonne 2: forme moyenne. Fréquence d'oscillation: ai: 1Hz, bi: 29Hz, ci: 50Hz, di: 77Hz.(Les flèches indiquent approximativement la position des ventres d'oscillation).

5 Traitement des images et des signaux

5.1 Traitement des images

Un code de traitement d'images est développé à l'aide du logiciel de calcul Matlab. Une image de dimensions 1024x1024 pixels est représentée par une matrice de mêmes dimensions. A chaque pixel (i,j) de l'image est associé un élément de matrice A_{ij} dont la valeur correspond au niveau de gris du pixel. Le niveau de gris est compris entre 0 et 255 pour une image codée en 8 bits. Un pixel noir a pour niveau 0 tandis qu'un pixel blanc a pour niveau 255.

5.1.1 Détection du contour

La détection du contour de la goutte débute par une binarisation de l'image. Un seuil de niveau de gris permet de discriminer les pixels proches de l'interface, auxquels nous assignons la valeur 1 (représentés en blanc sur la Figure 2.8.b) de ceux appartenant au fond de l'image ou à l'intérieur de la goutte (représentés en noir). Une zone d'intérêt est ensuite définie, regroupant la région des pixels blancs et la zone qui y est incluse, soit les pixels correspondant à l'ensemble de la goutte et au capillaire. Les coordonnées des points frontaliers de cette zone (*Figure 2.8*c, ligne rouge) dans le repère de l'image (unité=1 pixel) sont déterminées. Ainsi, à chaque image est associé un tableau de coordonnées des points de l'interface – plus précisément de la projection de cette dernière, que nous désignerons par le mot contour. La précision avec laquelle sont déterminées les coordonnées des points du contour est de 1 pixel, et dépend donc de la résolution spatiale de l'image. Cependant, un algorithme permet d'améliorer cette précision en repositionnant le point du contour à l'endroit où le gradient des niveaux de gris est maximal. Cette correction augmente la qualité de la détection et s'avère très utile lors de l'observation d'oscillations de faible amplitude. Enfin, les coordonnées du profil sont converties en mm (calibration à l'aide du capillaire).

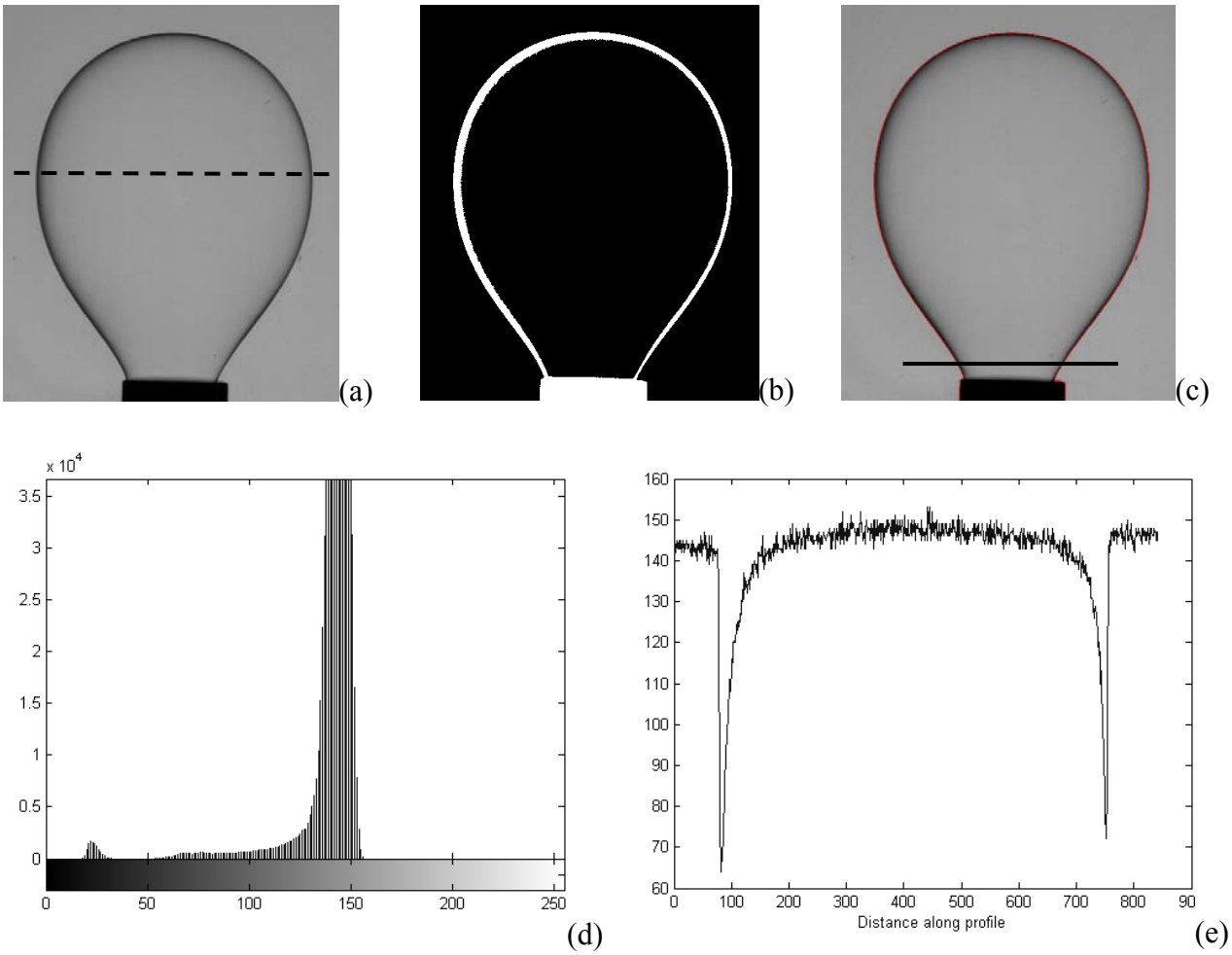

Figure 2.8 Traitement d'image, binarisation. (a) image en niveau de gris, (b): image binarisée, (c): interface détectée reportée (ligne rouge) sur l'image. La ligne horizontale (Figure 2.8c) sépare les points du contour considérés dans l'analyse de forme (au dessus), de ceux qui seront éliminés (situés en dessous). (d): histogramme des niveaux de gris de l'image, le seuil de binarisation doit être compris entre les deux pics. (e): niveaux de gris le long de la ligne discontinue (Figure 2.8a). Le seuil correspond au gradient maximal de niveau de gris, fixé dans ce cas à 130.

5.1.2 Analyse de forme

- **Equation de l'interface, mesure du volume et de l'aire interfaciale.**

Nous avons tout d'abord vérifié que la goutte au repos était axisymétrique, l'axe de symétrie étant celui du capillaire. Au cours des oscillations, les images montrent que le profil de la goutte est également symétrique par rapport à l'axe du capillaire. Nous en déduisons que la goutte reste axisymétrique au cours des oscillations. L'analyse de la forme de la goutte est réalisée à l'aide du tableau de coordonnées des points du contour. Les points appartenant au

capillaire ainsi qu'une partie de la zone de raccord avec la goutte ne sont pas pris en compte dans le traitement, la limite entre les points éliminés et ceux pris en compte dans l'analyse est représentée sur la Figure 2.8c).

Les coordonnées des points de l'interface sont définies dans un repère sphérique ayant pour origine le centre de masse de la goutte (*Figure 2.9*).

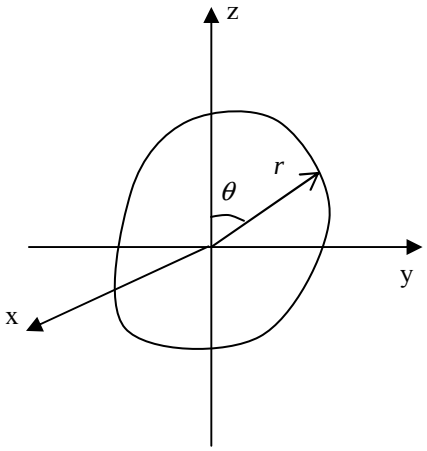

Figure 2.9. Système de coordonnées polaire.

Chaque point du contour est donc représenté par un couple (θ, *r*). Le contour est ensuite interpolé par un polynôme de degré 10 en $\cos\theta$:

$$r = \sum_{i=0}^{10} k_i \cos^i \theta \,. \tag{2.19}$$

A partir du contour lissé par l'ajustement de polynôme, nous mesurons, par intégration, le volume de la goutte ainsi que l'aire de l'interface.

- **Décomposition en harmoniques sphériques.**

Dans l'équation (2.19), $r(\cos\theta)$ est un polynôme en $\cos\theta$ exprimé à l'aide de la base des puissances de $\cos\theta$. L'équation (2.19) est alors écrite sous une autre forme, en exprimant *r* dans la base des harmoniques sphériques Y_n^0, introduites à l'aide des équations (2.3) à (2.5). Ainsi, à l'instant *t*, l'équation de l'interface $r(\theta,t)$ s'écrit suivant:

$$r = a\left(1 + \sum_{n=0}^{10} A_n(t) \cdot Y_n^0(\theta)\right) \tag{2.20}$$

où *r* est le rayon local (position de l'interface dans le repère sphérique), *a* le rayon moyen de la sphère équivalente, Y_n^0 l'harmonique sphérique axisymétrique d'ordre *n* et A_n

l'amplitude de l'harmonique Y_n^0, normée par le rayon moyen a. A chaque instant, la forme de la goutte est donc représentée par un vecteur à 11 composantes A_n ($0 \le n \le 10$) (défini dans une base de 11 harmoniques sphériques). Chacune des composantes A_n est l'amplitude associée à l'harmonique sphérique Y_n^0.

Il est important de remarquer que dans le cas d'une goutte oscillant autour d'une forme moyenne sphérique et à volume constant, les calculs théoriques (Rayleigh-Lamb) ne font pas apparaître les harmoniques Y_0^0 et Y_1^0, le premier mode d'oscillation (mode 2) étant associé à l'harmonique sphérique Y_2^0. En effet, $\forall \theta$, $Y_0^0(\theta) = 1$. L'amplitude A_0 correspond alors à la variation du rayon de la sphère équivalente, elle a pour rôle d'assurer la conservation du volume dans le cas d'oscillations à volume constant. Dans notre cas, A_0 est proportionnelle à la variation de volume imposée. D'autre part, $Y_1^0 = \cos(\theta)$ est la seule harmonique qui prend en considération la translation de la goutte. Pour chaque image traitée, nous choisirons le centre de la goutte (et du système de coordonnées polaires) de façon à annuler l'harmonique Y_1^0.

5.2 Analyse des signaux temporels

L'analyse de la forme étant effectuée à chaque instant (image par image), nous pouvons représenter l'évolution temporelle des grandeurs mesurées. Ainsi, sont tracés en fonction du temps, la position du centre de masse, le volume et les amplitudes des harmoniques sphériques (resp. $z_{CM}(t)$, $V(t)$ et $A_n(t)$).

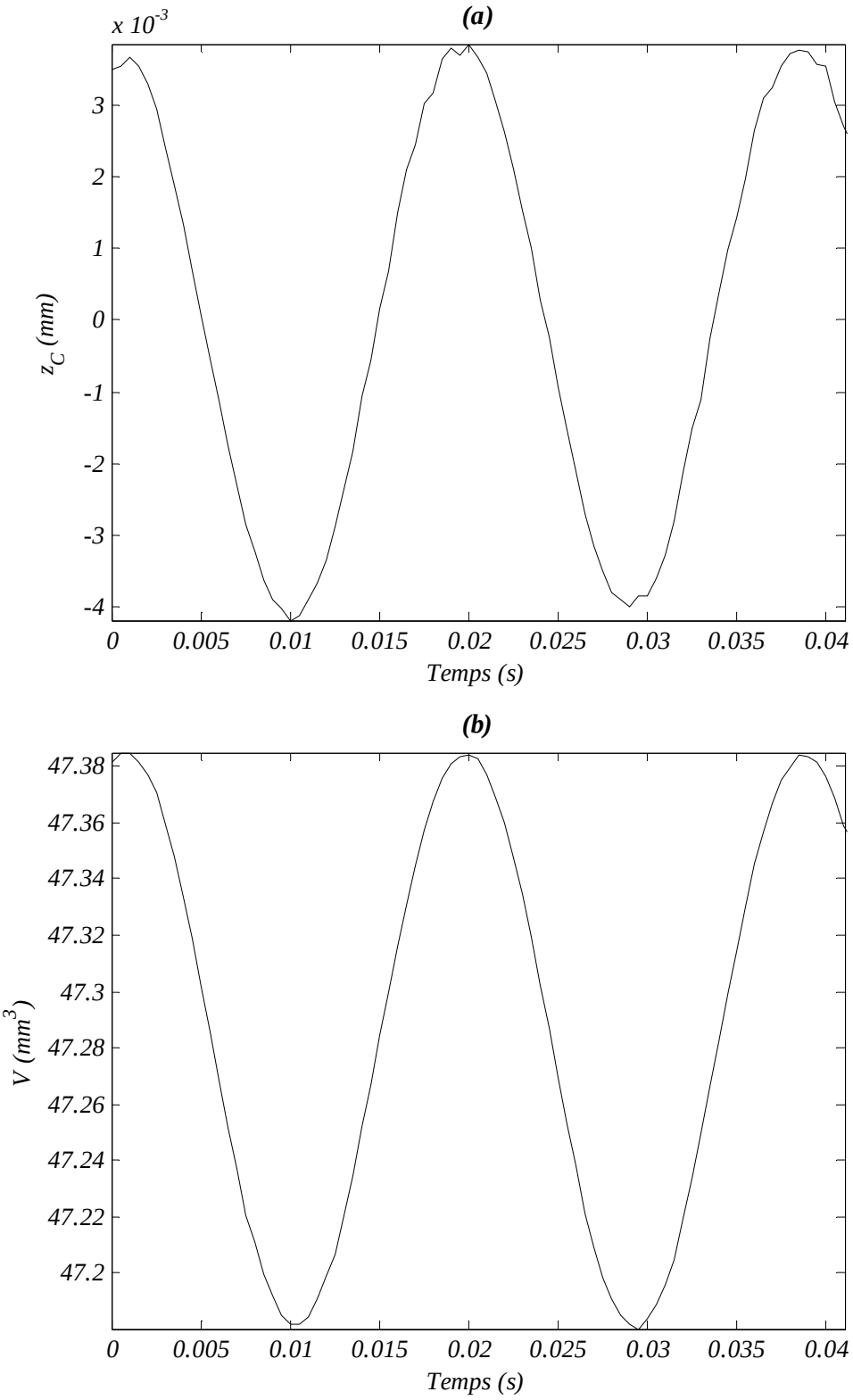

Figure 2.10. Evolution temporelle de la position du centre de masse (a) et du volume (b) d'une goutte de 4.475mm de diamètre oscillant à une fréquence de 52.6Hz.

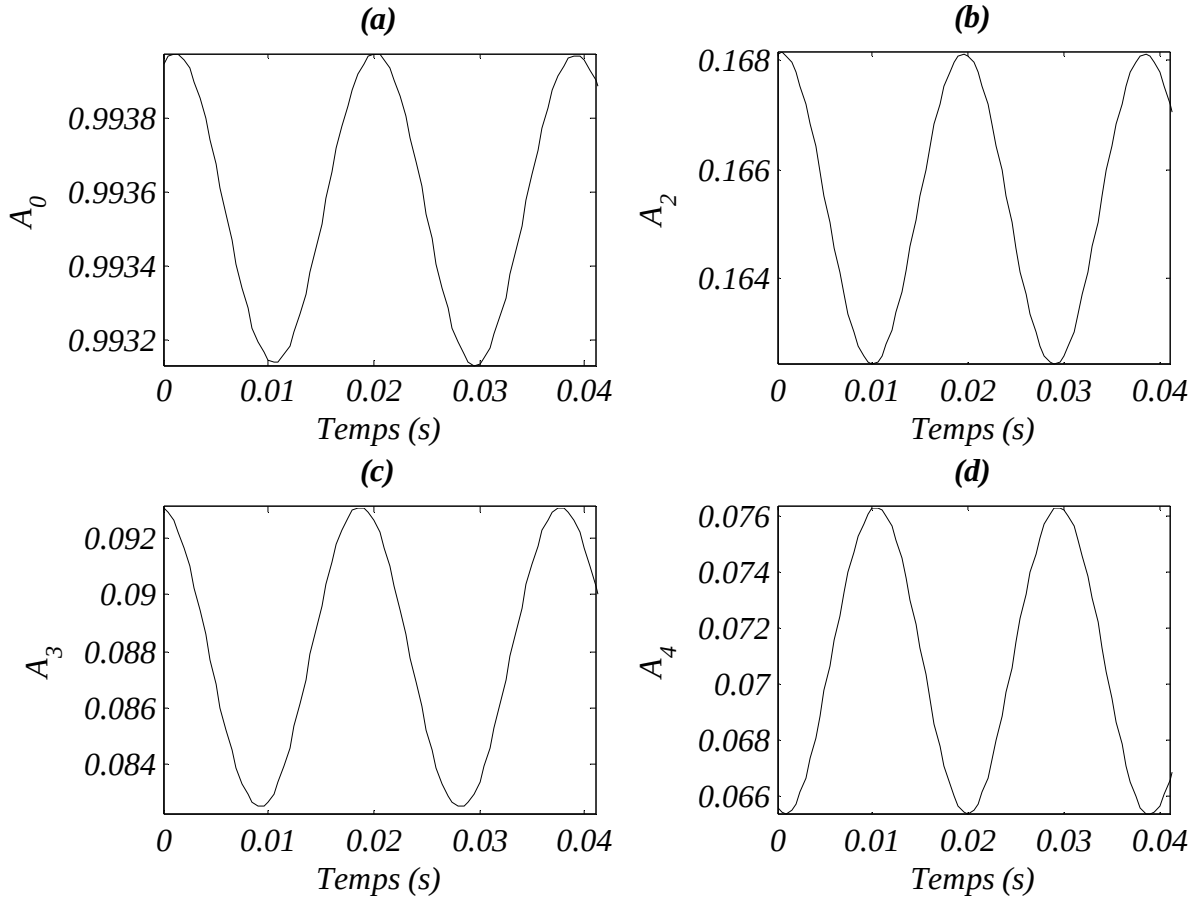

Figure 2.11. Evolution temporelle des amplitudes des harmoniques sphérique d'ordre 0 (a), 2 (b), 3 (c) et 4 (d) pour une goutte de 4.475 mm de diamètre oscillant à une fréquence de 52.6 Hz.

Les signaux obtenus sont quasiment sinusoïdaux, il est donc possible des les décrire par une fréquence, mesurée à l'aide d'une fonction d'autocorrélation, et une amplitude. Le déphasage entre les signaux est déterminé à l'aide d'une fonction de corrélation croisée, en prenant le signal du volume comme référence.

Les évolutions temporelles de l'ordonnée du centre de la goutte, de son volume, ainsi que des amplitudes des harmoniques sphériques s'écrivent, respectivement

$$z_C(t) = \widetilde{z}_C \sin(\omega t + \varphi_C), \tag{2.21}$$

$$V(t) = V_0[1 + \widetilde{V} \sin(\omega t + \varphi_V)], \tag{2.22}$$

$$A_n(t) = A_{n,0} + \widetilde{A}_n \sin(\omega t + \varphi_n), \tag{2.23}$$

où V_0, $A_{n,0}$ sont les valeurs moyennes des signaux correspondants, $\tilde{z}_{CM}$, $\tilde{V}$ et $\tilde{A}_n$ les amplitudes des parties oscillantes, ω la pulsation imposée et φ la phase à t = 0. Il est important de noter la différence entre l'équation (2.6) où chaque mode oscille avec sa pulsation propre ω_n, et l'équation (2.23) caractéristique des oscillations forcées, où tous les modes oscillent à la fréquence du forçage ω.

Rappelons également que la théorie de Raleigh-Lamb est fondée sur le fait que les oscillations de la goutte ont lieu autour d'une forme moyenne sphérique. Cela se traduit par le fait que les signaux $A_n(t)$ ont une moyenne nulle ($A_n^0 = 0$), ce qui n'est pas le cas comme le montre la figure 2.10. En effet, même au repos, la goutte ne peut être sphérique du fait de la gravité et de son attachement au capillaire. Les parties oscillantes des signaux, $\Delta V/V = \tilde{V}\sin(\omega t + \varphi_V)$ et $\Delta A_n = \tilde{A}_n \sin(\omega t + \varphi_n)$ sont représentées sur la figure 2.11.

A chaque fréquence imposée correspond un ensemble de signaux (principalement $V(t)$, et $A_n(t)$). De chaque signal sont extraits l'amplitude ($\tilde{V}$, $\tilde{A}_n$), ainsi que le déphasage temporel par rapport au signal du volume ($\Delta\varphi_n = \varphi_n - \varphi_V$). Les amplitudes et les phases ($\tilde{V}(\omega)$, $\tilde{A}_n(\omega)$, $\Delta\varphi_n(\omega)$) sont ensuite tracées en fonction de la fréquence d'oscillation (ou de la pulsation ω).

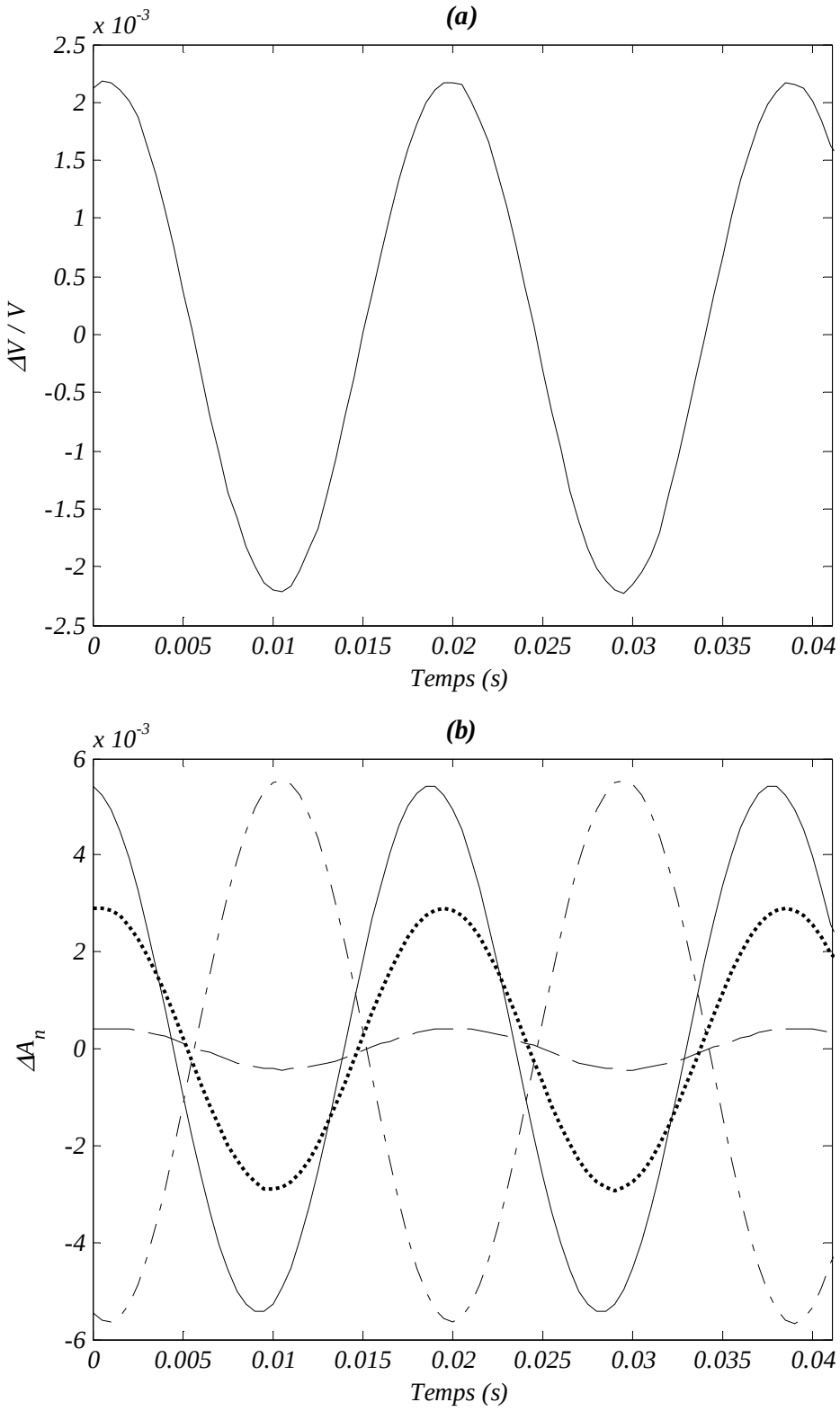

Figure 2.12. Variation relative du volume (a) et partie oscillante des amplitudes des harmoniques sphériques (b), d'ordre 0 (− − −), 2 (····), 3 (—) et 4 (−·−·−·). Goutte de 4.475mm de diamètre oscillant à une fréquence de 52.6 Hz.

6 Etude de la linéarité, Incertitude des mesures

Comme nous l'avons mentionné dans le paragraphe 2.1, la membrane piézoélectrique est pilotée par un logiciel qui permet de fixer la période d'oscillation et l'amplitude de déplacement de la membrane. Cette dernière est réglée à l'aide d'une échelle relative, bornée entre 0 et 1, qui correspond à une fraction de l'amplitude maximale. Il est donc indispensable de connaître, pour chaque valeur de la fréquence, la valeur absolue de l'amplitude de déplacement de la membrane, ou l'amplitude de la variation de volume qui lui est proportionnelle. La Figure 2.13 présente l'amplitude $\tilde{V}$, normée par la consigne d'amplitude de la membrane A_{piezo}, tracée en fonction de la fréquence d'oscillation imposée, pour les gouttes de diamètre 4.19 mm, et 4.475 mm. L'allure de la courbe est celle d'une courbe de résonance, la fréquence de résonance de la membrane est égale à 8 Hz.

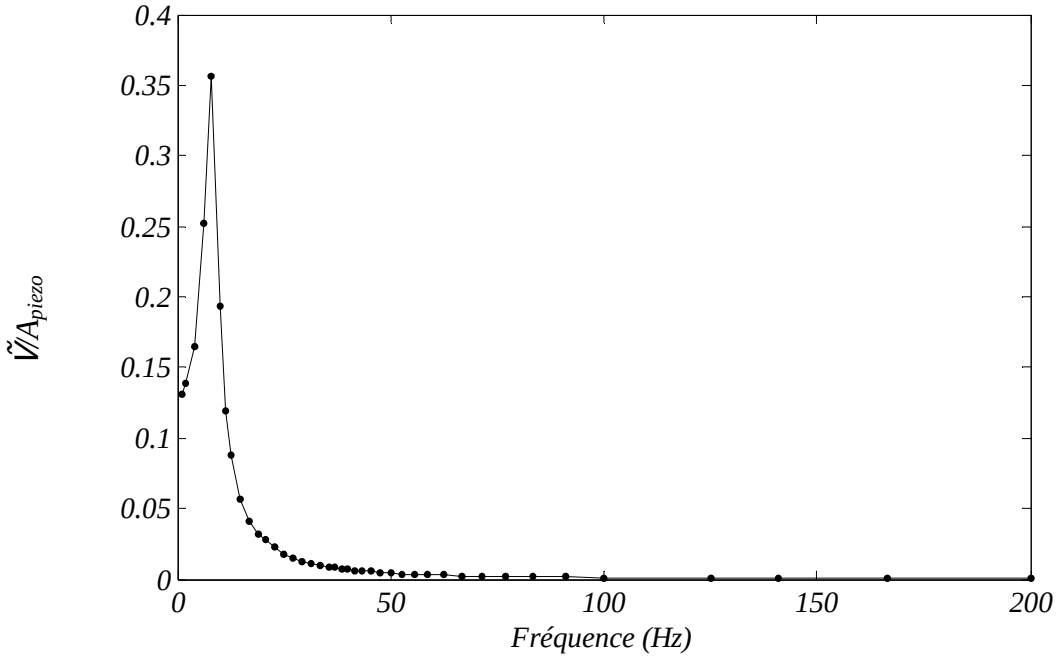

Figure 2.13. Courbe de résonance de la membrane piézoélectrique; cas d'une goutte de 4.19 mm de diamètre

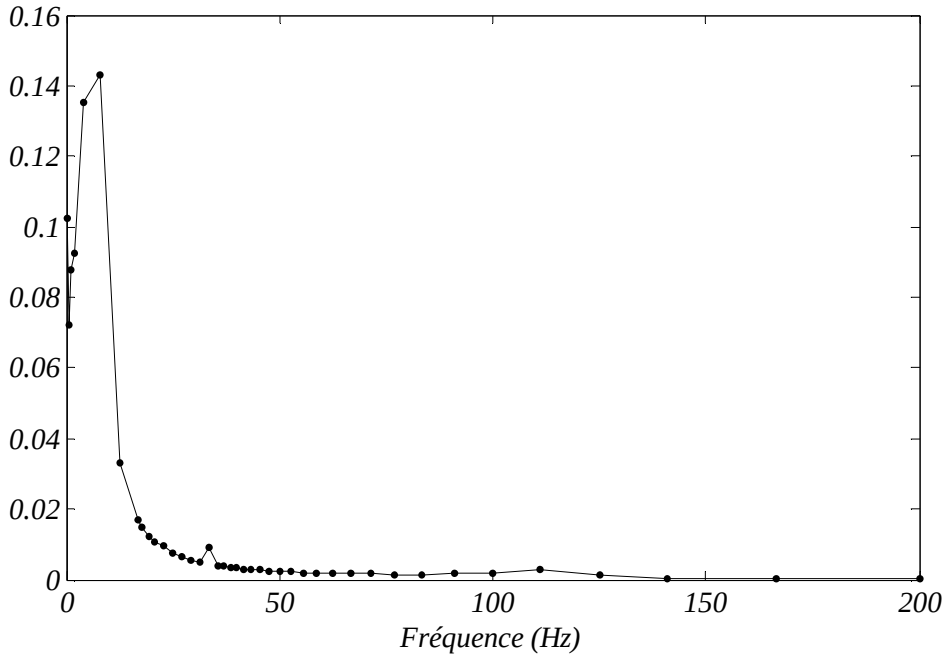

Figure 2.14. Courbe de résonance de la membrane piézoélectrique; cas d'une goutte de 4.475 mm de diamètre

L'amplitude $\widetilde{V}$ dépend donc de la fréquence imposée. Or il est impossible de comparer les déformations et de représenter leur amplitude en fonction de la fréquence, si l'amplitude de la variation de volume, qui représente le forçage, n'est pas constante. Une solution possible consiste alors à modéliser la courbe de résonance de la membrane, et à définir ensuite la consigne d'amplitude qu'il faut imposer pour chaque valeur de la fréquence, afin que l'amplitude $\widetilde{V}$ soit maintenue constante. Cette solution a été rejetée car nous avons constaté que la réponse de la membrane n'était pas parfaitement reproductible. Nous avons toutefois diminué, d'une façon arbitraire mais progressive, la consigne d'amplitude de la membrane, au fur et à mesure que la fréquence imposée se rapprochait de la résonance de la membrane.

Une alternative consiste à normer les amplitudes des harmoniques sphériques par l'amplitude $\widetilde{V}$ pour chaque valeur de la fréquence. Cependant cela n'est possible que si les amplitudes des harmoniques sphériques sont linéaires par rapport à l'amplitude $\widetilde{V}$.

Afin de vérifier cette condition, nous avons fait varier la consigne d'amplitude de la membrane à des fréquences données, en particulier les fréquences de résonance. Les amplitudes des harmoniques sphériques A_n sont ensuite tracées en fonction de l'amplitude de variation de volume $\widetilde{V}$.

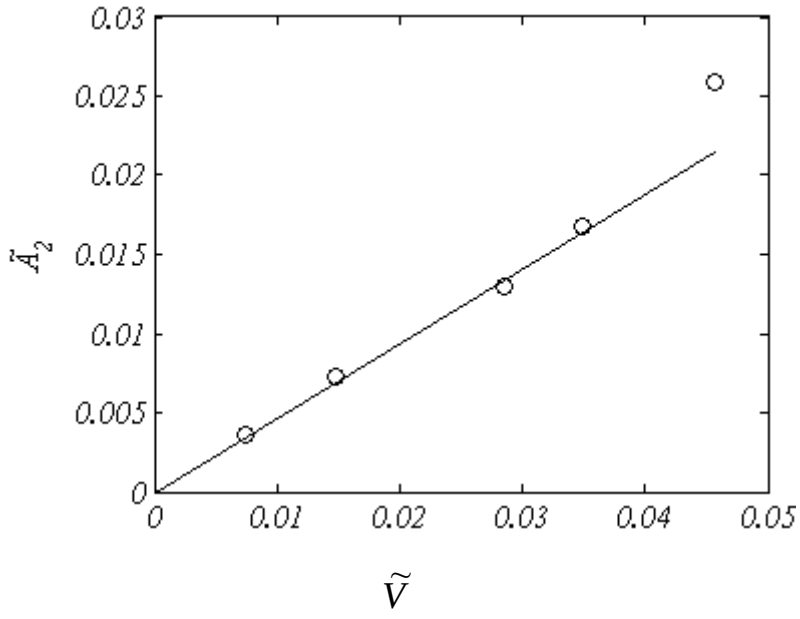

Figure 2.15 Goutte de 4.19 mm de diamètre. Balayage en amplitude pour une fréquence de 8Hz (résonance de la membrane)

Comme le montre la *Figure 2.15*, la condition de linéarité est vérifiée lorsque l'amplitude de variation de volume $\tilde{V} \leq 3.5\%$, pour une fréquence de 8 Hz (fréquence de résonance de la membrane). Dans le cas des autres fréquences, cette condition reste vraie pour la plage d'amplitudes accessible (Figure 2.16.à Figure 2.20).

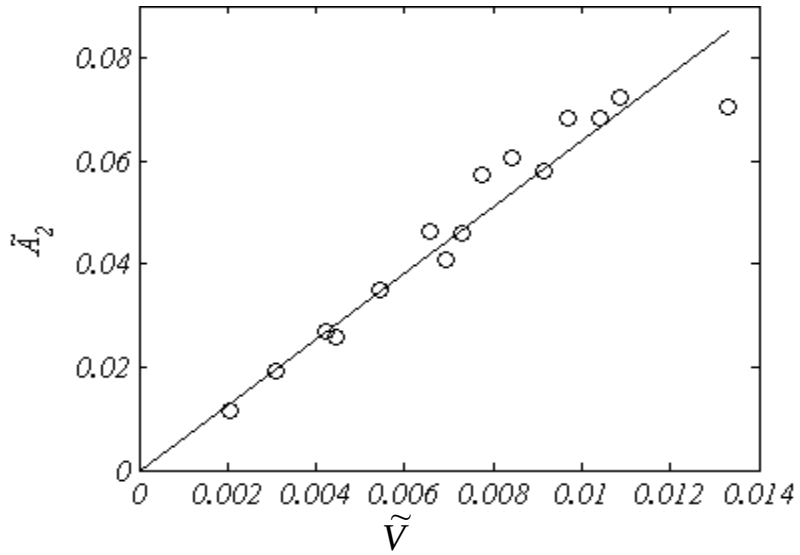

Figure 2.16 Goutte de 4.19 mm de diamètre. Balayage en amplitude pour une fréquence de 30 Hz (proche de la résonance du mode 2)

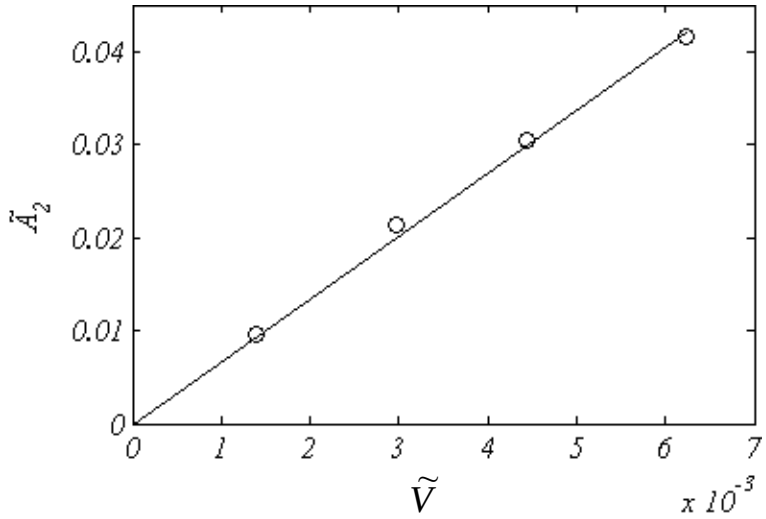

Figure 2.17 Goutte de 4.475 mm de diamètre Balayage en amplitude pour une fréquence de 25 Hz (proche de la résonance du mode 2)

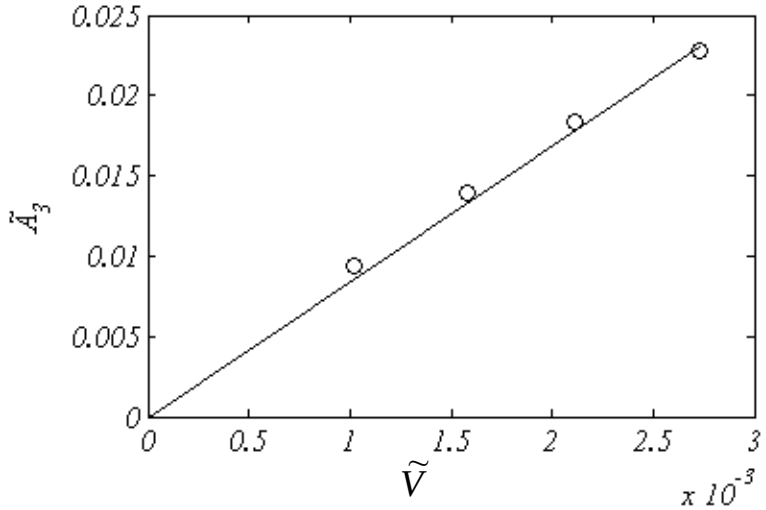

Figure2.18 Goutte de 4.475 mm de diamètre Balayage en amplitude pour une fréquence de 45.5 Hz (proche de la résonance du mode 3)

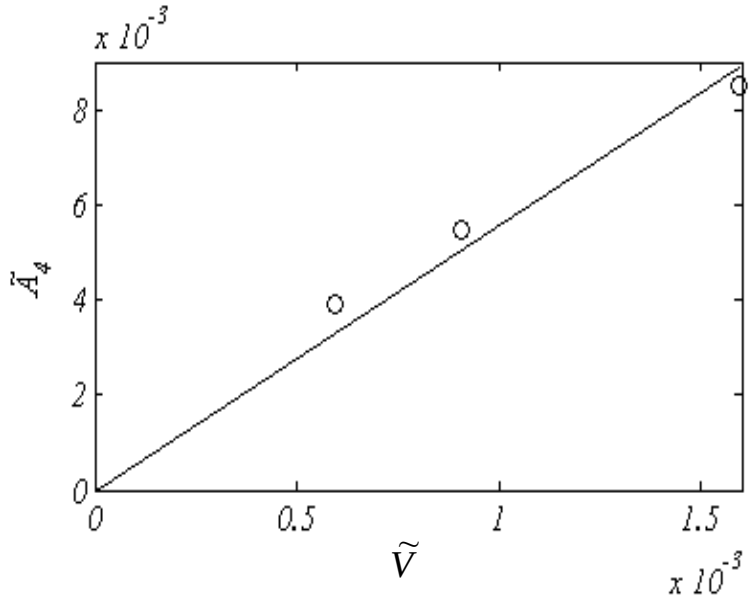

Figure 2.19 Goutte de 4.475 mm de diamètre Balayage en amplitude pour une fréquence de 71 Hz (proche de la résonance du mode 4)

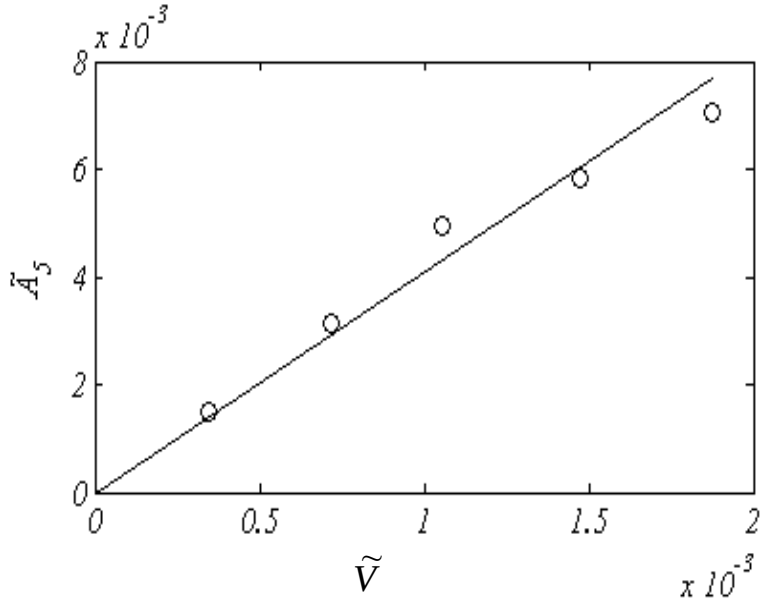

Figure 2.20 Goutte de 4.475 mm de diamètre Balayage en amplitude pour une fréquence de 100 Hz (proche de la résonance du mode 5)

Si nous normalisons $\tilde{A}_n$ par $\tilde{V}$, nous obtenons, pour chacune des fréquences considérées ci-dessus, au moins 3 points de mesure équivalents $\tilde{A}_n/\tilde{V}$. Nous pouvons alors déterminer l'incertitude de l'amplitude normalisée $\frac{\Delta(\tilde{A}_n/\tilde{V})}{\tilde{A}_n/\tilde{V}}$, définie comme le rapport entre l'écart-type et la moyenne des valeurs de $\tilde{A}_n/\tilde{V}$, pour différentes valeurs de la fréquence d'oscillation. Ces valeurs sont reportées dans les tableaux 2 et 3, pour les gouttes de 4.19 et

4.475 mm de diamètre respectivement. Les valeurs élevées de l'incertitude sont dues principalement à la difficulté de contrôler le volume moyen de la goutte, celle-ci étant formée manuellement à l'aide d'une seringue. En effet, la réponse de l'interface aux sollicitations périodiques dépend de la taille de la goutte. Une automatisation de l'injection permettrait d'améliorer sensiblement la précision des mesures. Toutefois, dans la plupart des cas, cette erreur ne dépasse pas 10%, et se situe en moyenne autour de 5 %.

Tableau 2.2 Goutte de 4.19 mm de diamètre. Incertitude de mesure.

	$\frac{\Delta(\widetilde{A}_n/\widetilde{V})}{\widetilde{A}_n/\widetilde{V}}$			
n	8 Hz	12.5 Hz	20 Hz	30 Hz
2	2.7 %	13 %	5 %	7.9 %
3	5.9 %	10 %	2.4 %	5.5 %
4	4.8 %	1.6 %	3.4 %	8.2 %
5	4.9 %.	4.3 %	7.2 %	5.6 %

Tableau 2.3 Goutte de 4.475 mm de diamètre. Incertitude de mesure.

	$\frac{\Delta(\widetilde{A}_n/\widetilde{V})}{\widetilde{A}_n/\widetilde{V}}$			
n	25 Hz	45.5 Hz	71 Hz	100 Hz
2	2.6 %	1.5 %	7.6 %	5.4 %
3	3.2 %	3.5 %	4.9 %	5.5 %
4	2 %	3 .2 %	8.5 %	3.4 %
5	4 %	9 %	2.8 %	7.8 %

7 Réponses en fréquence.

7.1 Des harmoniques sphériques aux modes propres

Deux diamètres de gouttes ont été considérés au cours de cette étude: 4.47 et 4.19 mm. Les gouttes formées au bout du capillaire sont soumises à des variations sinusoïdales en volume, à des fréquences comprises entre 0.1 et 140Hz. Pour chaque valeur de la fréquence imposée, les amplitudes de la variation de volume $\widetilde{V}$ et des harmoniques sphériques $\widetilde{A}_n$ ($2 \le n \le 5$) sont extraites des signaux correspondants (Figure 2.12). Les amplitudes des autres harmoniques sphériques sont faibles dans la plage de fréquence considérée et n'ont pas été représentées.

Les amplitudes mesurées $\tilde{A}_n$ sont tracées en fonction de la fréquence imposée (*Figure 2.22* et *Figure.2.25*). L'amplitude volumique $\widetilde{V}$ n'étant pas constante (*Figure 2.21* et *Figure 2.24*), nous normalisons les amplitudes $\tilde{A}_n$ par $\widetilde{V}$. Les amplitudes $\widetilde{A}_n^* = \widetilde{A}_n / \widetilde{V}$ sont représentées en fonction de la fréquence imposée sur la *Figure 2.23* pour la goutte de 4.475mm de diamètre et sur la figure *Figure.2.26* pour la goutte de 4.19 mm de diamètre.

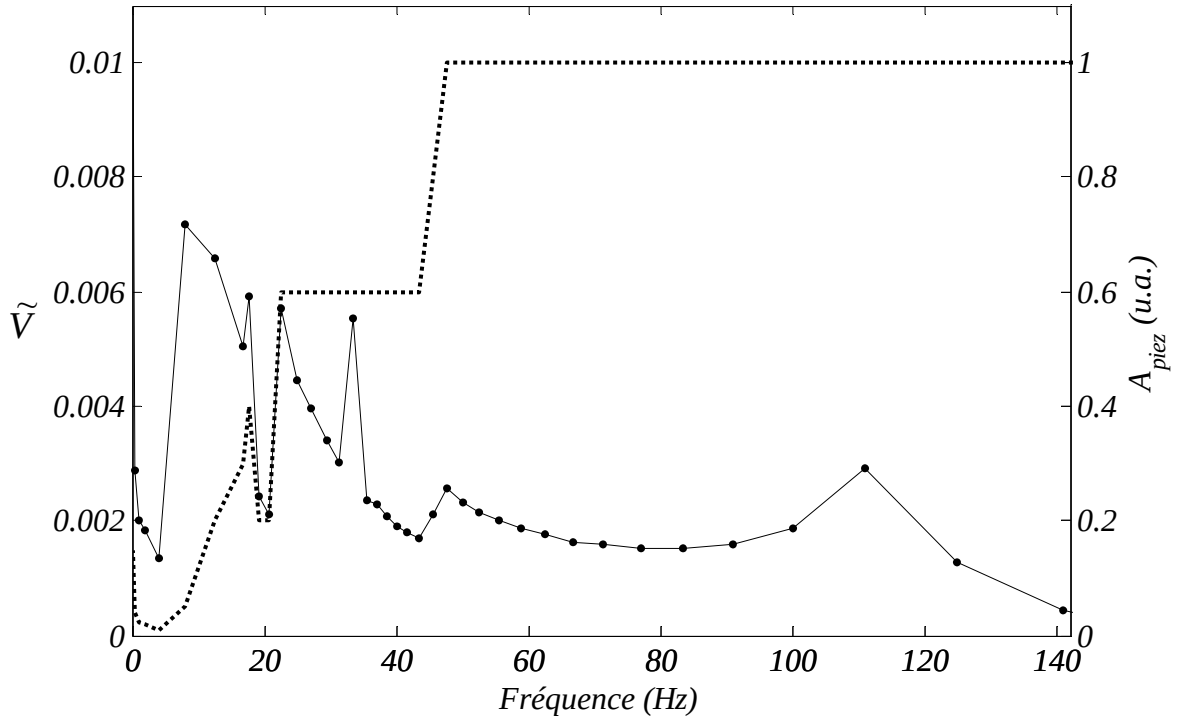

Figure 2.21 Consigne d'amplitude de la membrane piézoélectrique (..) et amplitude de la variation de volume $\widetilde{V}$ (—) correspondante en fonction de la fréquence imposée. d=4.475mm.

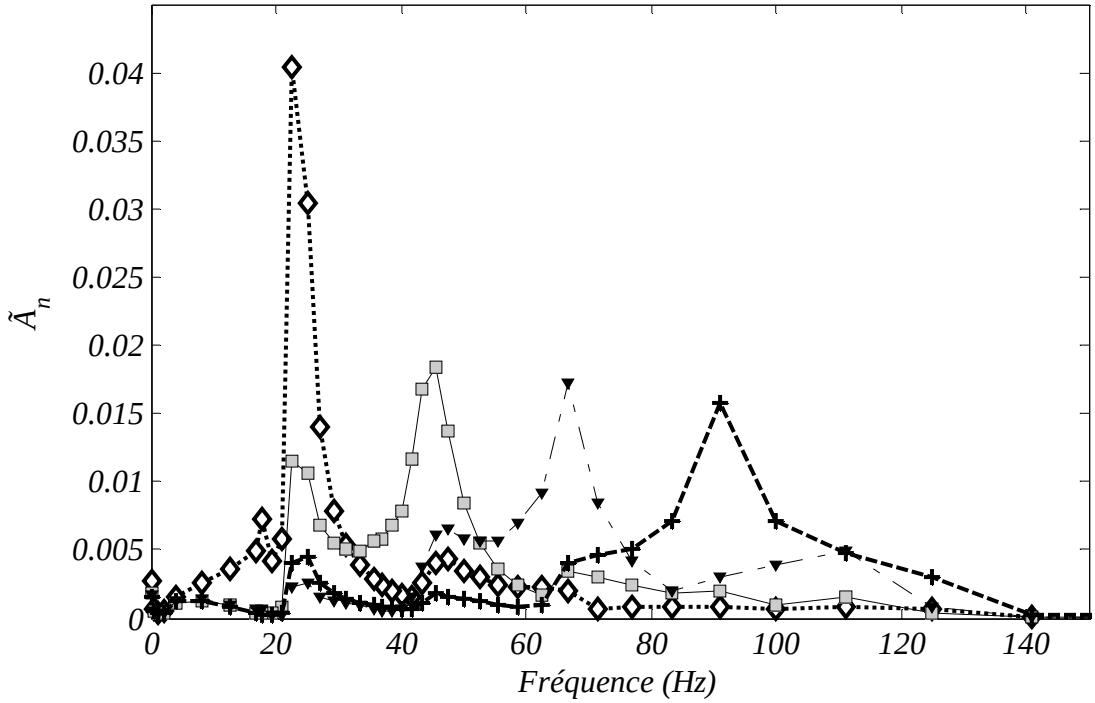

Figure 2.22. Amplitudes des harmoniques sphériques $\tilde{A}_n$ en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■), n=4 (▼) et n=5 (+) .d=4.475mm.

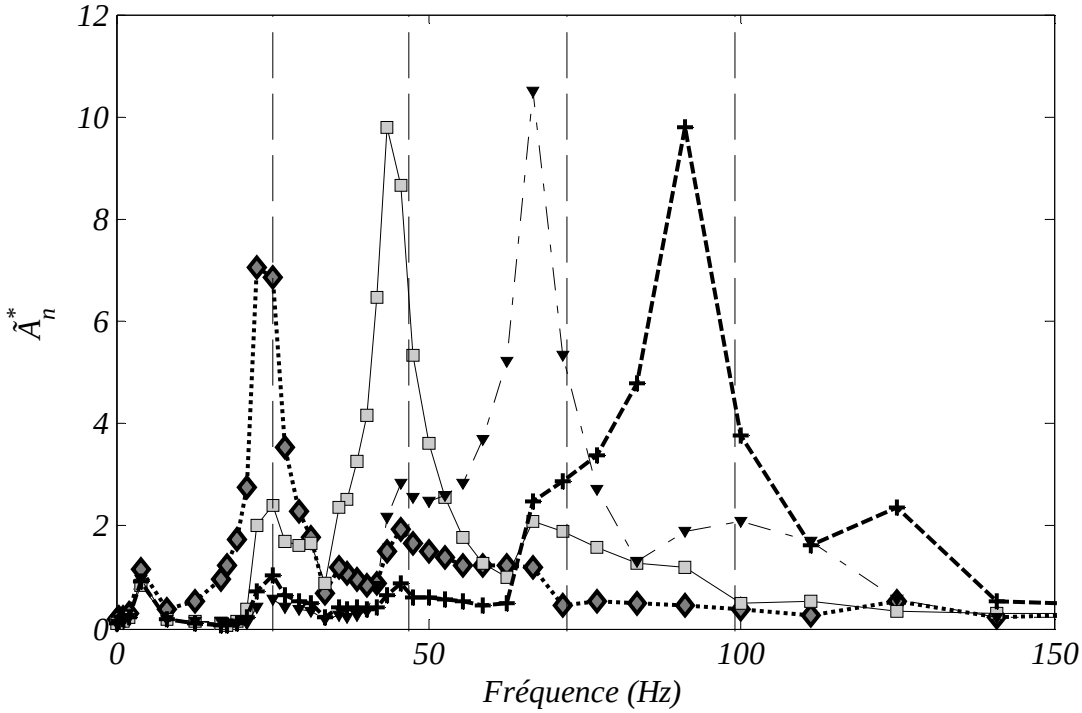

Figure 2.23 Amplitude normée des harmoniques sphériques ($\tilde{A}_n^* = \tilde{A}_n / \tilde{V}$) en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■), n=4 (▼) et n=5 (+). Les lignes verticales correspondent aux fréquences propres théoriques. d=4.475mm.

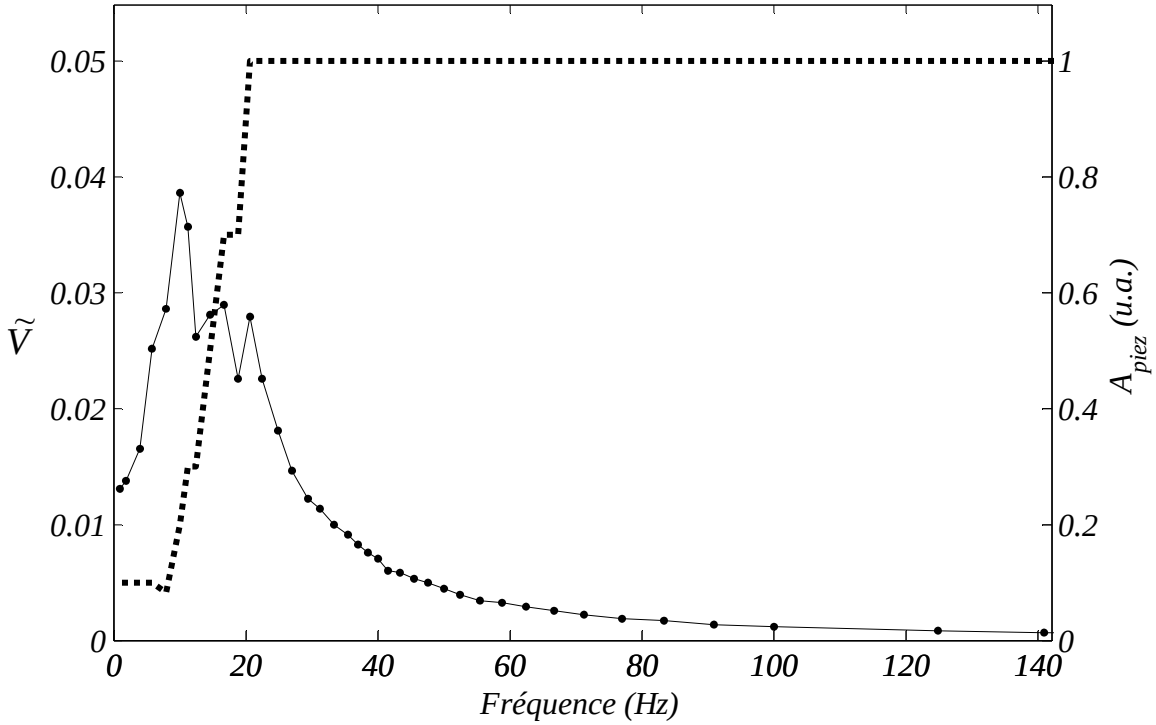

Figure 2.24 Consigne d'amplitude de la membrane piézoélectrique (..) et amplitude de la variation de volume $\tilde{V}$ correspondante (—) en fonction de la fréquence imposée. d=4.19mm.

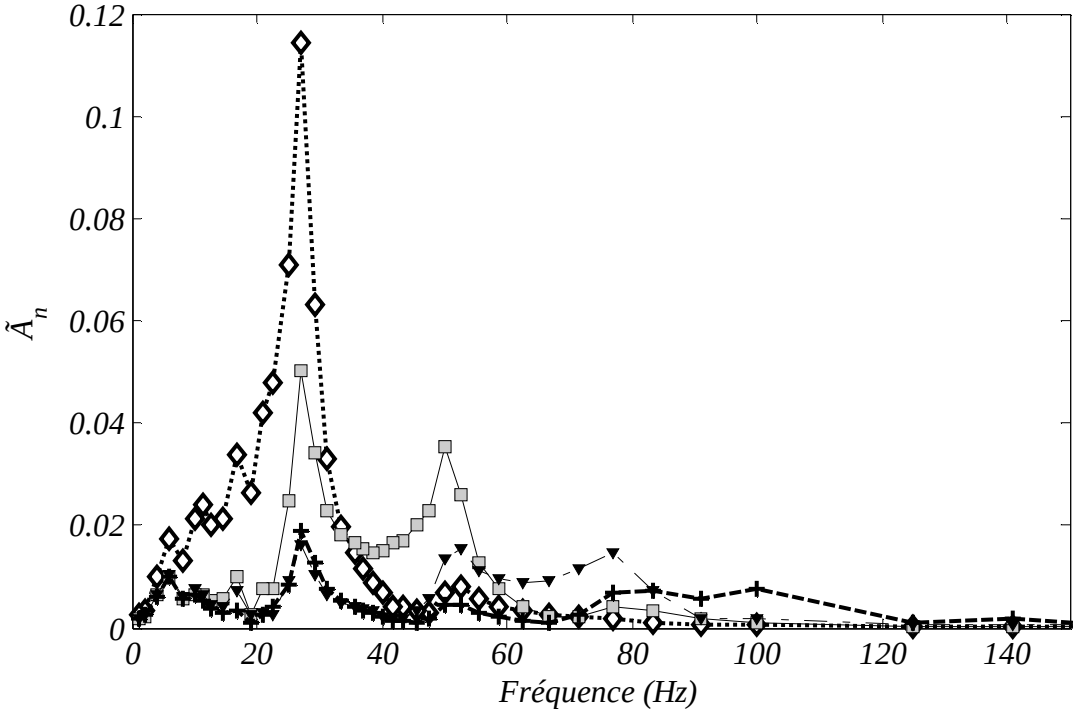

Figure.2.25 Amplitude des harmoniques sphériques $\tilde{A}_n$ en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■), n=4 (▼) et n=5 (+). d=4.19mm.

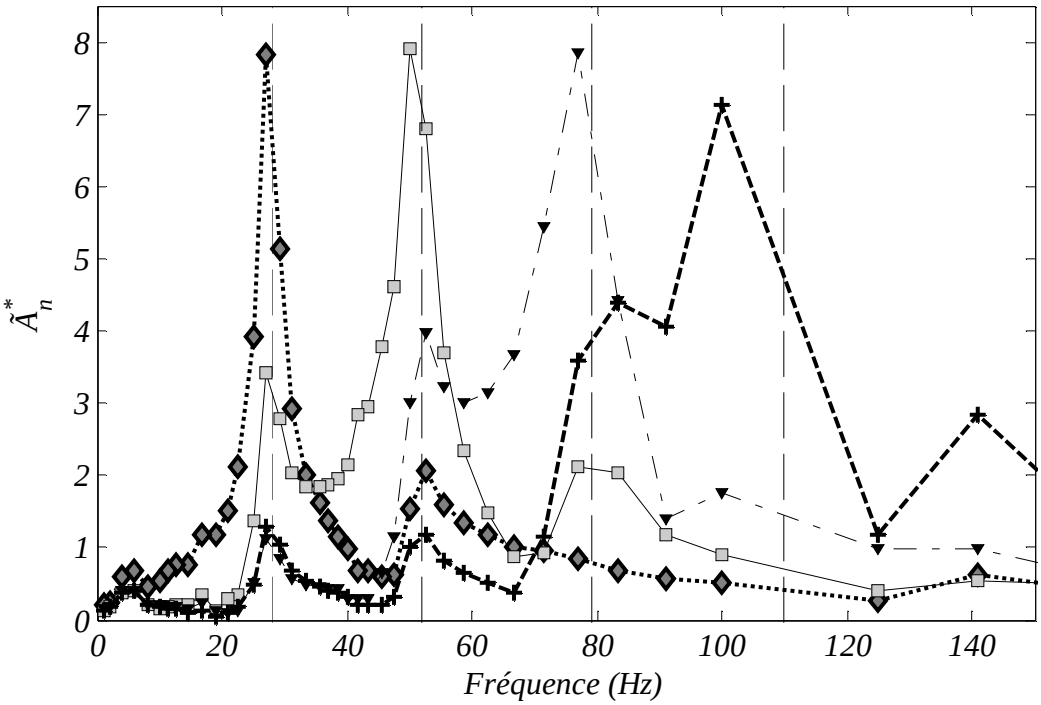

Figure.2.26 Amplitude normée des harmoniques sphériques ($\tilde{A}_n^* = \tilde{A}_n / \tilde{V}$) en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■), n=4 (▼) et n=5 (+). Les lignes verticales correspondent aux fréquences propres théoriques des modes 2, 3, 4 et 5, dans l'ordre croissant des fréquences. d=4.19mm

Une première observation du spectre permet de distinguer 4 fréquences de résonance, que nous noterons f_n ($2 \le n \le 5$) et qui correspondent aux maxima des amplitudes $\tilde{A}_n$. Ces 4 pics représentent les 4 premiers modes d'oscillation du système. A chacun de ces 4 modes propres, nous pouvons associer une harmonique sphérique Y_n^0 et une amplitude $\tilde{A}_n$. Prenons par exemple la résonance du premier mode, l'interface y est principalement décrite à l'aide de l'harmonique Y_2^0. Ce premier mode sera donc appelé mode 2. Les fréquences de résonance sont très proches de celles prédites par la théorie potentielle dans le cas d'une sphère libre (Rayleigh-Lamb) pour les modes 2, 3, 4 et 5.

Cependant, à la résonance du mode *n*, les amplitudes des autres harmoniques sphériques ne sont pas nulles : des pics secondaires, correspondant à des amplitudes plus ou moins significatives, sont observés. Par suite, la forme associée au mode *n*, qui est celle de la goutte à la résonance de ce dernier, n'est pas décrite uniquement par l'harmonique Y_n^0, mais par une combinaison linéaire des 4 harmoniques sphériques identifiées. Cela induit un écart à la

théorie de Rayleigh-Lamb, selon laquelle à chaque mode propre est associée une forme décrite par une harmonique sphérique unique. La contribution de l'harmonique Y_n^0 dans la description de la forme de la goutte à la résonance du mode *n* reste toutefois majoritaire par rapport à celles des autres harmoniques sphériques et l'écart par rapport à la théorie de Rayleigh-Lamb ne se traduit pas au niveau des fréquences de résonance, qui restent correctement prédites par la théorie.

Notons enfin que la théorie de Rayleigh-Lamb a été établie pour des gouttes ou des bulles sphériques et libres. Il est donc possible que la présence d'une zone d'attachement entre la goutte et le capillaire soit responsable de l'écart évoqué ci-dessus. L'effet de cette zone d'attache sera examiné plus loin.

Afin de pouvoir tracer les réponses en fréquence des modes propres des goutte étudiées, nous devons définir de nouveaux vecteurs propres qui serviront à décrire la forme de la goutte, et qui, évidemment, sont des combinaisons linéaires des harmoniques sphériques Y_n^0. Dans ce qui suit, nous considérons que toutes les amplitudes sont normées par l'amplitude de variation de volume. Pour des raisons de simplicité, les notations $\widetilde{A}_n$ et m_n indiqueront les amplitudes $\widetilde{A}_n^*$ et m_n^*, normées par $\widetilde{V}$.

La forme instantanée de l'interface est décrite par l'équation (2.24)

$$r(t) = a\left[1 + \sum_{n=0}^{10} A_n(t) \cdot Y_n^0(\theta)\right] \tag{2.24}$$

En remplaçant A_n par son expression (équation 2.23), nous obtenons:

$$r(t) = a\left[1 + \sum_{n=0}^{10} [A_{n,0} + \widetilde{A}_n \sin(\omega t + \varphi_n)] \cdot Y_n^0(\theta)\right]. \tag{2.25}$$

Cette expression peut être réécrite sous la forme d'une somme d'un terme moyen constant, et d'un terme oscillant, noté $\Delta r(t)$:

$$r(t) = a\left[1 + \sum_{n=0}^{10} A_{n,0} \cdot Y_n^0(\theta) + \sum_{n=0}^{10} \widetilde{A}_n \sin(\omega t + \varphi_n) \cdot Y_n^0(\theta)\right] \tag{2.26}$$

et

$$\Delta r(t) = \sum_{n=0}^{10} \left[\widetilde{A}_n \sin(\omega t + \varphi_n)\right] \cdot P_n(\cos\theta) \tag{2.27}$$

Considérérons les amplitudes des harmoniques sphériques 2 à 5. L'équation (2.27) peut s'écrire en particulier pour les fréquences (ou pulsations) de résonance ($\omega = \omega_n, \quad 2 \le n \le 5$). A ces fréquences, le déphasage du signal de l'harmonique sphérique principale est égal à $\frac{\pi}{2}$. Les signaux correspondant aux harmoniques sphériques secondaires présentent quant à eux, un déphasage de $\pm\frac{\pi}{2}$ par rapport au signal volumique, c'est-à-dire sont soit en phase, soit en opposition de phase avec le signal de l'harmonique principale (Figure 2.27 et Figure 2.30). Ainsi nous pouvons mettre en facteur le terme $\sin(\omega t + \varphi_n)$ dans l'équation (2.27):

$$\Delta r(t) = \sin(\omega t + \varphi_n) \sum_{n=2}^{5} \widetilde{A}_n^{alg} \cdot P_n(\cos\theta) \qquad (2.28)$$

avec $\widetilde{A}_n^{alg}$, amplitude algébrique de l'harmonique sphérique d'ordre *n*, définie de la façon suivante: $\widetilde{A}_n^{alg} = +\widetilde{A}_n$ si $\Delta\varphi_n = +\frac{\pi}{2}$, et $\widetilde{A}_n^{alg} = -\widetilde{A}_n$ si $\Delta\varphi_n = -\frac{\pi}{2}$. Les amplitudes algébriques sont représentées sur la *Figure 2.28* ainsi que sur la *Figure 2.31*.

L'équation (2.28) est un produit entre une partie temporelle qui rend compte de la périodicité de la déformation, et une partie spatiale qui décrit la forme de l'interface, cette dernière sera notée :

$$\vec{r} = \sum_{n=2}^{5} \widetilde{A}_n^{alg} \cdot Y_n^0 . \qquad (2.29)$$

Le vecteur $\vec{r}$ est donc un élément d'un R-espace vectoriel, de dimension 4, ayant pour base l'ensemble constitué des harmoniques sphériques d'ordre 2 à 5, noté $\mathbf{Y} = \{Y_2^0, Y_3^0, Y_4^0, Y_5^0\}$.

L'espace vectoriel admet, évidemment, d'autres bases, en particulier celle des modes propres que nous noterons $\mathbf{M} = \{M_2, M_3, M_4, M_5\}$, le vecteur $\vec{r}$ peut alors être écrit à l'aide des vecteurs de la nouvelle base :

$$\vec{r} = \sum_{n=2}^{5} m_i \cdot M_n, \quad m_n \in IR . \qquad (2.30)$$

Les M_n étant eux-mêmes des vecteurs de l'espace vectoriel, ils s'expriment à l'aide de la base des harmoniques sphériques **Y** et inversement. En établissant la relation entre les vecteurs M_n et les vecteurs Y_n^0, l'équation de l'interface, jusque là exprimée à l'aide des harmoniques sphériques, peut être écrite à l'aide des modes propres.

En examinant les pics de résonance principaux, sans tenir compte des pics secondaires, nous remarquons qu'ils se chevauchent très peu. Les fréquences de résonance sont en effet relativement éloignées les unes des autres par rapport à la largeur des pics. Par suite, nous pouvons admettre, à la résonance du mode *i*, que les amplitudes des autres modes sont négligeables par rapport à celle du mode considéré. L'équation (2.29) devient alors :

$$\vec{r}(\omega_n) = m_n(\omega_n) \cdot M_n . \tag{2.31}$$

Ainsi, pour $\omega = \omega_n$, nous pouvons écrire

$$\vec{r}(\omega_n) = m_n(\omega_n) \cdot M = \sum_{n=2}^{5} \widetilde{A}_n^{a\lg}(\omega_n) \cdot Y_n^0 . \tag{2.32}$$

En outre, le module de $\vec{r}(\omega_n)$ s'écrit

$$\left\| \vec{r}(\omega_n) \right\| = m_n(\omega_n) = \sqrt{\sum_{n=2}^{5} \widetilde{A}_n^2(\omega_n)} , \tag{2.33}$$

ce qui nous permet de calculer les amplitudes m_n.

Appliquée aux 4 fréquences de résonance, l'équation (2.32) devient un système de 4 équations linéaires à 4 inconnues, que l'on peut écrire sous forme matricielle

$$\begin{pmatrix} M_2 \\ M_3 \\ M_4 \\ M_5 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \dfrac{\widetilde{A}_2(\omega_2)}{m_2(\omega_2)} & \dfrac{\widetilde{A}_3(\omega_2)}{m_2(\omega_2)} & \dfrac{\widetilde{A}_4(\omega_2)}{m_2(\omega_2)} & \dfrac{\widetilde{A}_5(\omega_2)}{m_2(\omega_2)} \\ \dfrac{\widetilde{A}_2(\omega_3)}{m_3(\omega_3)} & \dfrac{\widetilde{A}_3(\omega_3)}{m_3(\omega_3)} & \dfrac{\widetilde{A}_4(\omega_3)}{m_3(\omega_3)} & \dfrac{\widetilde{A}_5(\omega_3)}{m_3(\omega_3)} \\ \dfrac{\widetilde{A}_2(\omega_4)}{m_4(\omega_4)} & \dfrac{\widetilde{A}_3(\omega_4)}{m_4(\omega_4)} & \dfrac{\widetilde{A}_4(\omega_4)}{m_4(\omega_4)} & \dfrac{\widetilde{A}_5(\omega_4)}{m_4(\omega_4)} \\ \dfrac{\widetilde{A}_2(\omega_5)}{m_5(\omega_5)} & \dfrac{\widetilde{A}_3(\omega_5)}{m_5(\omega_5)} & \dfrac{\widetilde{A}_4(\omega_5)}{m_5(\omega_5)} & \dfrac{\widetilde{A}_5(\omega_5)}{m_5(\omega_5)} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} Y_2^0 \\ Y_3^0 \\ Y_4^0 \\ Y_5^0 \end{pmatrix},$$

où

$$\mathbf{M} = \mathbf{T} \cdot \mathbf{Y} . \tag{2.34}$$

Nous pouvons ainsi exprimer, à l'aide de la matrice de transformation inverse T-1, les vecteurs Y_n^0 en fonction des vecteurs Mn :

$$\mathbf{Y} = \mathbf{T}^{-1} \cdot \mathbf{M} . \tag{2.35}$$

Ensuite le vecteur qui décrit la forme de l'interface est exprimé pour ω quelconque, à l'aide de la base des harmoniques sphériques, **Y** :

$$\vec{r}(\omega) = \left(\widetilde{A}_2(\omega)\ \widetilde{A}_3(\omega)\ \widetilde{A}_4(\omega)\ \widetilde{A}_5(\omega)\right)\mathbf{Y}\,. \tag{2.36}$$

En remplaçant $\mathbf{Y}$ (équation 2.34), nous obtenons

$$\vec{r}(\omega) = \left(\widetilde{A}_2(\omega)\ \widetilde{A}_3(\omega)\ \widetilde{A}_4(\omega)\ \widetilde{A}_5(\omega)\right)\cdot \mathbf{T^{-1}} \cdot \mathbf{M}\,. \tag{2.37}$$

Or $\vec{r}(\omega)$ s'écrit également à l'aide de la base des modes propres $\mathbf{M}$:

$$\vec{r}(\omega) = \left(m_2(\omega)\ m_3(\omega)\ m_4(\omega)\ m_5(\omega)\right)\cdot \mathbf{M}\,. \tag{2.38}$$

En simplifiant par **M**, nous exprimons les amplitudes des modes propres d'ordre 2 à 5 à l'aide des amplitudes des harmoniques sphérique et de la matrice de transformation $\mathbf{T}^{-1}$:

$$\left(m_2(\omega)\ m_3(\omega)\ m_4(\omega)\ m_5(\omega)\right) = \left(\widetilde{A}_2(\omega)\ \widetilde{A}_3(\omega)\ \widetilde{A}_4(\omega)\ \widetilde{A}_5(\omega)\right)\cdot \mathbf{T}^{-1}\,. \tag{2.39}$$

Nous pouvons ainsi tracer les amplitudes des modes propres en fonction de la fréquence imposée (*Figure 2.29* et Figure 2.32). Nous observons, au niveau des pics de résonance, une diminution de l'intensité des pics secondaires par rapport à celle des pics principaux. Il s'agit donc bien de modes propres qui entrent en résonance, quand la fréquence du forçage atteint la fréquence propre du mode. La persistance de valeurs résiduelles des harmoniques sphériques est due aux incertitudes de la mesure des amplitudes et des fréquences.

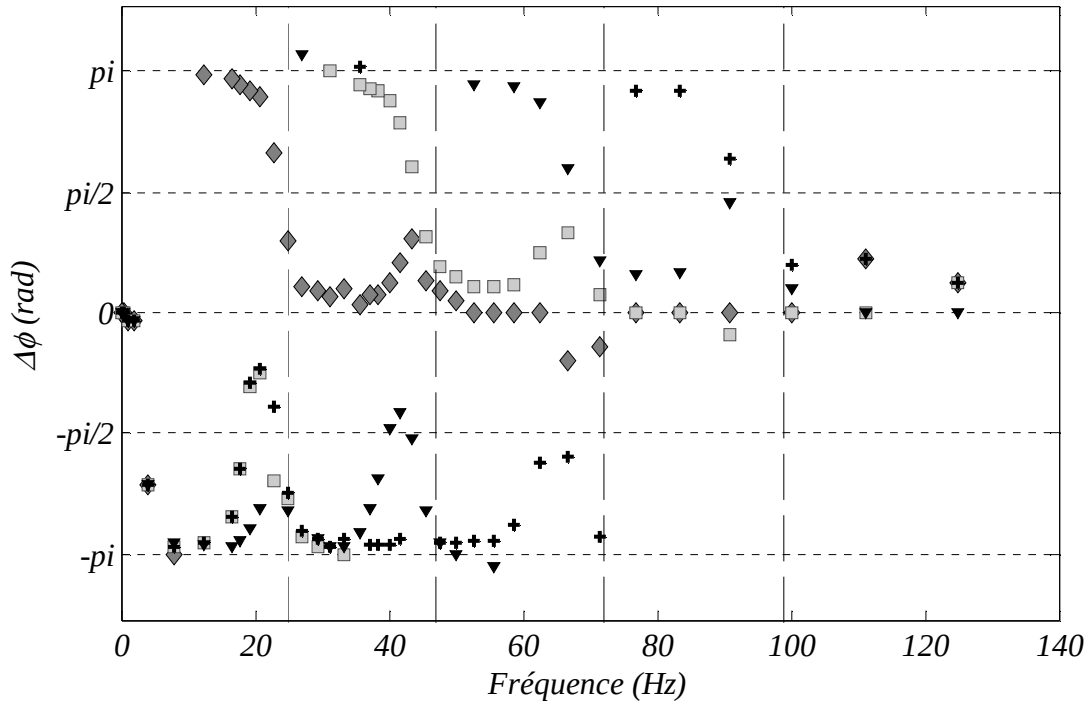

Figure 2.27 Déphasage $\Delta\varphi_n$ des signaux des harmoniques sphériques par rapport au signal de variation de volume, en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■), n=4 (▼) et n=5 (+). Les lignes verticales correspondent aux fréquences propres théoriques. d=4.475mm

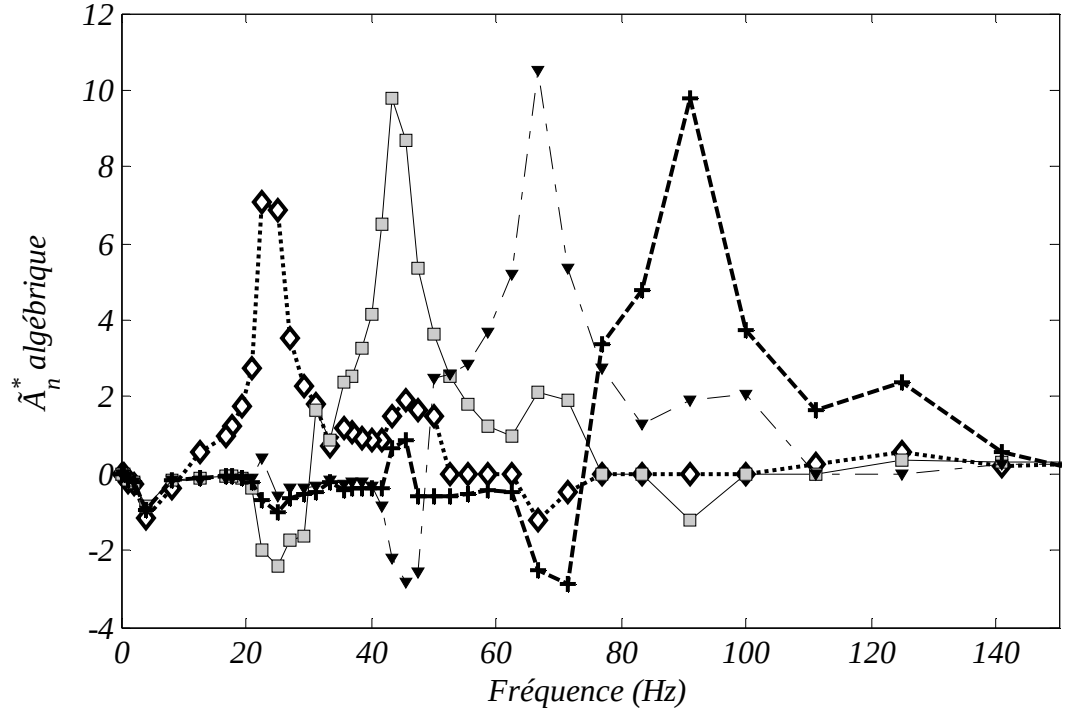

Figure 2.28 Amplitude algébrique normée des harmoniques sphériques en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■), n=4 (▼) et n=5 (+). d=4.475mm.

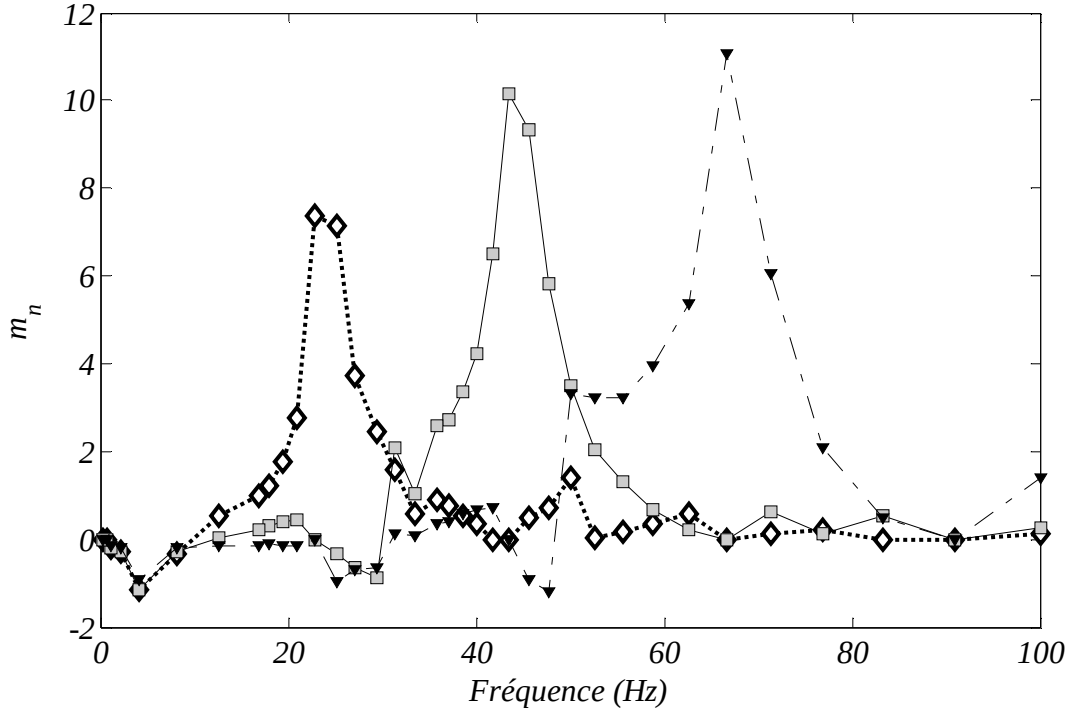

Figure 2.29 Amplitude (normée par $\tilde{V}$) des modes propres en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). d=4.475mm

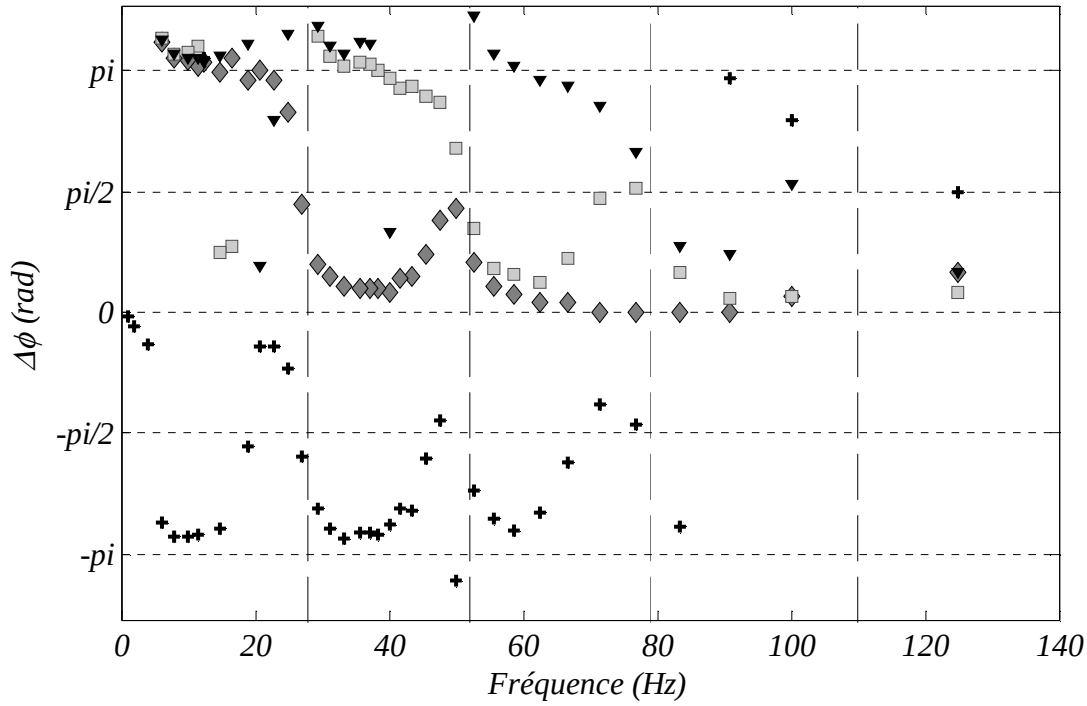

Figure 2.30 Déphasage $\Delta\varphi_n$ des signaux des harmoniques sphériques par rapport au signal de variation de volume, en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■), n=4 (▼) et n=5 (+). Les lignes verticales correspondent aux fréquences propres théoriques. d=4.19mm.

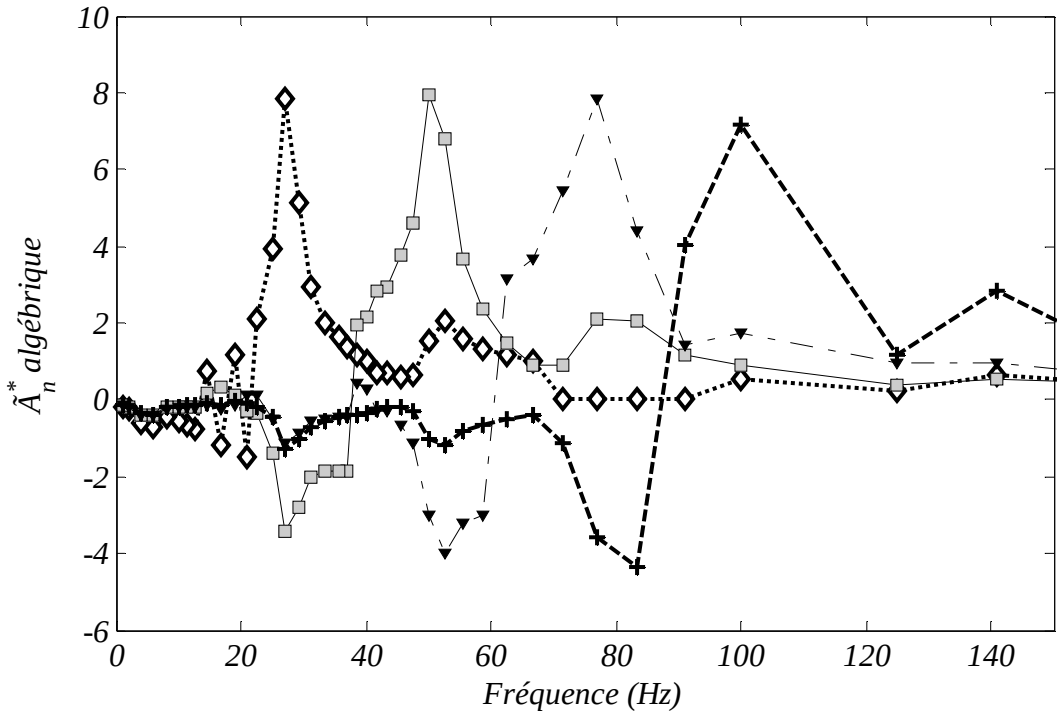

Figure 2.31 Amplitude algébrique normée des harmoniques sphériques en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■), n=4 (▼) et n=5 (+). d=4.19mm.

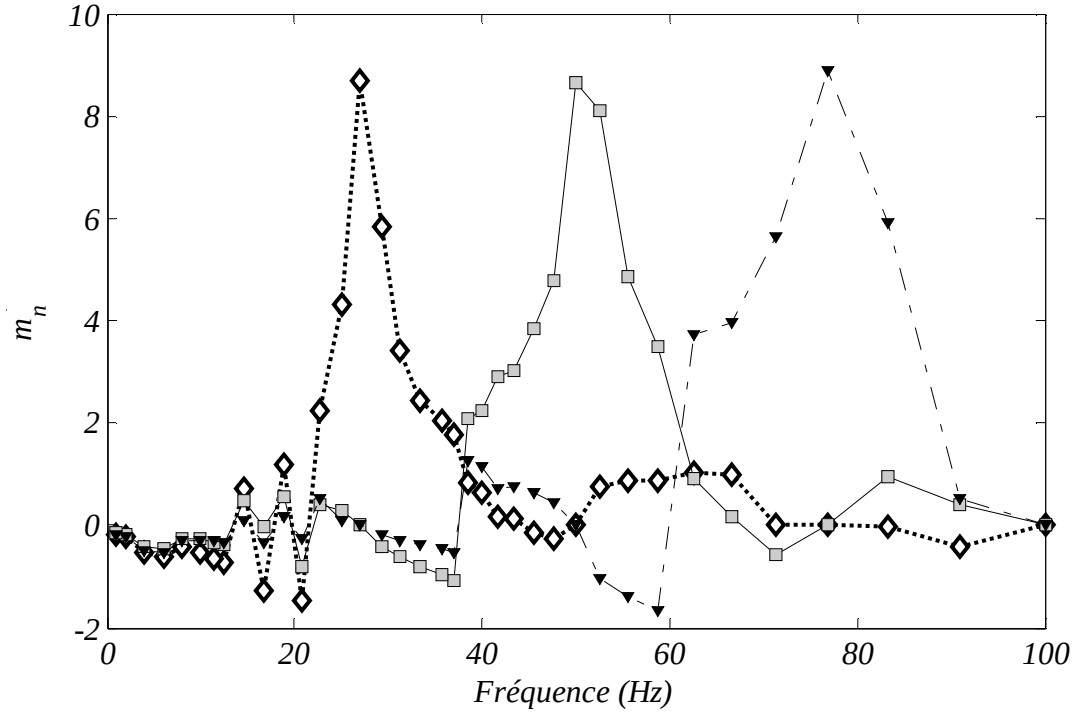

Figure 2.32 Amplitude (normée par $\tilde{V}$) des modes propres en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). d=4.19mm.

7.2 Modèle de l'oscillateur linéaire forcé.

Considérons les 3 premiers modes d'oscillation (*Figure 2.29* et *Figure 2.32*). Etant donné le faible taux de recouvrement entre les pics de résonance, chacun des modes propres peut être analysé indépendamment à l'aide d'un modèle d'oscillateur harmonique forcé à faible amortissement, représenté par l'équation différentielle suivante

$$\ddot{m}_n + 2\beta_n \dot{m}_n + \omega_n^2 m_n = F_n \cos(\omega t), \tag{2.40}$$

où ω_n et β_n sont respectivement la pulsation et le taux d'amortissement du mode *n*, F_n est l'amplitude du forçage, et ω la pulsation du forçage. La solution de l'équation différentielle s'écrit

$$m_n = \frac{F_n}{\sqrt{(\omega_n^2 - \omega^2)^2 + 4\beta_n^2 \omega^2}}. \tag{2.41}$$

Dans le cas d'un oscillateur faiblement amorti, la fréquence de résonance est égale à la fréquence propre ($\tilde{m}_n = \tilde{m}_n^{\max}$ pour $\omega = \omega_n$) et l'amplitude maximale s'écrit:

$$m_n^{\max} = \frac{F_n}{2\beta_n \omega_n} \tag{2.42}$$

Par suite, l'équation de l'oscillateur devient

$$\frac{m_n}{m_n^{\max}} = \frac{2\beta_n \omega_n}{\sqrt{(\omega_{0,n}^2 - \omega^2)^2 + 4\beta_n^2 \omega^2}}. \tag{2.43}$$

Le modèle de l'oscillateur forcé comprend donc 3 paramètres : la pulsation propre ω_n, le taux d'amortissement β_n et l'amplitude maximale $\tilde{m}_n^{\max}$. Pour chacun des 3 modes considérés, ω_n, β_n et $m_n^{\max}$ sont déterminés en modélisant les courbes de résonance expérimentales par l'équation à l'aide de la méthode des moindres carrés. Les courbes de résonance sont tracées sur la *Figure 2.33* pour la goutte de 4.475 mm de diamètre et sur la *Figure 2.34* pour la goutte de 4.19 mm de diamètre. Les valeurs de ω_n et β_n seront présentées et discutées dans le paragraphe 8.2.

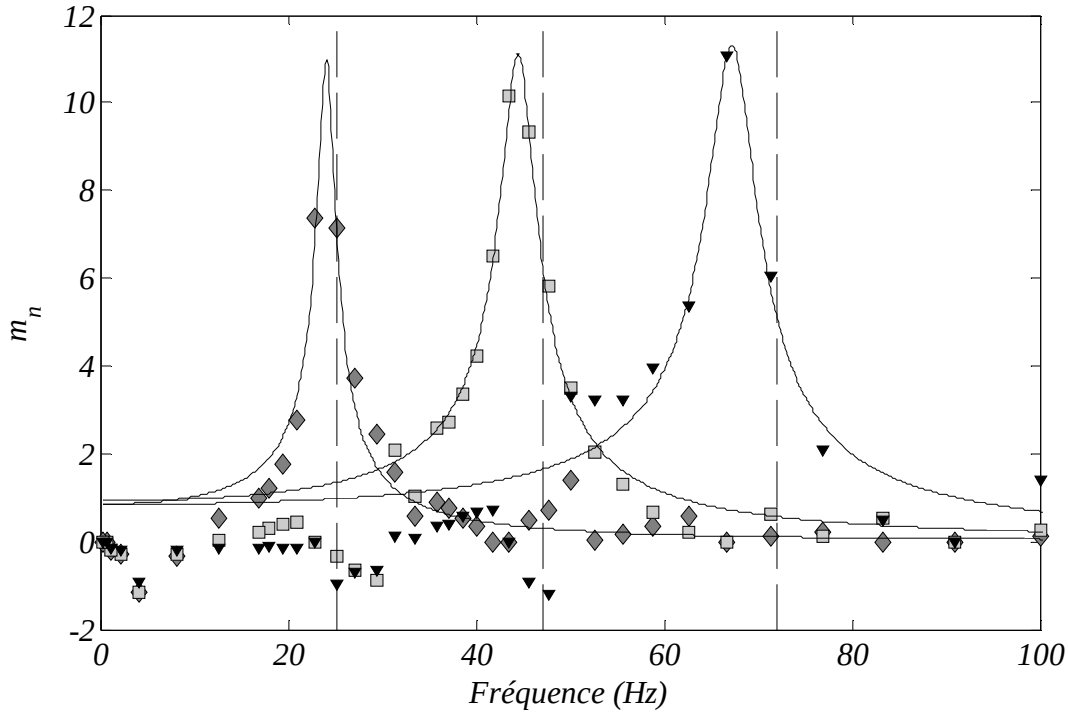

Figure 2.33 Amplitude (normée par $\tilde{V}$) des modes propres en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). Les lignes continues représentent le modèle de l'oscillateur forcé, avec les taux d'amortissement expérimentaux (Tableau 2.6). d=4.475mm.

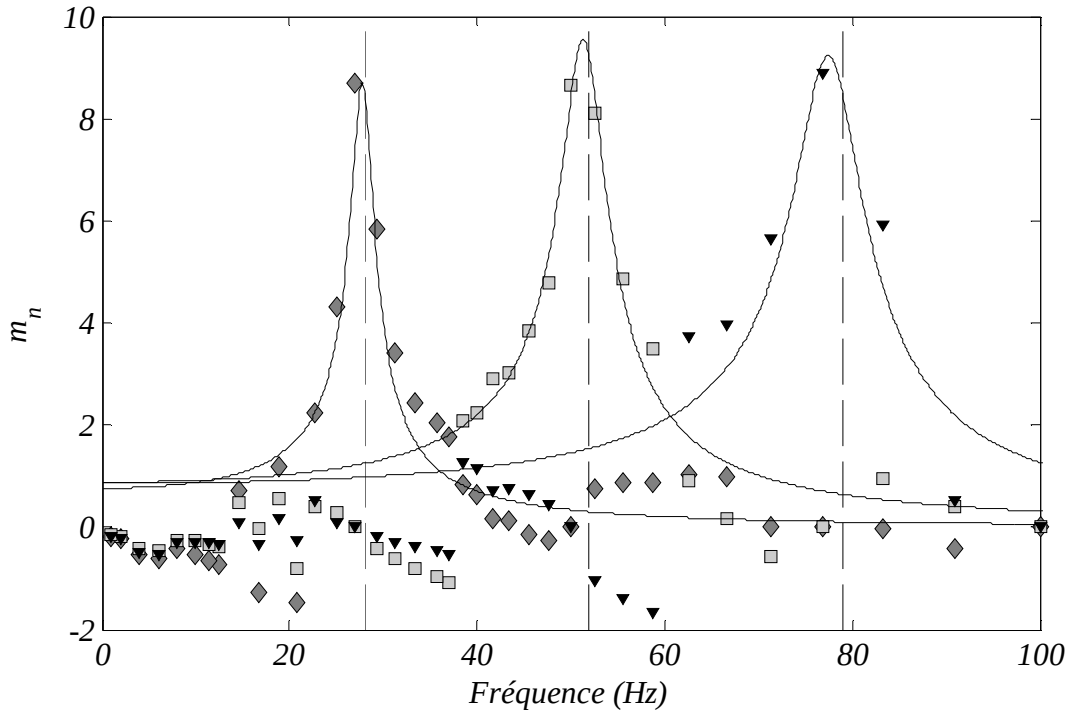

Figure 2.34 Amplitude (normée par $\tilde{V}$) des modes propres en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). Les lignes continues représentent le modèle de l'oscillateur forcé, avec les taux d'amortissement expérimentaux (Tableau 2.7). d=4.19mm

8 Discussion

8.1 Nature du forçage

Nous avons montré, dans le paragraphe 5.2, que la goutte pendante, dont le volume est soumis à une variation sinusoïdale, se comporte comme un ensemble d'oscillateurs harmoniques forcés. Il est donc pertinent de s'interroger sur la nature du forçage, en d'autres termes, sur le mécanisme de passage des oscillations volumiques aux oscillations de surface et l'apparition de modes de surface.

Le premier scénario envisagé met en jeu des forces inertielles qui se développent au cours du déplacement de l'interface. Dans ce cas, l'amplitude des harmoniques sphériques est proportionnelle à $\rho(\omega\Delta a)^2$ où Δa représente la variation du rayon de la sphère équivalente et ρ la masse volumique d'une des phases. A faible amplitude, nous pouvons considérer que la variation du rayon est proportionnelle à la variation du volume (les oscillations se situent dans le domaine linéaire) et par suite, le scénario d'un forçage inertiel implique une relation de proportionnalité entre les amplitudes des modes propres ou des harmoniques sphériques et $\widetilde{V}^2$, le carré de l'amplitude volumique. Cependant, l'étude de linéarité que nous avons présentée dans le paragraphe 5.1, montre que les amplitudes des harmoniques sphériques sont proportionnelles à $\widetilde{V}$. Le mécanisme inertiel ne peut donc pas être retenu.

Un deuxième scénario met en jeu la gravité, qui, avec la force capillaire, détermine la forme statique de la goutte pendante. Il est donc probable que la gravité ait un effet sur la dynamique des oscillations. Dans ce cas, l'énergie fournie à la goutte-oscillateur provient du travail de la force de gravité qui peut s'écrire sous la forme $\Delta\rho g V\Delta a$, et qui, dans le domaine linéaire des faibles amplitudes devient proportionnelle à $\Delta\rho g a\Delta V$ et donc à l'amplitude de la variation de volume. Ce scénario, qui est compatible avec les résultats expérimentaux, nous semble réaliste.

8.2 Paramètres de la goutte – oscillateur. Origine de l'amortissement.

La modélisation des courbes de résonance par des oscillateurs linéaires forcés permet, pour chaque mode d'oscillation, d'accéder au taux d'amortissement et d'affiner la mesure de la fréquence propre. Les tableaux 2.4 et 2.5 présentent les fréquences et pulsations expérimentales et théoriques pour des gouttes de 4.475 et 4.19mm de diamètre, respectivement. Les fréquences propres mesurées sont comparées aux fréquences prédites par la théorie de Rayleigh-Lamb (écoulements potentiels, fluides non visqueux, équation 2.2) et

celui de Lu et Apfel qui considère des fluides de viscosités finies et tient compte de l'écoulement de couche limite (équations 2.12 et 2.14). Les fréquences calculées par Lu et Apfel sont très proches de celles obtenues à l'aide de la théorie potentielle. Les deux théories assurent donc une bonne prédiction des fréquences propres.

Tableau 2.4. Fréquences et pulsations pour une goutte de 4.475 mm de diamètre

	Valeurs expérimentales		Valeurs théoriques	
n	f_n (Hz)	$\omega_n = 2\pi f_n$ (rad.s^{-1})	ω_n^* (rad.s^{-1}) Lamb (1932)	ω_n (rad.s^{-1}) Lu et Apfel (1991)
2	24	151	158	154
3	44.5	279	297	289
4	67.9	423	452	440

Tableau 2.5. Fréquences et pulsations pour une goutte de 4.19 mm de diamètre

	Valeurs expérimentales		Valeurs théoriques	
n	f_n (Hz)	$\omega_n = 2\pi f_n$ (rad.s^{-1})	ω_n^* (rad.s^{-1}) Lamb (1932)	ω_n (rad.s^{-1}) Lu et Apfel (1991)
2	28	175	174	170
3	51	323	328	319
4	77.59	488	499	485

D'autre part, les résultats montrent que la théorie potentielle (équation 2.11) sous-estime considérablement le taux d'amortissement, ce qui confirme les observations de Lu et Apfel (1990, 1991). La théorie développée par ces derniers permet une meilleure estimation de l'amortissement. En effet, le taux d'amortissement dans le cas d'un système liquide-liquide, est une somme de deux termes, le premier provient de la dissipation visqueuse de l'écoulement loin de l'interface et le second résulte de la dissipation visqueuse dans la couche limite (équations 2.13 à 2.15).

En examinant les tableaux 2.6 et 2.7 nous pouvons constater tout d'abord, que l'amortissement dû à l'écoulement loin de l'interface est bien plus faible que la valeur estimée par l'approche potentielle. Nous en déduisons que la présence de la couche limite agit sur la dissipation de l'écoulement loin de l'interface. Nous remarquons également que pour les

fluides et les tailles de gouttes considérées dans cette étude, l'amortissement des oscillations provient très majoritairement de la dissipation dans les couches limites.

Tableau 2.6. Taux d'amortissement expérimentaux et théoriques pour une goutte de 4.475 mm de diamètre

n	Re_{osc}	β_n (s^{-1}) exp.	β_n (s^{-1}) Valentine et al (1965)	β_n (s^{-1}) Lu et Apfel (1991)		
				Loin de l'interface	Couche limite	Total
2	35	5.85	2.07	0.6	4.1	4.7
3	66	11.6	4.06	1.1	7.8	8.9
4	104	15.8	6.67	1.7	12.3	14.0

Tableau 2.7. Taux d'amortissement expérimentaux et théoriques pour une goutte de 4.19 mm de diamètre

n	Re_{osc}	β_n (s^{-1}) exp.	β_n (s^{-1}) Valentine et al (1965)	β_n (s^{-1}) Lu et Apfel (1991)		
				Loin de l'interface	Couche limite	Total
2	39	7.6	2.36	0.7	4.6	5.3
3	74	14.9	4.6	1.3	8.7	10.0
4	117	22.6	7.6	2.0	13.7	15.7

Enfin nous constatons que les taux d'amortissement mesurés restent supérieurs aux valeurs théoriques (Lu et Apfel, 1991). Nous pouvons penser que cet écart est dû à la déformation moyenne ou à une éventuelle contamination de l'interface, étant donné que la théorie présentée ici est développée pour le cas d'une goutte sphérique et non contaminée.

Cependant, il faut noter que les deux taux d'amortissement comparés ne sont pas strictement équivalents. D'une part, nous avons des taux d'amortissement calculés pour des modes théoriques d'une goutte détachée sphérique, qui correspondent chacun à une harmonique sphérique unique et, d'autre part, des taux d'amortissement mesurés pour des modes d'oscillations composés d'une combinaison d'harmoniques sphériques. Il semble donc

pertinent de calculer les taux d'amortissement théoriques en tenant compte de la décomposition de chaque mode en harmoniques sphériques, afin de les comparer avec les amortissements expérimentaux.

Dans les limites du domaine linéaire, la dissipation totale d'un mode est égale à la somme des dissipations des harmoniques sphériques qui le composent. Le taux d'amortissement est ensuite calculé en comparant l'énergie dissipée à l'énergie totale du mode considéré. En première approximation, nous allons considérer que l'additivité des dissipations entraîne une additivité des taux d'amortissement. Ainsi le taux d'amortissement théorique d'un mode *n*, noté $\beta_n^{'}$ pourrait s'écrire comme une combinaison linéaire des taux d'amortissement des harmoniques sphériques qui le constituent, pondérés par leur amplitude (voir par exemple la Figure 2.23). Dans le cadre de notre analyse où nous avons décomposé les modes en 4 harmoniques sphériques, le taux d'amortissement s'exprimerait comme

$$\beta_n^{'} = \sum_{i=2}^{5} A_{n_i} \beta_{th_i} \Big/ \sum_{i=2}^{5} A_{n_i} \ , \qquad (2.44)$$

où β_{th_i} est l'amortissement théorique associé à l'harmonique sphérique Y_i^0 et A_{n_i} l'amplitude qui correspond à la contribution de l'harmonique Y_i^0 au mode *n* (il s'agit en fait des hauteurs du pic principal et des pics secondaires dans la *Figure 2.23* pour *d*=4.475mm et la figure *Figure.2.26* pour *d* = 4.19mm). Dans le cas du mode 2, le tableau 8 permet de comparer les taux d'amortissement théoriques et expérimentaux, pour les gouttes de 4.475 et 4.19mm de diamètre.

Tableau 2.8 Taux d'amortissement expérimentaux et calculés

d (mm)	β_2 (s^{-1}) (mesuré)	β_2 (s^{-1}) (Lu Apfel)	β'_2 (s^{-1}) (théorique)	$\frac{\beta_2(théo)-\beta_2(\exp)}{\beta_2(\exp)}$	$\frac{\beta_2'(théo)-\beta_2(\exp)}{\beta_2(\exp)}$
4.475	5.85	4.7	7.5	- 22 %	+ 25 %
4.19	7.6	5.3	9.0	- 30 %	+ 18 %

Nous constatons qu'en introduisant, dans le taux d'amortissement du mode 2, les taux d'amortissement des différentes harmoniques sphériques qui le constituent, nous obtenons des valeurs plus élevées que les valeurs mesurées. Il est donc probable que l'écart entre la théorie et l'expérience soit dû au fait que les modes observés ne sont pas des harmoniques sphériques

pures. La piste d'un effet causé par des tensioactifs ne peut cependant pas être plus être totalement écartée. On ne pourra conclure définitivement que lorsque nous disposerons de prédictions théoriques pour une goutte attachée.

8.3 Effet de l'attachement

Nous avons observé que, pour les gouttes de 4.475 et 4.19 mm, les amplitudes des modes propres se projettent sur la base des harmoniques sphériques (équation 2.33), ce qui se traduit au niveau des spectres correspondants, par la présence de pics secondaires aux fréquences de résonance (figure 2.16). A la fréquence de résonance du mode *n*, la forme de l'interface reste majoritairement décrite par l'harmonique sphérique Y_n^0, avec une contribution de moindre importance des autres harmoniques sphériques. L'adéquation des fréquences de résonance mesurées avec les fréquences propres prédites par la théorie de Rayleigh-Lamb confirme ce constat.

En évoquant ce point dans le paragraphe 7.1, nous avons attribué l'écart à la théorie de Rayleigh-Lamb, à la présence d'une zone d'attachement entre la goutte et le capillaire. L'hypothèse d'une goutte sphérique et libre, qui constitue l'un des points de départ de cette théorie n'est pas vérifiée.

La Figure 2.35 présente le spectre des harmoniques sphériques 2, 3 et 4 pour une goutte de 3.6mm de diamètre. Nous observons 3 pics de résonance, à 42, 48 et 77 Hz, qui correspondent aux 3 premiers modes propres du système. Cependant, l'identification des modes par les harmoniques sphériques est nettement moins aisée que dans le cas des gouttes de diamètres supérieurs (4.475 et 4.19 mm). Par souci de rigueur et pour éviter toute confusion, nous n'appellerons pas ces modes 2, 3 ou 4, ces indices faisant référence aux harmoniques sphériques dominantes, mais aux modes A, B et C (par ordre croissant de la fréquence de résonance, le mode A étant celui qui a la fréquence propre la moins élevée).

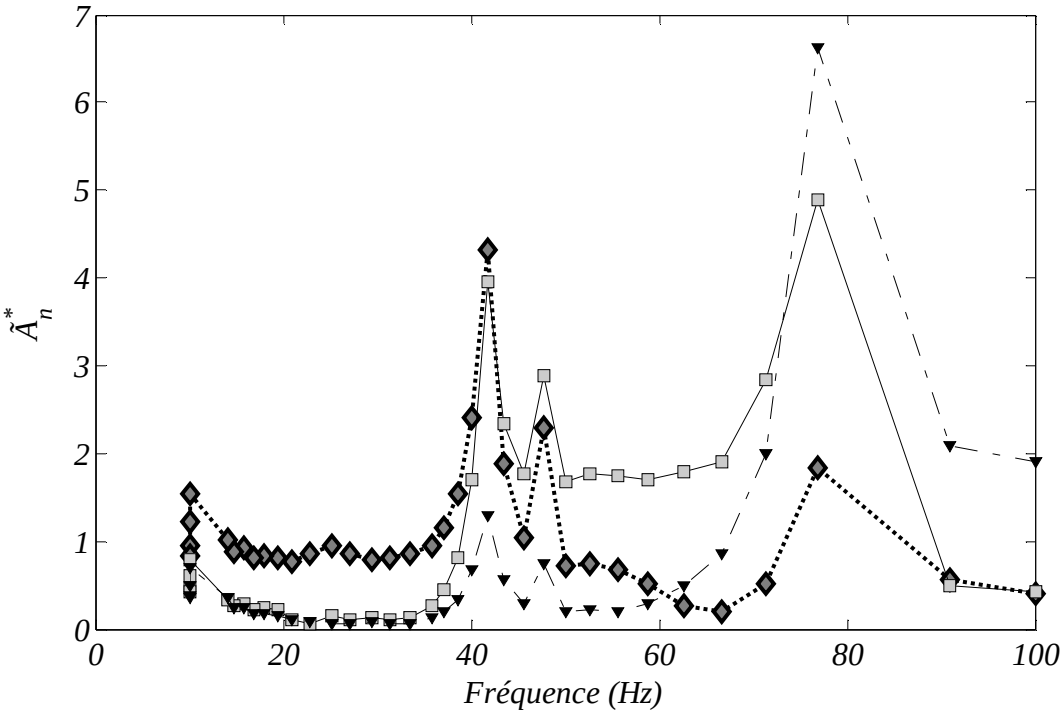

Figure 2.35. Amplitudes des harmoniques sphériques en fonction de la fréquence imposée. d=3.6mm. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼).

Considérons, par exemple le premier pic de résonance à 42 Hz. Nous pouvons constater que le vecteur propre correspondant est une combinaison des harmoniques sphériques Y_2^0 et Y_3^0 avec des coefficients presque égaux. Le même constat peut être fait pour le deuxième mode propre (pic à 48 Hz). Les deux premiers modes (A et B) ont donc des vecteurs propres presque colinéaires, ils sont donc quasi équivalents en ce qui concerne la forme de l'interface. Il est donc vraisemblable que sur le plan énergétique, ces deux modes soient presque dégénérés. En effet, les fréquences de résonance mesurées pour ces deux modes sont assez proches et se situent entre les fréquences propres théoriques des modes 2 et 3 calculés pour une sphère libre de même rayon (confondus avec les harmoniques sphériques). Ces fréquences sont égales à 35 et 65 Hz, respectivement. Le vecteur propre du 3ème mode s'écrit comme une combinaison des harmoniques Y_3^0 et Y_4^0 avec un rapport d'amplitudes de 1.35. La fréquence propre de ce mode (77 Hz) est également comprise entre celles des modes 3 et 4 de Rayleigh-Lamb (resp. 65 et 100 Hz).

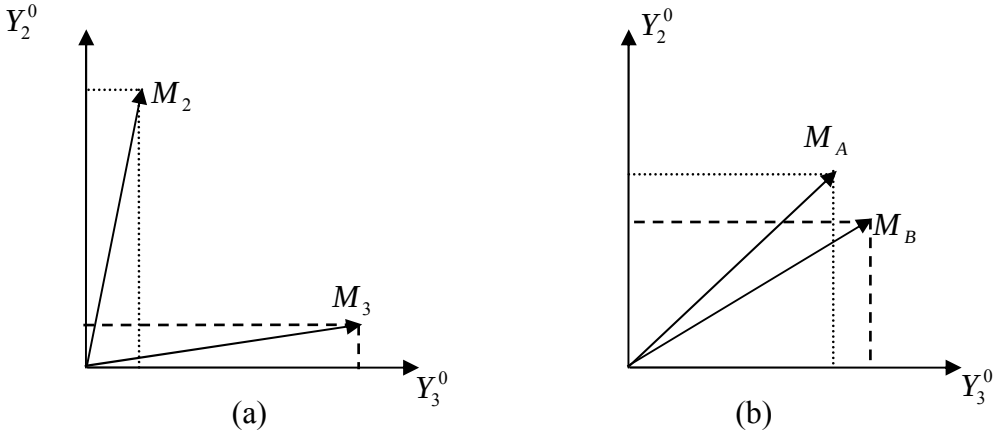

Figure 2.36. a) Deux modes, dominés chacun par une harmonique sphérique, Y_2^0 ou Y_3^0, comme dans le cas des goutte de 4.475 et 4.19 mm de diamètre. b) Deux modes qui se projettent sur les harmoniques Y_2^0 et Y_3^0 et qui sont presque colinéaires, comme dans le cas de la goutte de 3.6 mm de diamètre.

Les images des 3 gouttes étudiées, en l'absence d'oscillations, sont présentées sur la Figure 2.37. Ces gouttes peuvent être classées en 2 catégories, selon un critère de forme: les 2 gouttes ayant pour diamètre 4.475 et 4.19 mm d'une part, et la goutte ayant pour diamètre 3.6mm d'autre part. Les gouttes appartenant à la première catégorie présentent un cou de raccordement avec le capillaire, alors que la goutte de 3.6 mm de diamètre en est dépourvue. Il est possible que la présence de ce cou déformable qui relie la goutte au capillaire, permette à cette dernière d'adopter les formes caractéristiques des modes propres de la goutte sphérique en découplant les oscillations de la condition limite d'attachement sur le capillaire. Dans le cas de la goutte de plus faible diamètre, l'absence du cou de raccordement réduirait la mobilité de la partie de la goutte qui se trouve à proximité de la ligne de contact. Cela empêcherait la goutte, à la résonance, d'être décrite par une harmonique sphérique majoritaire et le vecteur propre d'un mode sera donné par une combinaison linéaire d'harmoniques sphériques. Par ailleurs, la forme d'une goutte soumise à la fois à la gravité et à des forces capillaires dépend essentiellement du nombre de Bond. Ce nombre vaut 0.33, 0.29, et 0.21 pour les gouttes de diamètre 4.475, 4.19 et 3.6 mm, respectivement. Une étude systématique avec des gouttes ayant différents nombres de Bond (en faisant varier le diamètre, la différence de densité ou la tension interfaciale) permettrait de définir un nombre de Bond minimal pour

lequel une goutte présente des modes propres assimilables à ceux d'une goutte sphérique en oscillation libre.

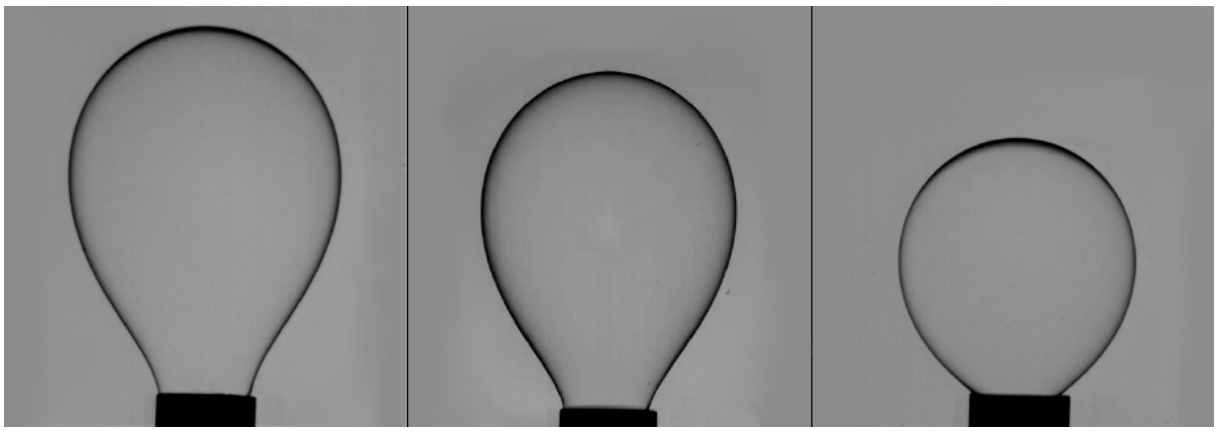

Figure 2.37. Images de gouttes au repos. (a) d=4.475mm, (b) d=4.19mm (c) d=3.6mm

9 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre, une nouvelle méthode de caractérisation de la dynamique d'oscillation de gouttes dans une phase liquide. Cette méthode permet d'identifier les modes propres d'une goutte, et de mesurer, pour chacun, la fréquence et le taux d'amortissement. Dans le cas de gouttes d'heptane dans l'eau, de diamètre 4.475 et 4.19mm, les fréquences propres obtenues sont conformes à la théorie potentielle de Rayleigh-Lamb. Le taux d'amortissement est proche des valeurs prédites par Miller et Scriven (1968), Marston (1980) et Lu et Apfel (1991). L'amortissement est dû en partie à la dissipation visqueuse des écoulements interne et externe loin de l'interface, mais la contribution la plus importante provient de la dissipation visqueuse de l'écoulement de couche limite de part et d'autre de l'interface. Enfin, une attention particulière doit être apportée à la forme de la goutte analysée. En effet, la présence d'un cou de raccordement entre le capillaire et le reste de la goutte est nécessaire afin que les modes propres soient représentés chacun par une harmonique sphérique majoritaire, ce qui en facilite l'analyse. Une condition sur le nombre de Bond de la goutte permet d'assurer cette condition.

L'étape suivante consiste à mettre en œuvre la méthode développée dans ce chapitre, afin de caractériser des interfaces en présence de surfactants. C'est l'objet du troisième chapitre.

3 Effet des surfactants sur la dynamique des oscillations d'une goutte pendante à haute fréquence

1 Introduction

Dans le chapitre précédent, avons présenté une méthode de caractérisation de la dynamique des oscillations d'une goutte pendante à haute fréquence. Cette méthode permet de mesurer les fréquences propres et les taux d'amortissement pour un système liquide-liquide en l'absence de surfactants. Nous avons montré que ces paramètres sont essentiels pour la prédiction de la rupture en écoulement turbulent. Cependant, des surfactants sont présents dans la plupart des situations où l'on assiste à une rupture de gouttes, que celle-ci ait lieu en écoulement turbulent ou laminaire. Nous nous interrogeons en particulier sur le rôle que jouent les asphaltènes et les résines (naturellement présents dans le pétrole brut) dans la formation d'émulsions eau/pétrole. Nous avons constaté dans le premier chapitre que l'adsorption des asphaltènes à l'interface eau-pétrole n'a pas pour seul effet de diminuer l'énergie de surface et par suite la tension interfaciale. En effet, la présence des asphaltènes à l'interface confère à celle-ci des propriétés viscoélatiques qui peuvent avoir un effet sur la déformation et la rupture.

De nombreuses études ont été menées afin de comprendre le rôle des surfactants dans la déformation et la rupture en écoulement laminaire. Parmi ces travaux, les simulations numériques de Stone et Leal (1990) mettent en évidence deux phénomènes antagonistes accompagnant la déformation. D'une part, l'accumulation de surfactants aux pôles de la goutte déformée conduit à une diminution locale de la tension interfaciale et favorise ainsi la déformation au voisinage des pôles. D'autre part, la déformation entraîne une dilution des surfactants adsorbés. Cela se traduit par une augmentation de la tension interfaciale moyenne et la déformation est alors défavorisée. L'effet du rapport des viscosités sur la prédominance

de l'un ou l'autre des phénomènes fut examiné Miliken et al. (1993), tandis que Pawar et Stebe (1996) généralisent ces résultats pour différents types d'isothermes d'adsorption.

Réalisant des expériences de déformation et de rupture de gouttes en écoulement de type Couette, Janssen et al. (1994) observent plusieurs modes de rupture possibles. La rupture binaire, où la goutte se casse en deux fragments, a lieu quand le nombre capillaire atteint une valeur critique. La rupture dite capillaire, due à la propagation d'ondes capillaires à l'interface, produit plusieurs fragments et se produit quand le nombre capillaire dépasse de loin la valeur critique. Janssen et al montrent qu'un nombre capillaire bâti à l'aide de la tension interfaciale à l'équilibre ne permet de prédire la rupture. Ils introduisent alors la notion de tension interfaciale effective, qui s'écrit comme une somme entre la tension interfaciale à l'équilibre et un terme proportionnel au module élastique de l'interface. La rupture peut également avoir lieu pour des nombres capillaires inférieurs à la valeur critique. L'accumulation de surfactants aux pôles entraîne une déformation locale et conduit à la formation de pointes (*tips*). Des fragments sont alors arrachés par l'écoulement au niveau des pointes, sous la forme d'un jet continu (*tip streaming*) ou sous la forme de gouttelettes individuelles (*tip dropping*).

Williams et al. (1997) ont examiné le cas de surfactants macromoléculaires capables de former un réseau bidimensionnel à l'interface. Deux régimes de rupture sont observés, le premier est gouverné par une tension interfaciale effective, selon le modèle phénoménologique établi par Janssen et al (1994). Il apparaît pour de faibles concentrations d'émulsifiant. Le deuxième régime apparaît lorsque les macromolécules tensioactives, présentes à forte concentration dans le volume, forment un réseau rigide à l'interface. Williams *et al.* ont observé que dans ce dernier cas, la déformation était plus faible que dans le premier régime, pour un même nombre capillaire. Cependant, le nombre capillaire critique est inférieur à celui du premier régime. Prins (1999) explique cela par le fait qu'une interface rigide comme celle formée par les émulsifiants macromoléculaires présente une meilleure adhérence vis-à-vis du fluide externe, ce qui facilite la rupture et conduit à des nombres capillaires critiques inférieurs à ceux obtenus avec des surfactants à faible masse moléculaire.

De nombreuses études ont donc été consacrées à l'effet des surfactants sur la déformation et la rupture dans des écoulements dominés par les forces visqueuses. Elles ont mis en évidence que les surfactants pouvaient d'une part conférer à l'interface des propriétés viscoélastiques et d'autre part modifier les conditions de raccordement à l'interface. En revanche, le rôle des surfactants sur la déformation dans les situations où l'inertie joue un rôle important (grands nombres de Reynolds et de Peclet) reste méconnu. Si la présence de

surfactants a été prise en compte dans quelques travaux théoriques et expérimentaux sur les oscillations de gouttes, aucun travail consacré à l'influence des surfactants sur la rupture en écoulement turbulent n'a été, à notre connaissance, publié.

Lu et Apfel (1991) ont effectué une analyse théorique des oscillations d'une goutte immergée dans un fluide, dans le but d'en déterminer, pour un mode donné, la fréquence et le taux d'amortissement. Cette analyse consiste à résoudre l'équation de Navier-Stokes linéarisée de part et d'autre de l'interface pour un système de deux fluides incompressibles, avec un surfactant dissous dans le fluide externe. La présence de ce surfactant introduit, en plus des masses volumiques et des viscosités de fluides, des viscosités interfaciales de dilatation et de cisaillement ainsi qu'une élasticité de Gibbs. L'analyse aboutit à un système d'équations linéaires, pour lequel des solutions analytiques peuvent être trouvées dans certains cas-limites, dont celui d'une interface liquide–liquide non contaminée, présenté dans le chapitre 2. Plusieurs cas-limites en présence de surfactants sont également présentés. Cette analyse est validée par des mesures expérimentales pour des gouttes d'hexane dans des solutions de SDS de différentes concentrations (Lu et Apfel, 1990). Le comportement viscoélastique de l'interface modifie significativement le taux d'amortissement, en provoquant une augmentation de la vorticité dans les couches limites, et par suite une dissipation plus forte. Cependant, il s'avère difficile de déterminer les propriétés de l'interface par une simple mesure de la fréquence d'oscillation et des taux d'amortissement, étant donné le nombre de paramètres en jeu (élasticité de Gibbs, viscosités de dilatation et de cisaillement, constantes de diffusion, thermodynamique et cinétique d'adsorption).

Nous avons appliqué la méthode de caractérisation de la dynamique des oscillations d'une goutte, présentée dans le chapitre précédents, aux systèmes de type liquide-liquide en présence de surfactants. Etant donnée la complexité des fluides et des conditions opératoires, notre interprétation de la dynamique interfaciale restera essentiellement qualitative bien que notre méthode expérimentale fournisse une description quantitative précise des oscillations

2 Système de phases et modes opératoires

2.1 Système de phases

La phase continue ou externe est constituée d'eau distillée. Pour la phase interne, notre choix a porté sur du pétrole brut dilué à 90 % dans l'heptane. Ce choix, motivé en partie par le contexte pétrolier de l'étude, permet d'introduire dans le système des espèces amphiphiles de grande masse moléculaire comme les asphaltènes, qui confèrent à l'interface des propriétés viscoélastiques significatives et qui, dans certaines conditions, sont capable de former un réseau rigide à l'interface. La dilution permet de conserver des valeurs de masse volumique et de viscosité comparables à celles des fluides purs, ce qui facilite l'évaluation de la contribution des propriétés interfaciales aux oscillations. Nous sommes toutefois conscients du degré de complexité qu'apporte l'utilisation du pétrole brut, constitué d'un continuum de composés et dont on ne peut connaître exactement la composition. La dilution constitue également une autre source de complexité. En effet, l'activité interfaciale des asphaltènes dépend de leur état d'agrégation, qui lui dépend du milieu dans lequel ils se trouvent. L'addition de solvant perturbe donc les conditions de solvatation des asphaltènes. La dilution par l'heptane, mauvais solvant pour les asphaltènes, aura pour effet l'augmentation de la taille des agrégats, voire la précipitation d'une partie des asphaltènes. Cependant, les mesures de rhéologie interfaciale à basse fréquence, présentées dans le premier chapitre, montrent que le mélange entre le pétrole brut (10 vol. %) et l'heptane possède un comportement interfacial comparable à celui d'un pétrole brut non dilué.

Tableau 3.1. Propriétés physiques et composition du pétrole brut contenu dans la phase interne

Analyse SARA de la coupe 344 + (résidu de la distillation à 344°C)	
Saturés (% m/m)	47.5
Aromatiques (% m/m)	39.1
Résines (% m/m)	12.6
Asphaltènes (% m/m)	0.1
Rendement en masse de la coupe (% m/m)	50.76
Propriétés physiques (brut complet)	
Masse volumique à 15°C	0.85
Viscosité à 20°C (cP)	9

Tableau 3.2 Propriétés physiques des liquides constituant les 2 phases

	Eau	Pétrole (10 %), n-heptane (90%)
Masse Volumique $\rho(Kg.m^{-3})$	997	684
Viscosité dynamique $\mu(Pa.s)$	$0.9\cdot10^{-3}$	$0.4\cdot10^{-3}$

2.2 Mode opératoire et types d'interface

Nous avons choisi de caractériser deux types d'interfaces. Le premier type est celui d'une interface d'âge modéré, 20 minutes en moyenne. Rappelons que l'âge de l'interface indique le temps de contact entre les deux phases après formation de la goutte. En réalité, pour des raisons logistiques liées à l'utilisation de la caméra rapide, nous avons décidé d'effectuer 3 séries d'oscillations sur chaque goutte formée, l'âge de l'interface varie donc entre 18 et 25 minutes. La tension interfaciale est alors de $25mN.m^{-1}$, tandis que l'élasticité et la viscosité dilatationnelles (modèle de Voigt) sont environ de $15mN.m^{-1}$ et de $10mN.s.m^{-1}$, respectivement.

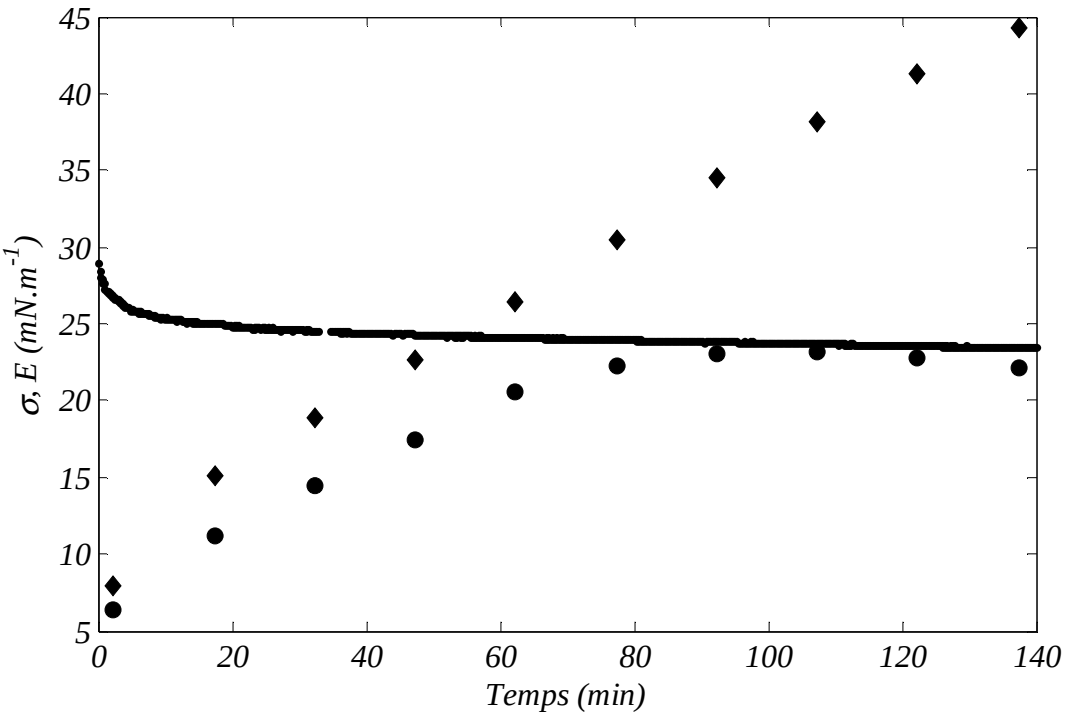

Figure 3.1 Evolution de la tension interfaciale(—) , ainsi que de l'élasticité (♦)et la viscosité(●) interfaciales dilatationnelles en fonction de l'âge de l'interface. Fréquence d'oscillation 0.1Hz

Pour le second type, nous aurions souhaité conduire l'investigation d'une interface très vieille, typiquement de 12 ou 24 heures. Cependant, le dispositif expérimental, en plus de certains problèmes d'étanchéité, ne permettait pas une régulation automatique du volume, indispensable pour pouvoir maintenir la goutte en place pendant plusieurs heures. L'alternative trouvée fut de simuler un vieillissement accéléré en diminuant le volume de la goutte. La goutte est tout d'abord formée, en veillant à ce que son diamètre soit presque égal au diamètre maximal avant détachement. Les deux phases sont ensuite maintenues en contact pendant un temps t_1, puis la goutte est rétrécie jusqu'à l'observation de rides à l'interface. L'apparition de rides est un signe de recouvrement total de l'interface. Le volume de la goutte est ensuite légèrement réaugmenté, jusqu'à disparition des rides. Un temps de relaxation t_2 est assuré avant le début des mesures. Le tableau 3.3 résume les différentes étapes et les temps correspondants pour deux gouttes de pétrole dilué. Seuls les temps de vieillissement et de relaxation diffèrent entre les deux gouttes. Afin de les différencier, les interfaces sont appelées type 2A et type 2B.

Tableau 3.3 Temps de vieillissement et de repos pour les deux goutte de type 2

	Type 2A ($d = 3.73\,mm$)	Type 2B ($d = 3.07\,mm$)
t_1 (*min*)	30	60
t_2 *(min)*	5	20

Chacune des gouttes de type 2A et 2B est soumise à des variations sinusoïdales en volume, à des fréquences comprises entre 1Hz (20Hz pour la goutte 2A) et 170Hz. L'interface n'est pas renouvelée au cours des mesures. Rappelons enfin que les mesures sont effectuées à 25°C. Les images obtenues pour chaque série d'oscillations sont traitées à l'aide de l'algorithme présenté dans le chapitre précédent. Les signaux temporels correspondant à la variation de volume et aux amplitudes des harmoniques sphériques sont sinusoïdaux (sauf exception discutée plus loin), leur fréquence est égale à la fréquence de forçage. De chaque signal sont extraits l'amplitude ($\widetilde{V}$, $\widetilde{A}_n$) et le déphasage par rapport à la variation de volume ($\Delta\varphi_n = \varphi_n - \varphi_V$).

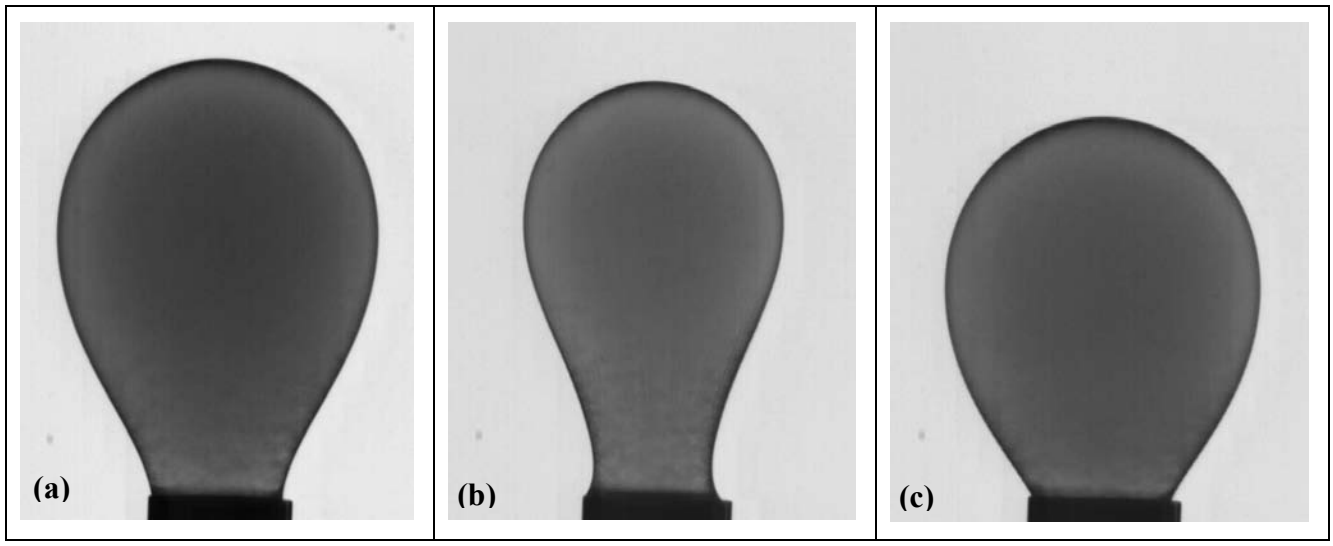

Figure 3.2 Images de la goutte (a) après vieillissement, (b) après compression de l'interface (apparition de rides), (c) début des mesures. Interface de type 2B.

3 Etude de la linéarité, Incertitude des mesures

Comme nous l'avons précisé dans le chapitre précédent, la fréquence de résonance de la membrane piézoélectrique (8Hz) est comprise dans la plage de fréquences de nos mesures. Nous avons même observé, dans certains cas en présence de pétrole, l'apparition de pics de résonance de la membrane pour des fréquences de 70 et 120 Hz. L'analyse de la réponse de l'interface nécessite donc une normalisation par l'amplitude de la variation de volume. Comme dans le cas du système heptane/eau, nous avons vérifié la linéarité entre les amplitudes des harmoniques sphériques, qui représentent la réponse de l'interface, et l'amplitude de la variation de volume, qui représente le forçage. Une étude systématique de la linéarité est réalisée pour l'interface de type 1 (âge 20 min), pour différentes fréquences. Pour l'interface de type 2A, l'étude de linéarité est effectuée uniquement pour 2 valeurs de la fréquence.

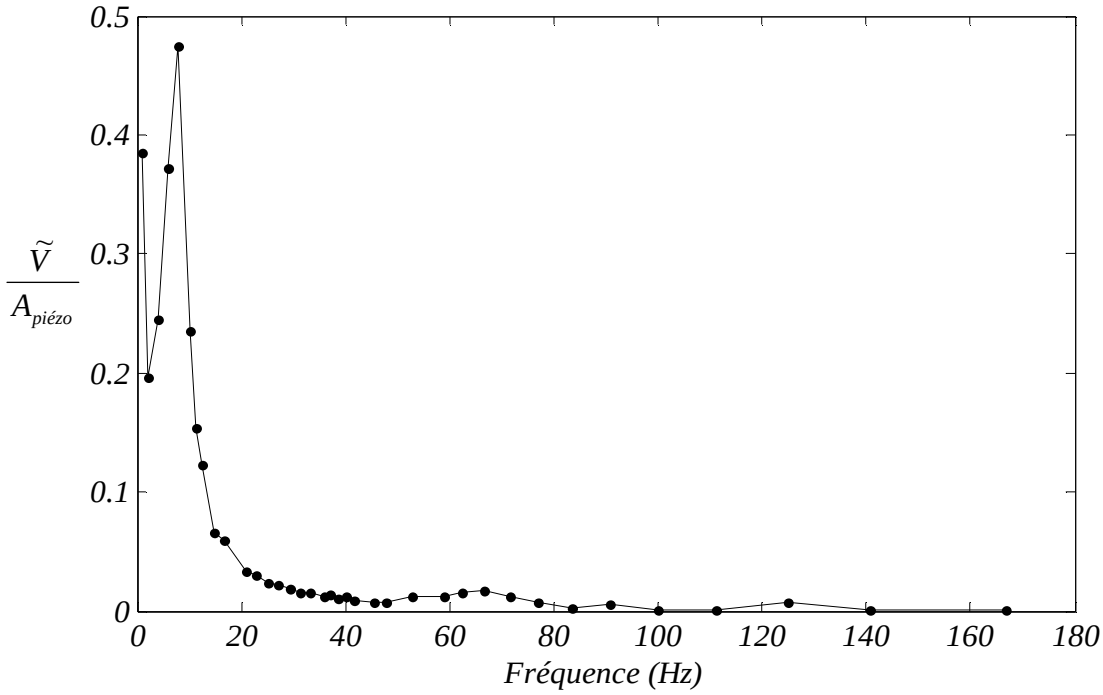

Figure 3.3 Courbe de résonance de la membrane piézoélectrique au cours de la caractérisation de l'interface de type 1

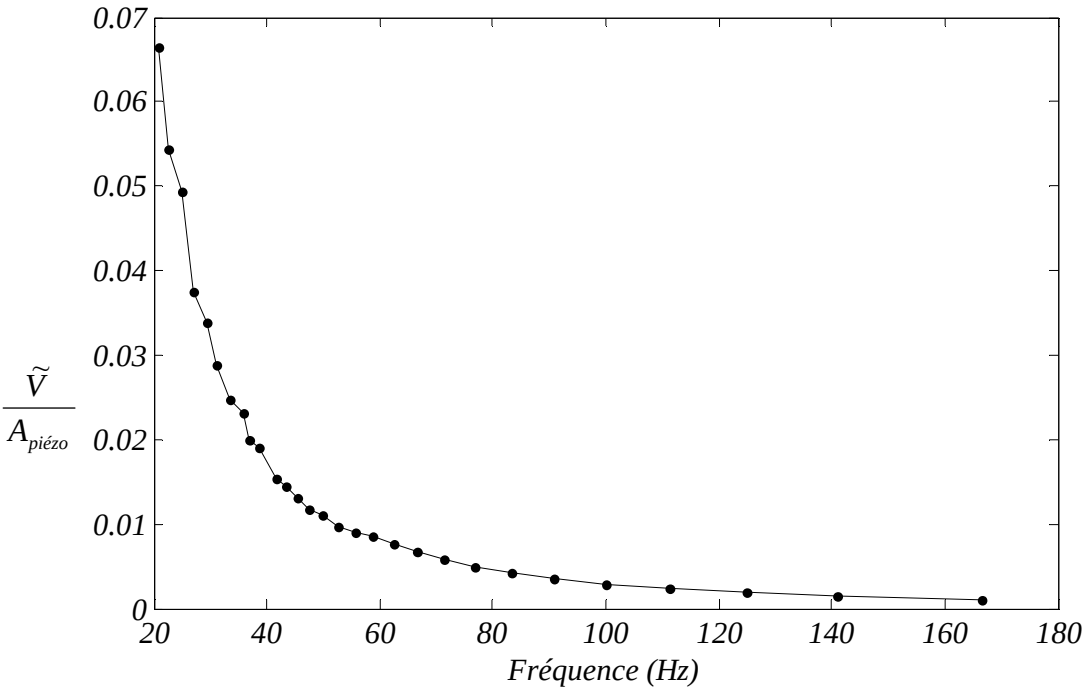

Figure 3.4 Courbe de résonance de la membrane piézoélectrique au cours de la caractérisation de l'interface de type 2A

3.1 Interface de type 1

Un balayage de l'amplitude de la variation de volume $\tilde{V}$ est effectué pour les fréquences de 29.41, 47.63 et 71.42*Hz*, proches des fréquences de résonance des 3 premiers modes, ainsi que les fréquences de 8*Hz* et 90.9*Hz*. L'amplitude de l'harmonique sphérique $\tilde{A}_n$ est représentée en fonction de l'amplitude de la variation de volume $\tilde{V}$. Nous obtenons ainsi, pour chaque fréquence, 3 graphes $\tilde{A}_n(\tilde{V})$. Pour les fréquences de 29.41, 47.63 et 71.42 *Hz*, nous avons sélectionné le graphe $\tilde{A}_n(\tilde{V})$, où *n* est l'ordre du mode dont le pic de résonance est le plus proche, donc respectivement, 2, 3 et 4 (figures 3.6, 3.7 et 3.8). Pour les fréquences de 8 et 90.9 *Hz*, nous avons sélectionné, respectivement, les graphes $\tilde{A}_2(\tilde{V})$ et $\tilde{A}_4(\tilde{V})$ (figures 3.5 et 3.9).

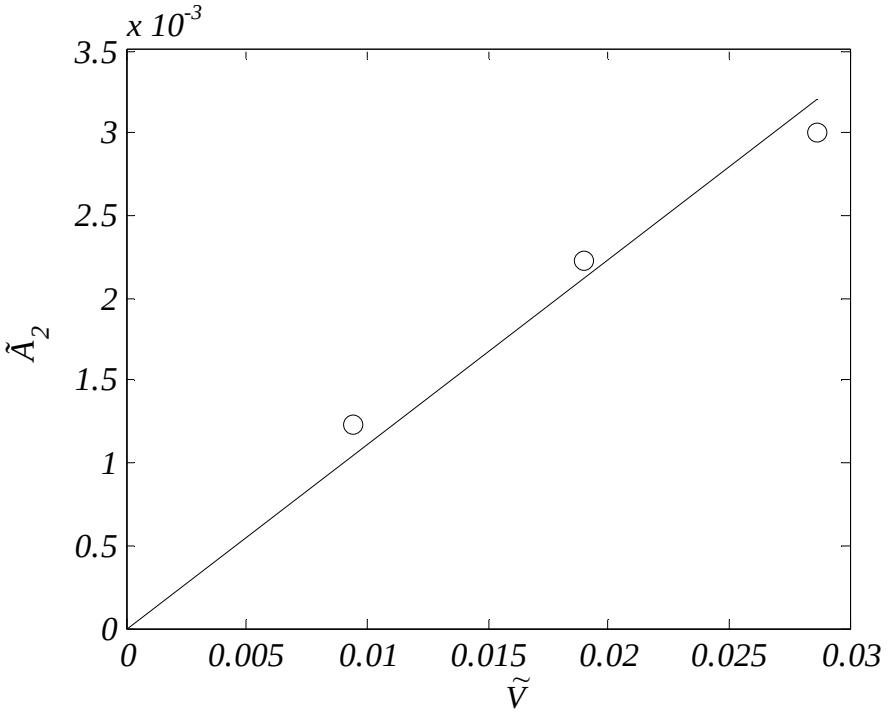

Figure 3.5 Interface de type 1. Balayage en amplitude pour une fréquence de8Hz

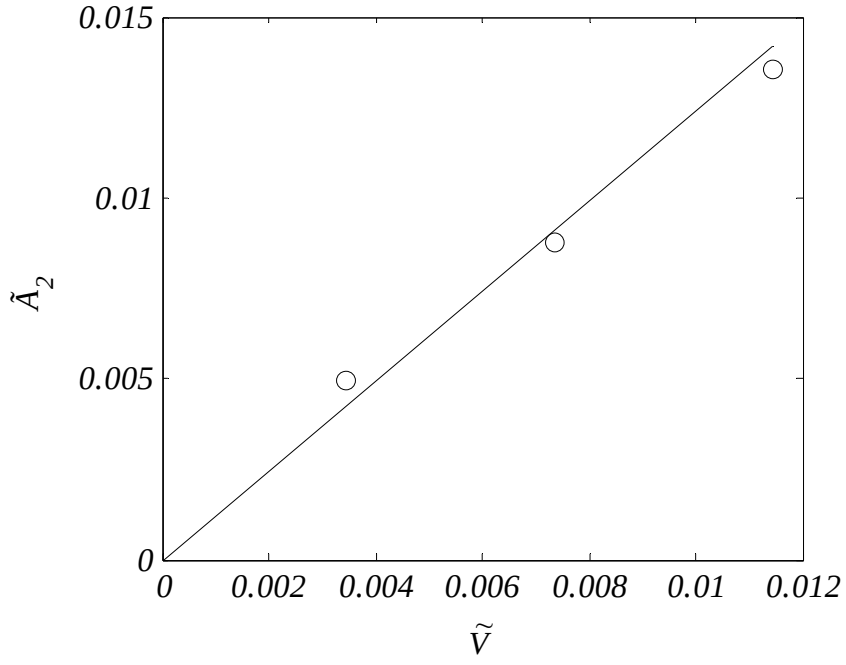

Figure 3.6 Interface de type 1. Balayage en amplitude pour une fréquence de 29.41Hz

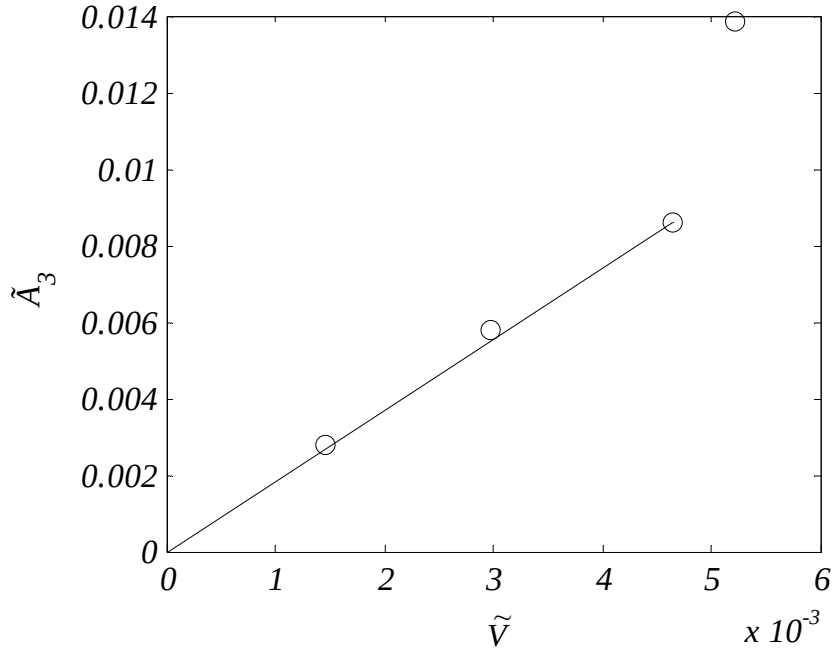

Figure 3.7 Interface de type 1. Balayage en amplitude pour une fréquence de 47.62Hz

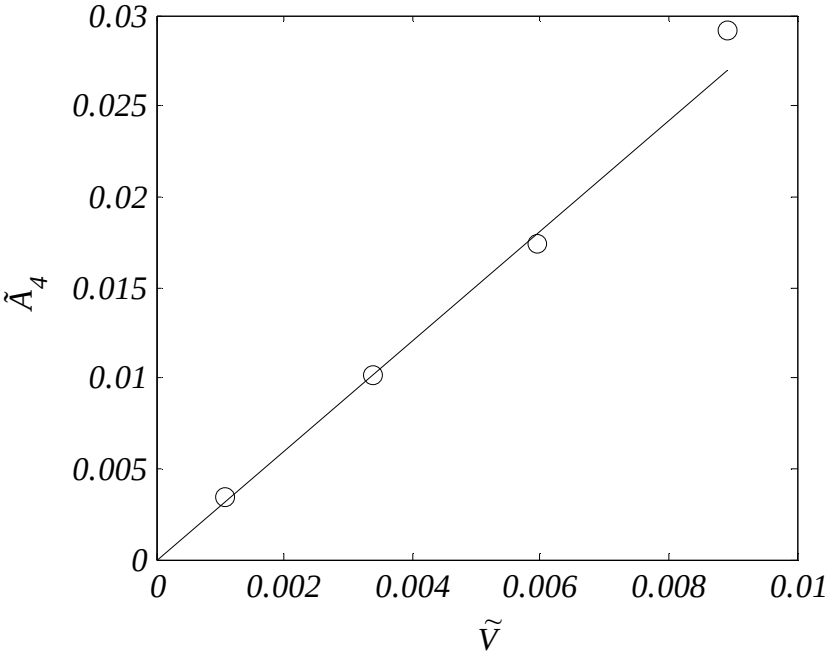

Figure 3.8 Interface de type 1. Balayage en amplitude pour une fréquence de 71.42Hz

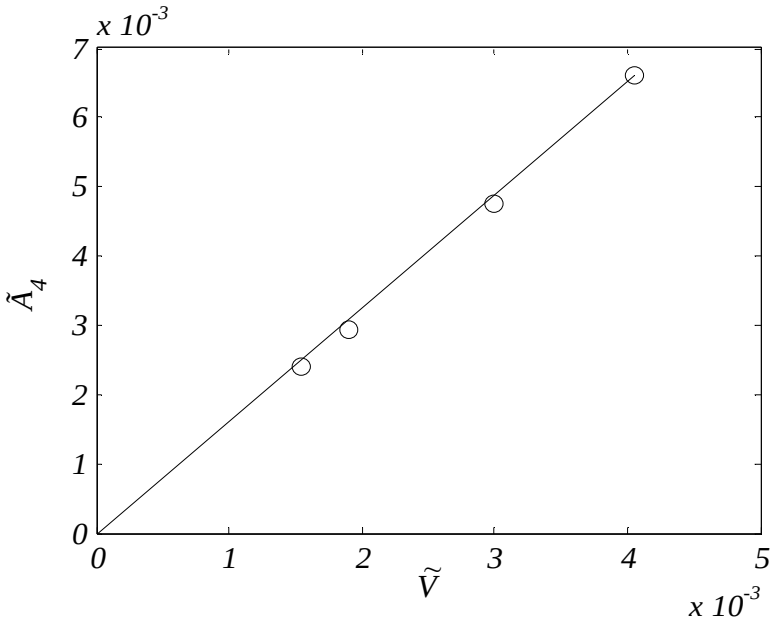

Figure 3.9 Interface de type 1. Balayage en amplitude pour une fréquence de 90.9Hz

L'examen des figures 3.5 à 3.9 permet de constater que la linéarité entre les $\tilde{A}_n$ et $\tilde{V}$ est assurée, dans un domaine d'amplitudes à définir. Nous constatons également qu'il est difficile de fixer un seuil d'amplitude volumique unique au dessous duquel $\tilde{A}_n(\tilde{V})$ est linéaire, étant donné que le facteur de proportionnalité entre $\tilde{A}_n$ et $\tilde{V}$ dépend de la fréquence imposée. Il est donc plus pertinent de définir un seuil d'amplitude $\tilde{A}_n$ pour chacune des 3 harmoniques

sphériques étudiées. Ces amplitudes-seuils sont présentées dans le tableau 3.4. Notons que pour une détermination plus précise des amplitudes-seuils, un nombre plus élevé d'essais serait nécessaire, les seuils que nous avons détectés pouvant être sous-estimés.

Tableau 3.4 Interface de type 1. Limites du domaine de linéarité de $\widetilde{A}_n(\widetilde{V})$ et incertitude sur les amplitudes normées

n	$\widetilde{A}_n^{\max}$	$\frac{\Delta(\widetilde{A}_n/\widetilde{V})}{\widetilde{A}_n/\widetilde{V}}$
2	$11.5\cdot10^{-3}$	9.3 %
3	$8.6\cdot10^{-3}$	2.2 %
4	$17.5\cdot10^{-3}$	4.0 %

Pour chacune des fréquences considérées ci-dessous, nous disposons de 3 ou 4 mesures équivalentes, si nous normalisons au préalable l'amplitude $\widetilde{A}_n$ par $\widetilde{V}$. Nous pouvons alors déterminer l'incertitude de l'amplitude normalisée $\frac{\Delta(\widetilde{A}_n/\widetilde{V})}{\widetilde{A}_n/\widetilde{V}}$. Cette incertitude est définie comme étant le rapport entre l'écart-type et la moyenne des valeurs de $\widetilde{A}_n/\widetilde{V}$, pour chaque valeur de la fréquence (tableau 3.4). Les valeurs élevées de l'incertitude sont dues principalement à la difficulté de maîtriser le volume moyen de la goutte, celle-ci étant formée manuellement à l'aide d'une seringue. En effet, la réponse de l'interface aux sollicitations périodiques dépend de la taille de la goutte. Une automatisation de l'injection permettrait d'améliorer sensiblement la précision des mesures.

3.2 Interface de type 2

Pour l'interface de type 2A, nous avons effectué un balayage d'amplitude aux fréquences 20.83 et 83.33Hz.

Les figures 3.10 et 3.11 montrent que $\widetilde{A}_n(\widetilde{V})$ est linéaire pour les fréquences considérées. A l'exception de l'harmonique sphérique 2 à la fréquence de 20.82Hz, les amplitudes mesurées sont inférieures aux amplitudes-seuils définies pour l'interface de type 1.

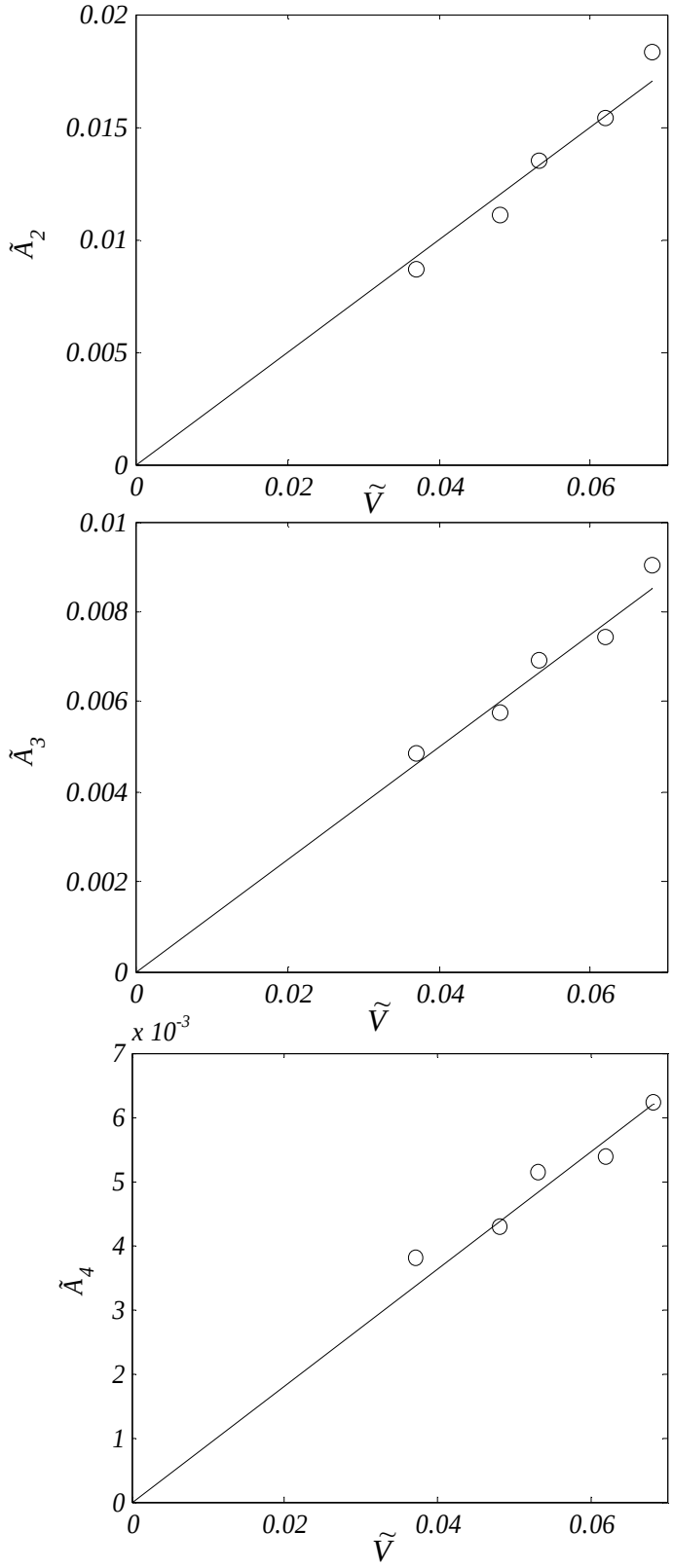

Figure 3.10 Interface de type 2A. Balayage en amplitude pour une fréquence de 20.83Hz

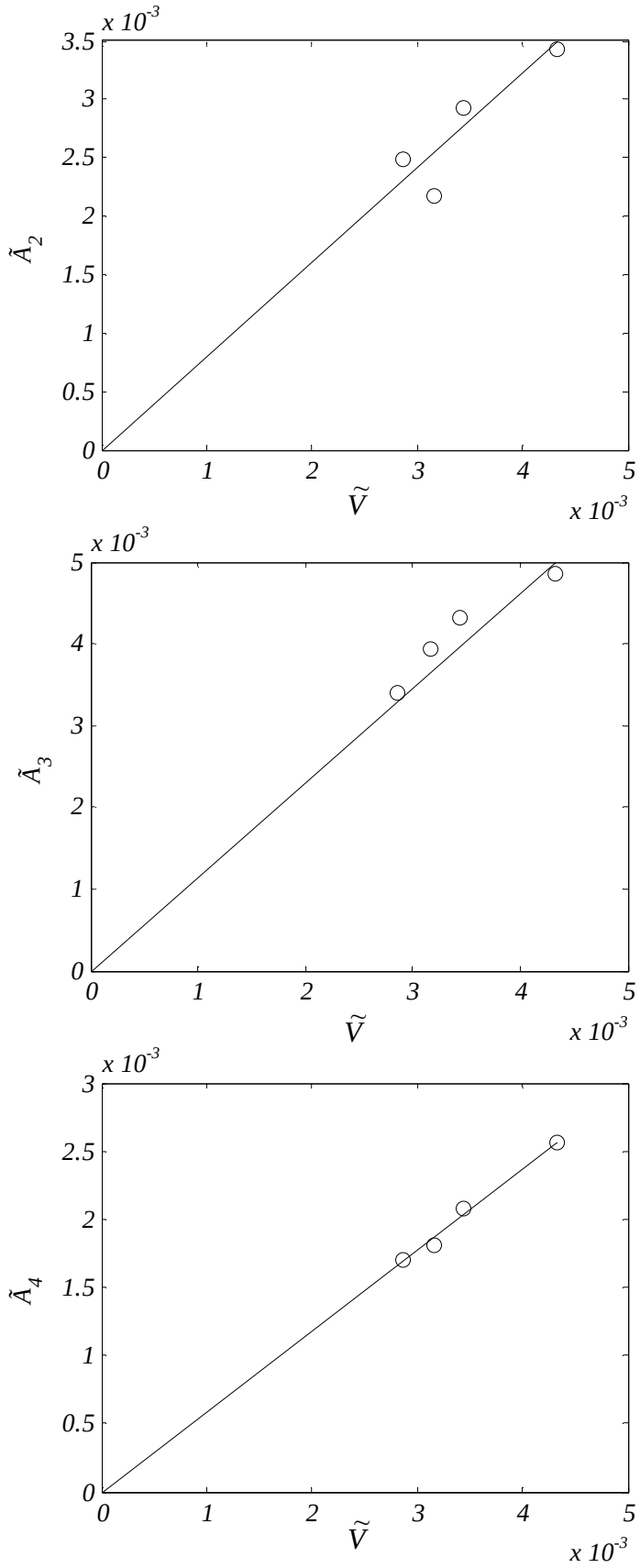

Figure 3.11 Interface de type 2A. Balayage en amplitude pour une fréquence de 83.33Hz

4 Réponse en fréquence : Résultats et discussion

4.1 Interfaces de type 1

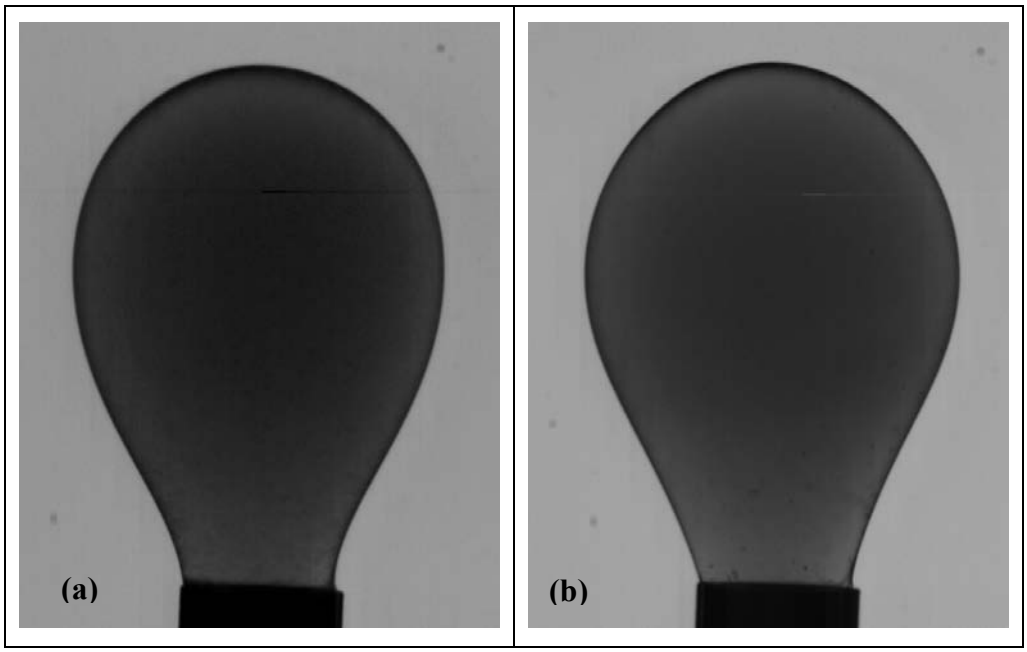

Figure 3.12 Interface de type 1. Images de la goutte oscillant à des fréquences de (a) 1Hz et (b)66.67Hz

La figure 3.13 présente la consigne d'amplitude imposée à la membrane piézoélectrique (en unités relatives) ainsi que l'amplitude de la variation volumique correspondante $\widetilde{V}$, mesurée à partir des contours des gouttes. Comme pour le cas de l'interface non contaminée, la consigne est diminuée au fur et à mesure que la fréquence imposée s'approche de la fréquence de résonance de la membrane. Les amplitudes des harmoniques sphériques 2, 3 et 4 sont représentées sur la figure 3.14. Les lignes brisées horizontales représentent pour chacune des harmoniques sphériques étudiées, le seuil d'amplitude au dessous duquel la relation $\widetilde{A}_n(\widetilde{V})$ est linéaire.

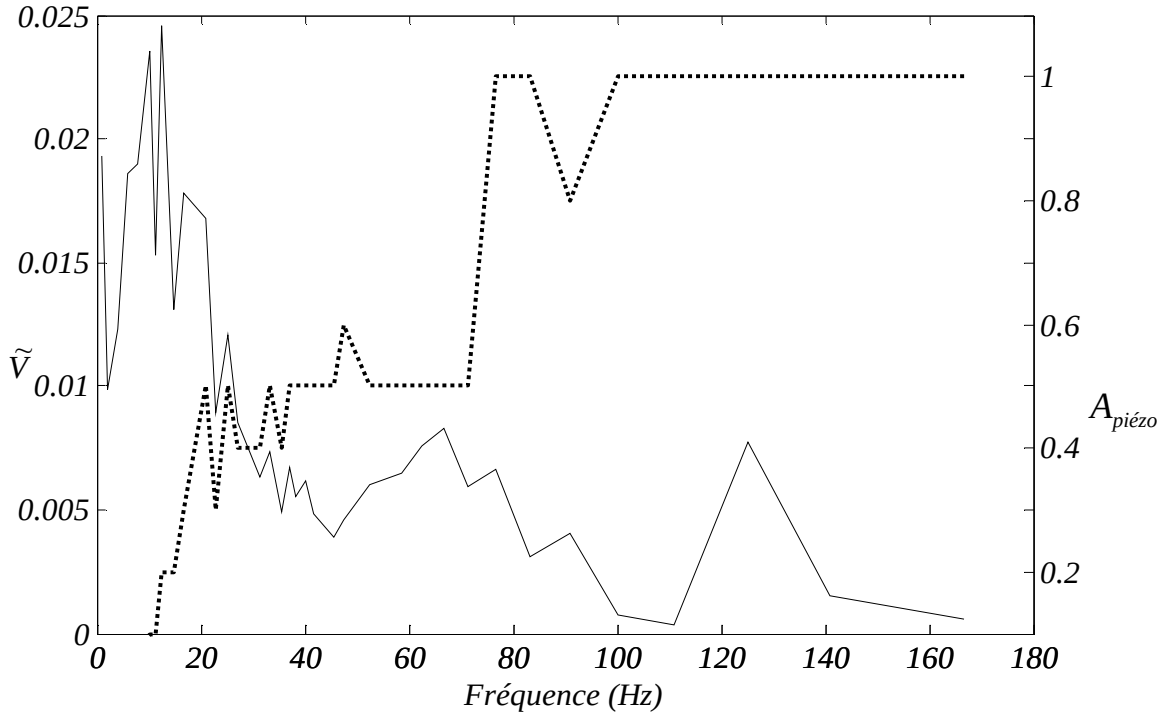

Figure 3.13 Consigne d'amplitude de la membrane piézoélectrique (..), amplitude de la variation de volume $\tilde{V}$ correspondante(-). Interface de type 1.

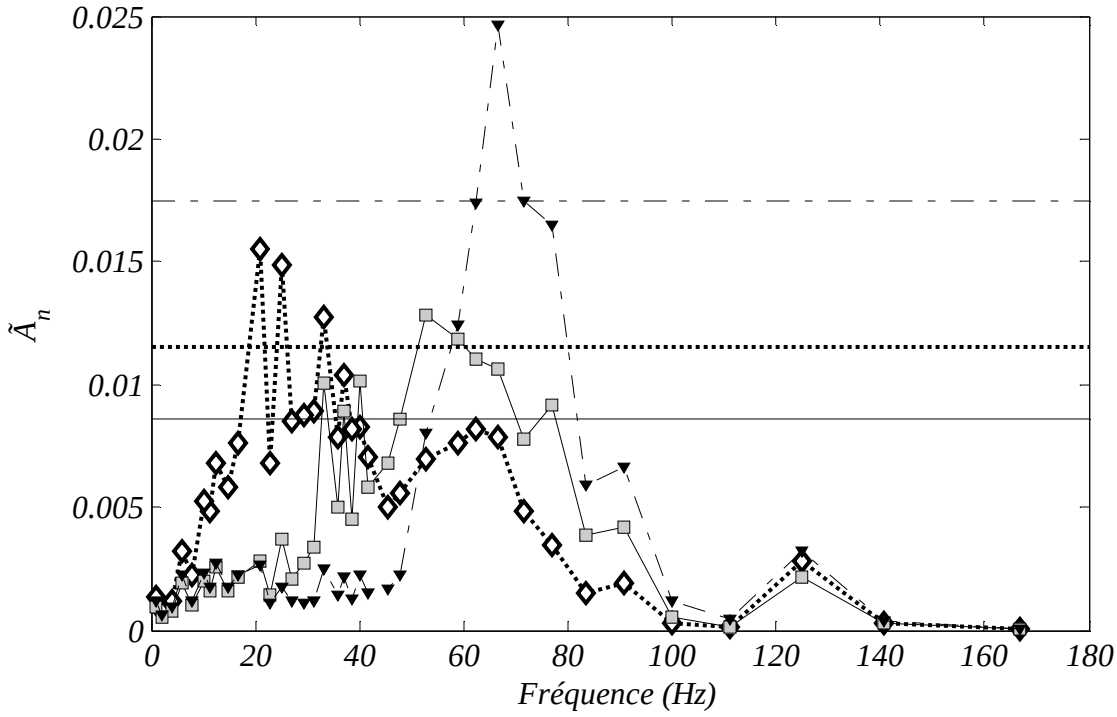

Figure 3.14 Amplitude des harmoniques sphériques $\tilde{A}_n$ en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). Les lignes horizontales indiquent la limite du domaine de linéarité de $\tilde{A}_n(\tilde{V})$. Interface de type 1.

Nous observons alors que certaines amplitudes mesurées n'appartiennent pas au domaine de linéarité défini ci-dessus. Cela est dû, entre autres, au fait que de nouveaux pics de résonance de la membrane piézoélectrique sont apparus. La présence de ces pics introduit une erreur dans le tracé des amplitudes normalisées par $\widetilde{V}$, qui est présenté sur la figure 3.15. Les points n'appartenant pas au domaine de linéarité y sont représentés à l'aide du symbole correspondant, entouré par un cercle. La suppression de ces points litigieux n'apporte pas de modification drastique à l'allure des courbes de résonance.

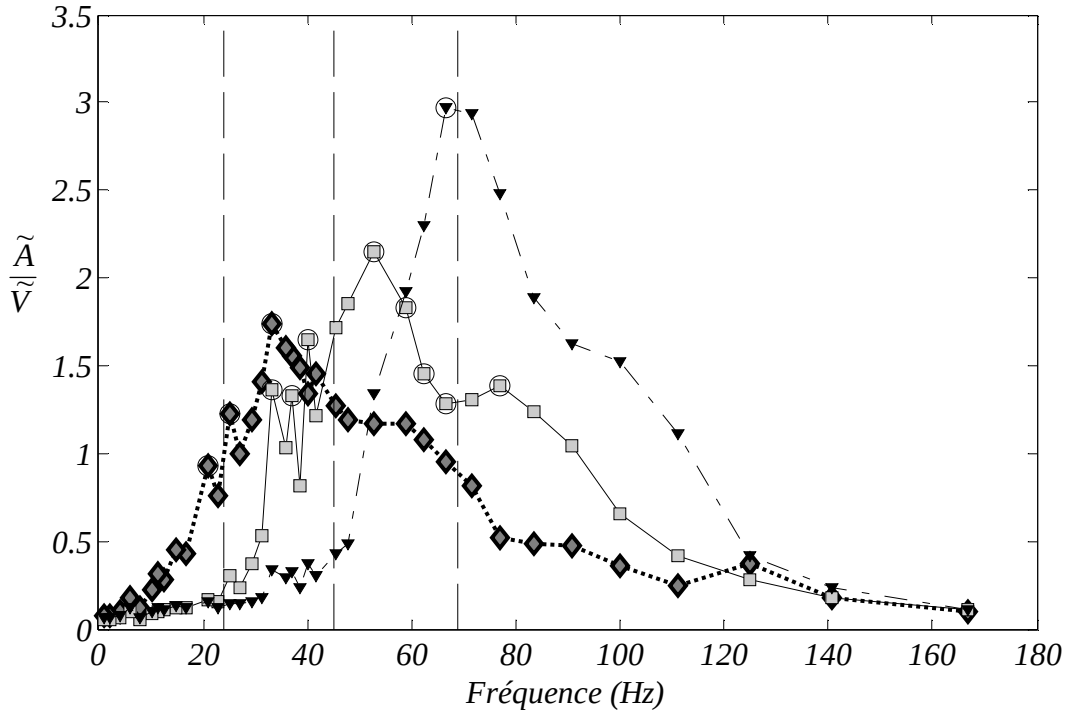

Figure 3.15 Amplitude normée des harmoniques sphériques $\widetilde{A}_n/\widetilde{V}$, en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). Les lignes verticales correspondent aux fréquences propres théoriques des modes 2, 3 et 4 (par ordre des fréquences croissant). Les cercles (o) les cas où l'amplitude $\widetilde{A}_n$ est supérieure à la limite de linéarité. Interface de type 1.

Une première observation de la figure 3.15 permet de constater que les 3 courbes de résonance qui sont représentées, ont des rapports largeur/hauteur plus élevés que ceux des pics de résonance d'une interface non contaminée (heptane / eau). Le chevauchement entre les 3 courbes est important, ce qui rend difficile l'analyse individuelle de chacune. En outre, nous constatons l'absence de pics secondaires aux fréquences de résonance, chacun des 3 modes semble être représenté par une seule harmonique sphérique. Ce constat est confirmé par la figure 3.16 qui montre que les déphasages par rapport au forçage évoluent indépendamment l'un de l'autre, contrairement au cas de l'interface non contaminée. Pour chacune des 3

harmoniques sphériques, $\Delta\varphi_n \approx \pi/2$ lorsque la fréquence imposée se rapproche de la fréquence de résonance du mode *n*, un comportement caractéristique d'un oscillateur linéaire forcé.

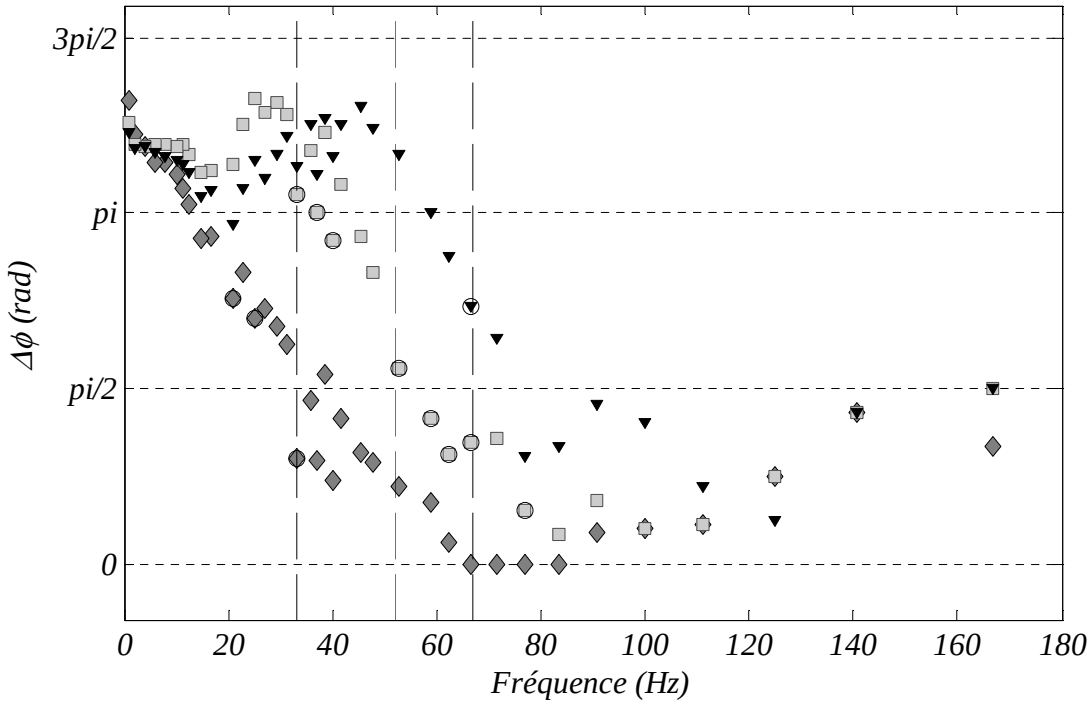

Figure 3.16 Déphasage $\Delta\varphi_n$ des signaux des harmoniques sphériques par rapport au signal de variation de volume, en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). Les lignes verticales correspondent aux fréquences de résonance expérimentales des modes 2, 3 et 4 (par ordre des fréquences croissant). Les cercles (o) indiquent les cas où l'amplitude $\widetilde{A}_n$ est supérieure à la limite de linéarité. Interface de type 1.

Si l'on admet que les déformations sont dans le domaine linéaire, comme l'indique la relation entre les amplitudes des harmoniques sphériques et l'amplitude du forçage en volume ainsi que le caractère sinusoïdal des amplitudes mesurées, les modes observés doivent être indépendants. Dans cette hypothèse, et bien que les courbes de résonance se superposent du fait du grand amortissement des oscillations, les différents modes n'échangent pas d'énergie et peuvent donc être étudiés séparément.

Tableau 3.5 Valeurs expérimentales et théoriques des pulsations et taux d'amortissement. Les valeurs théoriques sont obtenues pour des interfaces non contaminées. Interface de type 1.

n	ω_{exp} (résonance)	$\omega_{théo}$ (Lamb)	β_{exp}	$\beta_{théo}$ (sans surfactants, Lu et Apfel)
2	209	150	33.84	5.67
3	330	282	42.5	10.70
4	420	431	67.2	16.87

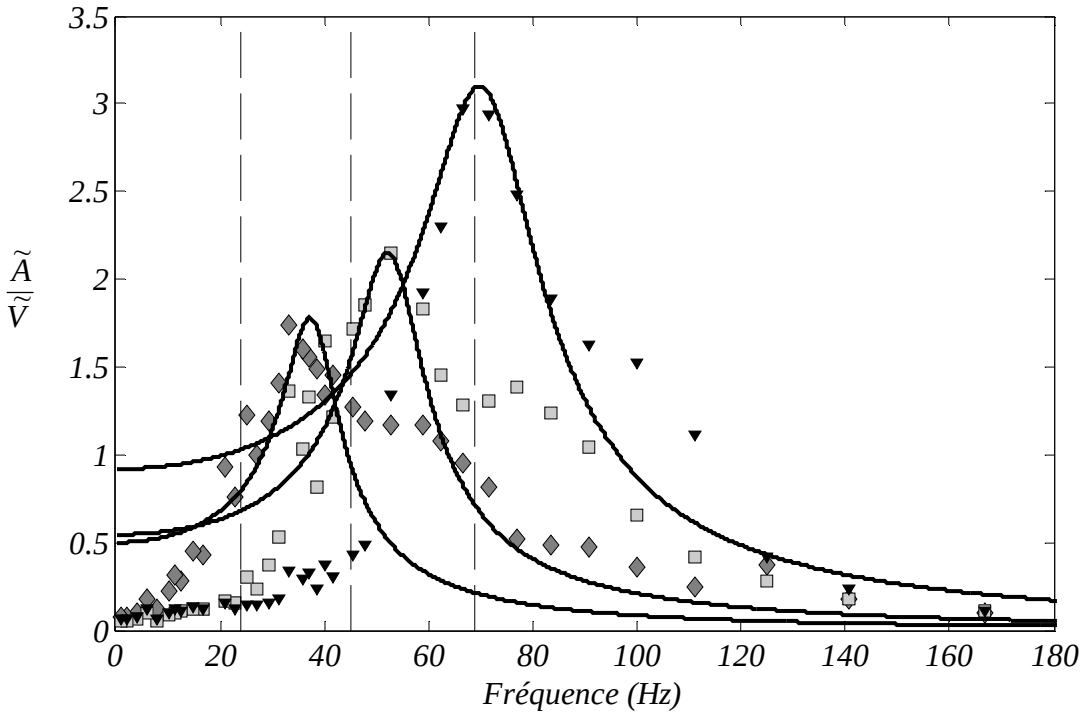

Figure 3.17 Amplitude normée des harmoniques sphériques $\tilde{A}_n/\tilde{V}$ en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). Les lignes continues correspondent au modèle de l'oscillateur harmonique forcé établi à l'aide des valeurs expérimentales (tableau 3.5). Interface de type 1.

L'analyse individuelle des courbes de résonance de chaque mode nous éclaire sur la dynamique de l'interface. Tout d'abord, on constate que les courbes de résonances ne sont plus symétriques autour de leur maximum. Pour un oscillateur harmonique, cela traduit généralement le fait que les paramètres de l'oscillateur, fréquence propre et/ou taux d'amortissement, ne sont pas indépendants de la fréquence d'excitation. L'approximation des courbes par un oscillateur harmonique à coefficients constants est dans ces conditions assez grossières. Elle permet néanmoins de déterminer les ordres de grandeur des fréquences propres et des taux d'amortissement des modes, et de fournir ainsi des éléments de réponse

sur la rhéologie de l'interface, sans toutefois prétendre à une mesure quantitative des propriétés rhéologiques. Nous constatons tout d'abord que les fréquences de résonance mesurées sont supérieures à celles calculées par la théorie de Rayleigh-Lamb, en particulier pour le mode 2, mais restent comparables à ces dernières. La force de rappel de l'interface reste donc, principalement, la tension interfaciale, comme pour une interface eau/heptane non contaminée. D'autre part, comme nous l'avons mentionné au début de ce paragraphe, le rapport largeur/hauteur de des courbes de résonance est plus élevé que dans le cas de l'interface non contaminée, ce qui indique un amortissement plus fort. Les valeurs des taux d'amortissement estimées sont au moins 4 à 6 fois plus élevées que celles prédites par la théorie (Lu et Apfel 1991, cf. chapitre 1), pour une interface liquide-liquide en l'absence de surfactants. Bien qu'il ne s'agisse que d'ordres de grandeur, nous pouvons conclure que la présence des surfactants à l'interface conduit à l'augmentation du taux d'amortissement, et donc de la puissance dissipée.

- **Origine et lieu de la dissipation**

Nous avons abordé, dans le chapitre précédent, la question de la dissipation au cours des oscillations pour une interface non contaminée. Deux sources de dissipation sont à l'origine de l'amortissement: d'une part la dissipation visqueuse de l'écoulement à l'intérieur et à l'extérieur de la goutte, en dehors des couches limites et, d'autre part la dissipation visqueuse de l'écoulement de couche limite de part et d'autre de l'interface. Dans le cas du système heptane / eau, pour des goutte millimétriques, la contribution de la couche limite est majoritaire. Nos résultats sont en accord avec l'analyse théorique de Lu et Apfel (1991).

En présence de surfactants, nous avons observé une augmentation importante du taux d'amortissement. A quel niveau du système se produit cette dissipation supplémentaire ? Une première hypothèse est celle d'une dissipation à l'interface, due à la viscosité interfaciale, qu'elle soit intrinsèque ou qu'elle soit le résultat de la relaxation par diffusion – adsorption. Dans ce cas l'interface est traitée comme une phase à part entière, et le système serait composé de 3 phases, une phase interne, une phase externe, et l'interface qui est une phase à 2 dimensions. La dissipation au sein de cette 3ème phase proviendrait alors du travail des forces de surface au cours des oscillations. Pour vérifier cette hypothèse, nous avons calculé le taux d'amortissement dû à cette dissipation de surface, en calculant la puissance moyenne dissipée au cours d'une période par les forces visqueuses de surface. Pour vérifier cette hypothèse, nous avons calculé le taux d'amortissement dû à une dissipation de surface, en supposant que les surfactants sont répartis de manière uniforme sur l'interface et que les oscillations

correspondent à des harmoniques sphériques purs (calcul détaillé en annexe). L'expression du taux d'amortissement interfacial, pour un mode d'ordre *n*, s'écrit alors

$$\beta_n^S = \frac{(n+1)n}{2(2n+1)} \cdot \frac{\eta_s}{(\rho_d(n+1)+\rho_c n)a^3} \cdot \widetilde{A}_n^{\,2}, \qquad (3.1)$$

où ρ_c, ρ_d sont les masses volumiques des phases externe et interne, respectivement, η_s la viscosité interfaciale et *a* le rayon de la goutte non déformée. β_n^S est proportionnel à $\widetilde{A}_n^{\,2}$, le carré de l'amplitude du mode *n*. Afin d'en évaluer l'ordre de grandeur, nous nous proposons de calculer β_n^S pour la goutte de type 1 (3.73mm de diamètre), en choisissant comme amplitude $\widetilde{A}_3 = 0.025$, la valeur maximale atteinte, et qui correspond au mode 3 à la fréquence de 66.67Hz. Si nous considérons une viscosité $\eta_S = 0.05\, mN \cdot m^{-1}s$, obtenue par extrapolation de la courbe $\eta_S(f)$ présentée dans le chapitre 1, nous obtenons un amortissement β_S égal à $7 \cdot 10^{-4}\, s^{-1}$. Si nous majorons considérablement la viscosité interfaciale, en prenant par exemple $\eta_S = 100\, mN \cdot m^{-1}s$, nous obtenons un amortissement β_S égal à 1.43 s^{-1}. La dissipation à l'interface n'explique donc pas l'écart entre l'amortissement mesuré pour la goutte de type 2 et l'amortissement théorique d'un même système en l'absence de surfactants, cet écart étant estimé à $40s^{-1}$. L'interface ne peut donc pas être considérée comme une 3ème phase capable de dissiper de l'énergie de façon significative. La contribution de l'interface dans la dissipation provient de l'effet qu'elle exerce sur les écoulements de part et d'autre. En effet, comme dans le cas d'une interface non contaminée, la dissipation se fait principalement dans l'écoulement de couche limite. L'augmentation de la dissipation en présence de surfactants à l'interface est dû, selon Lu et Apfel (1991), à l'apparition d'une vorticité plus forte dans les couches limites. Cette augmentation de la vorticité est provoquée par le comportement viscoélastique de l'interface en présence de surfactants.

4.2 Interfaces de type 2

L'interface de type 2 simule une interface vieillie, qui comporte des surfactants adsorbés, notamment des agrégats d'asphaltènes, susceptibles de constituer un réseau. Rappelons que la principale différence entre les types 2A et 2B est le temps de contact entre la goutte et la phase externe avant le rétrécissement. Les amplitudes des harmoniques sphériques sont toutes inférieures aux seuils de linéarité définis dans le paragraphe 3.3 (à l'exception de $\widetilde{A}_2$ pour les fréquences 20.83, 22.7 et 27.03*Hz*, interface de type 2A).

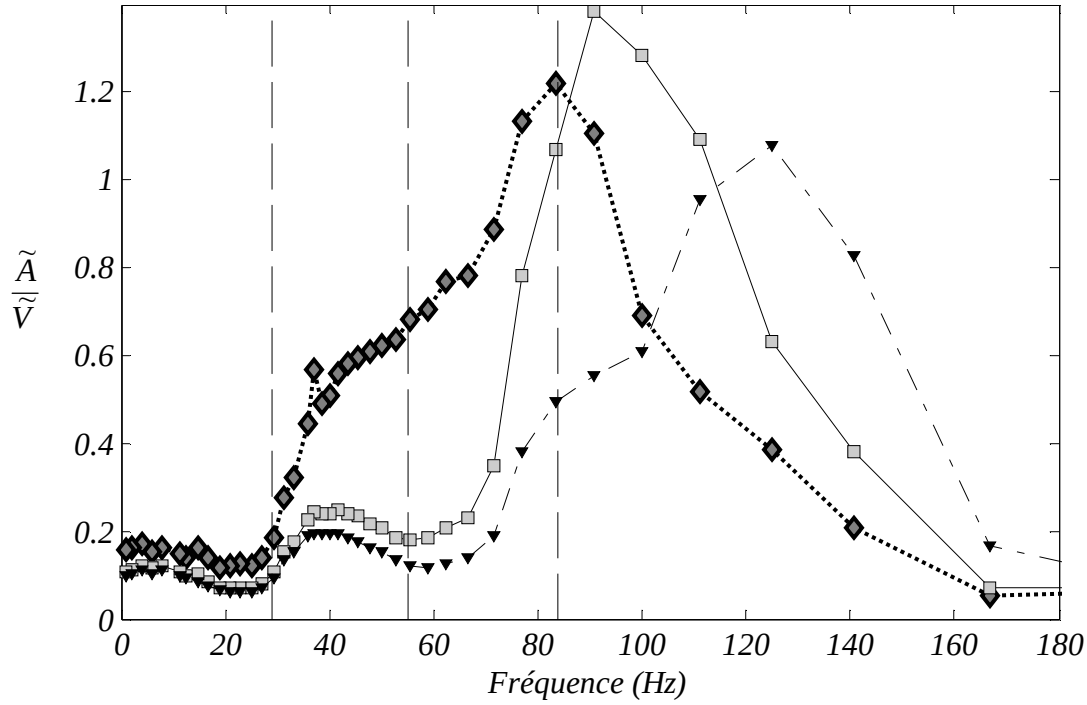

Figure 3.18 Amplitude normée des harmoniques sphériques $\tilde{A}_n/\tilde{V}$ en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◊), n=3 (☆) et n=4 (*). Les lignes verticales correspondent aux fréquences propres théoriques des modes 2, 3 et 4 (par ordre des fréquences croissant). Interface de type 2B.

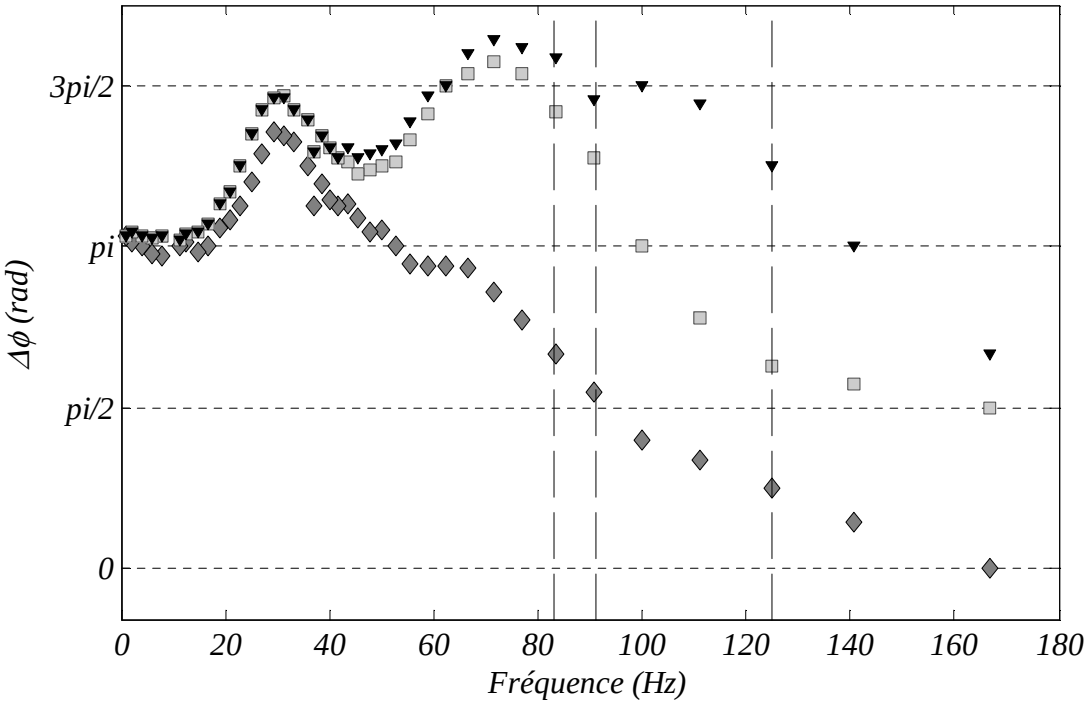

Figure 3.19. Déphasage $\Delta\varphi_n$ des signaux des harmoniques sphériques par rapport au signal de variation de volume, en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). Les lignes verticales correspondent aux fréquences de résonance expérimentales des modes 2, 3 et 4 (par ordre des fréquences croissant). Interface de type 2B.

La figure 3.18 présente les amplitudes des harmoniques sphériques 2, 3 et 4 normalisées par l'amplitude volumique, tracées en fonction de la fréquence imposée. Ce graphique peut être divisé en deux domaines de fréquences, avec 60Hz comme fréquence frontière.

La région des hautes fréquences comprend 3 pics de résonance, à 83, 91 et 125 Hz, correspondant aux harmoniques sphériques Y_2^0, Y_3^0 et Y_4^0, respectivement. Etant donnée l'absence de pics secondaires au niveau des fréquences de résonance, nous pouvons considérer que les modes propres sont confondus avec les harmoniques sphériques. L'évolution des phases à partir de 40 Hz semble le confirmer. .En effet, les déphasages par rapport au forçage évoluent indépendamment autour des 3 fréquences de résonance. Pour le mode 2, $\Delta\varphi_2 = \frac{\pi}{2}$ pour une fréquence égale à 92 Hz, proche de la fréquence de résonance (83 Hz). Les déphasages des modes 3 et 4 atteignent $\frac{\pi}{2}$ pour des fréquences supérieures aux fréquences de résonance respectives.

Contrairement au cas de l'interface de type 1, l'écart entre les fréquences de résonance et les fréquences propres théoriques est important. Il est égal à 54, 36 et 41 Hz pour les modes 2, 3 et 4, respectivement. Ce décalage de la résonance vers les hautes fréquences indique une modification des propriétés élastiques de l'interface. L'élasticité de Gibbs peut-elle expliquer un tel écart ? Cette dernière s'écrit, dans le cas de surfactants insolubles

$$E = \mathcal{A}_0 \frac{\Delta\sigma}{\Delta\mathcal{A}} \tag{3.2}$$

où σ est la tension interfaciale et $\mathcal{A}$ l'aire interfaciale. (A haute fréquence, nous pouvons considérer que les asphaltènes adsorbées se comportent comme des surfactants insolubles, car leur temps caractéristique d'adsorption, de l'ordre de $10^3 s$, est grand devant la période d'oscillation qui est de l'ordre de 10^{-2}s). Par suite, pour une goutte oscillante, la variation de la tension interfaciale au cours du temps s'écrit:

$$\Delta\sigma = E \frac{\Delta\mathcal{A}}{\mathcal{A}_0} \tag{3.3}$$

L'effet de l'élasticité E y est pondéré par la déformation $\frac{\Delta\mathcal{A}}{\mathcal{A}_0}$ qui, au cours d'une période d'oscillation, varie entre 0 et 1. Considérons le mode 3, sa fréquence de résonance est de 90 Hz. Si la force de rappel qui correspond à cette fréquence provient de la tension interfaciale,

cette dernière serait égale à 70 mNm^{-1}, ce qui constitue un écart de 45 mNm^{-1} par rapport à la tension interfaciale de la goutte au repos. Si cet écart était dû à l'élasticité de Gibbs, il varierait, au cours d'une période, entre 0 et 45 mNm^{-1} et la tension interfaciale varierait aussi de 45 mNm^{-1}. Une variation aussi élevée de la tension interfaciale au cours d'une période d'oscillation aurait conduit le système oscillant à sortir du régime linéaire. Or l'évolution temporelle des amplitudes ΔA_n produit des signaux sinusoïdaux, comme le montre la figure 3.20, pour la fréquence de résonance du mode 3 (90.9 *Hz*). Ces signaux correspondent donc bien à un oscillateur linéaire. La condition de linéarité est également vérifiée par la relation entre l'amplitude de l'harmonique sphérique et celle de la variation de volume. Par suite, l'élasticité de Gibbs ne permet pas d'expliquer le décalage en fréquence observé. La force de rappel qui régit les oscillations est constante et ne provient donc pas de la tension interfaciale. Cela confirme l'hypothèse selon laquelle les asphaltènes adsorbées forment un réseau bidimensionnel rigide à l'interface. A haute fréquence, ce réseau se comporte comme une membrane possédant sa propre élasticité et donne lieu à de nouveaux modes de résonance, qui se projettent également sur les harmoniques sphériques. La fréquence propre de ces nouveaux modes ne dépend pas de la tension interfaciale, mais de l'élasticité du réseau interfacial formé par les agrégats d'asphaltènes.

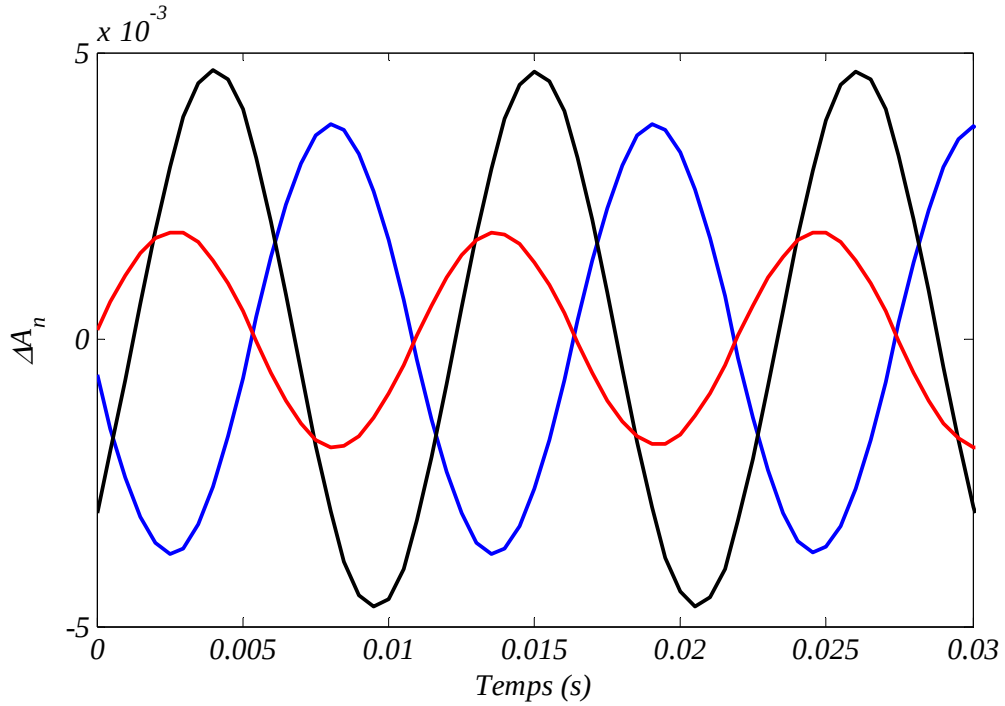

Figure 3.20. Evolution temporelle des amplitudes des harmoniques sphériques ΔA_n (partie fluctuante).
n=2 (bleu), n=3 (noir) et n=4 (rouge). Fréquence d'oscillation 90.9Hz. Interface de type 2B.

Les mêmes tendances sont observées dans le cas de l'interface de type 2A (figures 3.21 et 3.22). L'écart entre les fréquences expérimentales et théoriques (calculées à l'aide de la tension interfaciale), est moins important que pour l'interface 2B, ce qui traduit une élasticité de réseau interfacial plus faible. En effet, le temps de vieillissement avant rétrécissement est plus court dans le cas de la goutte 2A, le réseau interfacial y est donc moins dense.

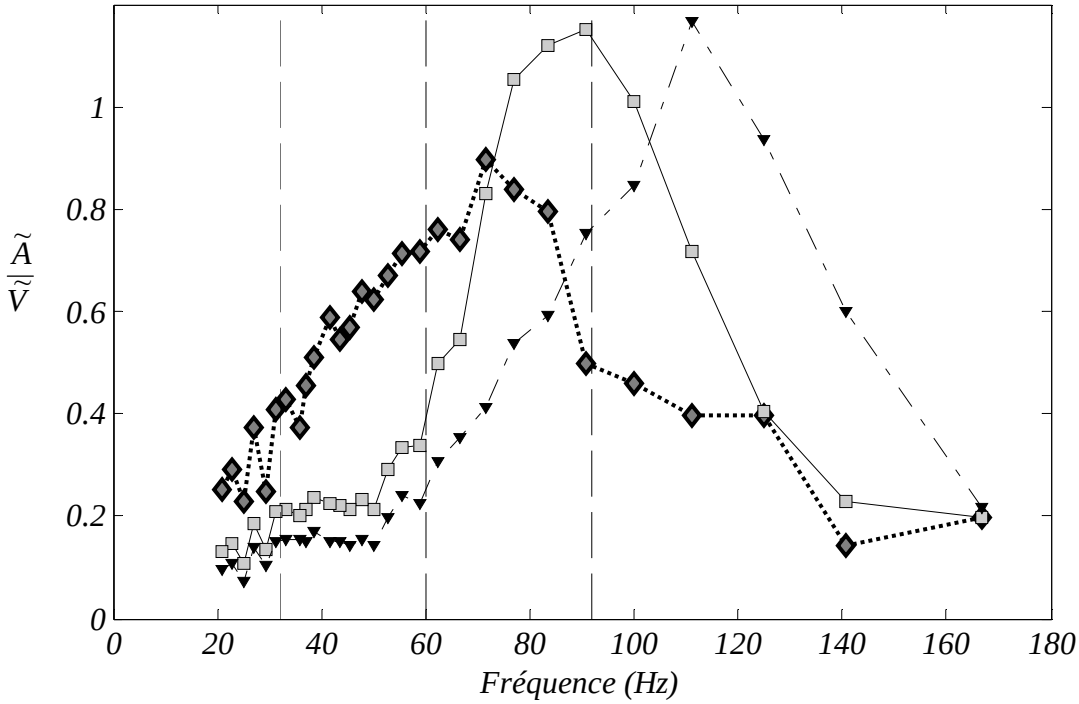

Figure 3.21 Amplitude normée des harmoniques sphériques $\tilde{A}_n/\tilde{V}$ en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). Les lignes verticales correspondent aux fréquences propres théoriques des modes 2, 3 et 4 (par ordre des fréquences croissant). Interface de type 2A.

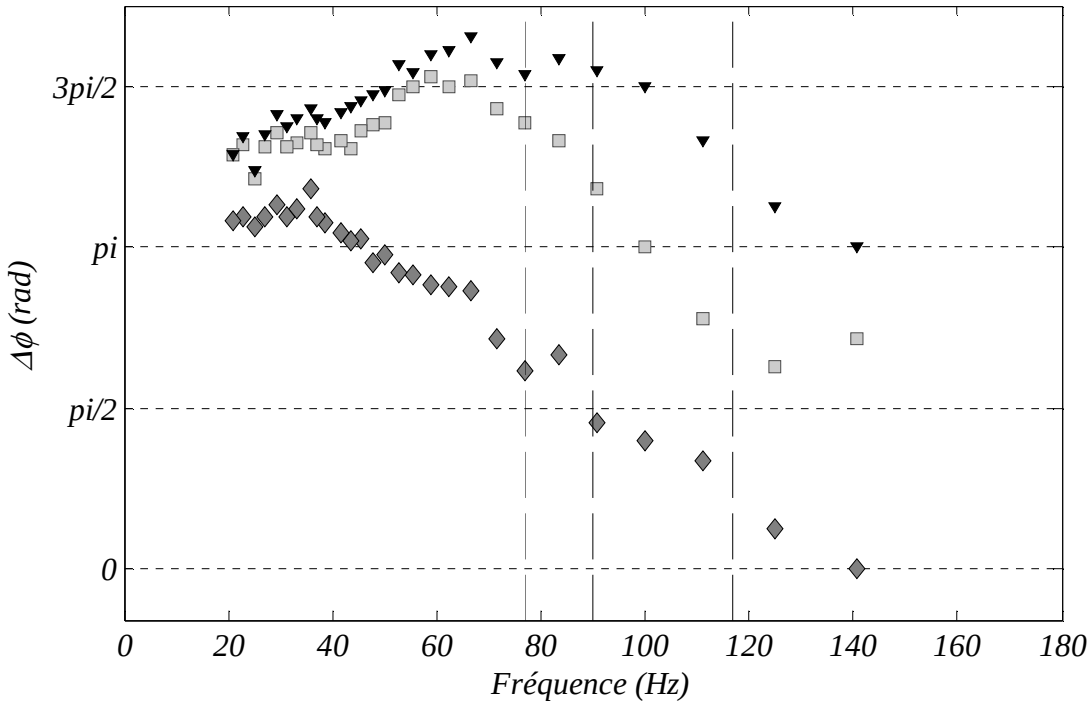

Figure 3.22 Déphasage $\Delta\varphi_n$ des signaux des harmoniques sphériques par rapport au signal de variation de volume, en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). Les lignes verticales correspondent aux fréquences de résonance expérimentales des modes 2, 3 et 4 (par ordre des fréquences croissant). Interface de type 2A.

Comme dans le cas de l'interface de type 1, les taux d'amortissement des modes sont plus élevés que dans le cas d'une interface non contaminée. Bien que la courbes de résonance de chaque mode ne soit pas tout à fait symétrique nous avons estimé l'ordre de grandeur des taux d'amortissement pour chacun des modes en ajustant la réponse d'un oscillateur à coefficients aux points expérimentaux (figures 3.23 et 3.24). Ils sont présentés dans les tableaux 3.6 et 3.7.

Tableau 3.6 Valeurs expérimentales et théoriques des pulsations et taux d'amortissement. Les valeurs théoriques sont obtenues pour des interfaces non contaminées. Interface de type 2B. d=3.27mm.

n	$\omega_{\exp}$ (résonance) (rad.s^{-1})	$\omega_{théo}$ (Lamb) (rad.s^{-1})	$\beta_{\exp}$ (s^{-1})	$\beta_{théo}$ (sans surfactants, Lu et Apfel) (s^{-1})
2	509	183	86	7.17
3	616	345	81	13.53
4	773	525	100	21.35

Tableau 3.7 Valeurs expérimentales et théoriques des pulsations et taux d'amortissement. Les valeurs théoriques sont obtenues pour des interfaces non contaminées. Interface de type 2A. d=3.07mm.

n	$\omega_{\exp}$ (résonance) (rad.s^{-1})	$\omega_{théo}$ (Lamb) (rad.s^{-1})	$\beta_{\exp}$ (s^{-1})	$\beta_{théo}$ (sans surfactants, Lu et Apfel) (s^{-1})
2	471	202	120	8.03
3	569	379	95	15.15
4	735	556	110	23.89

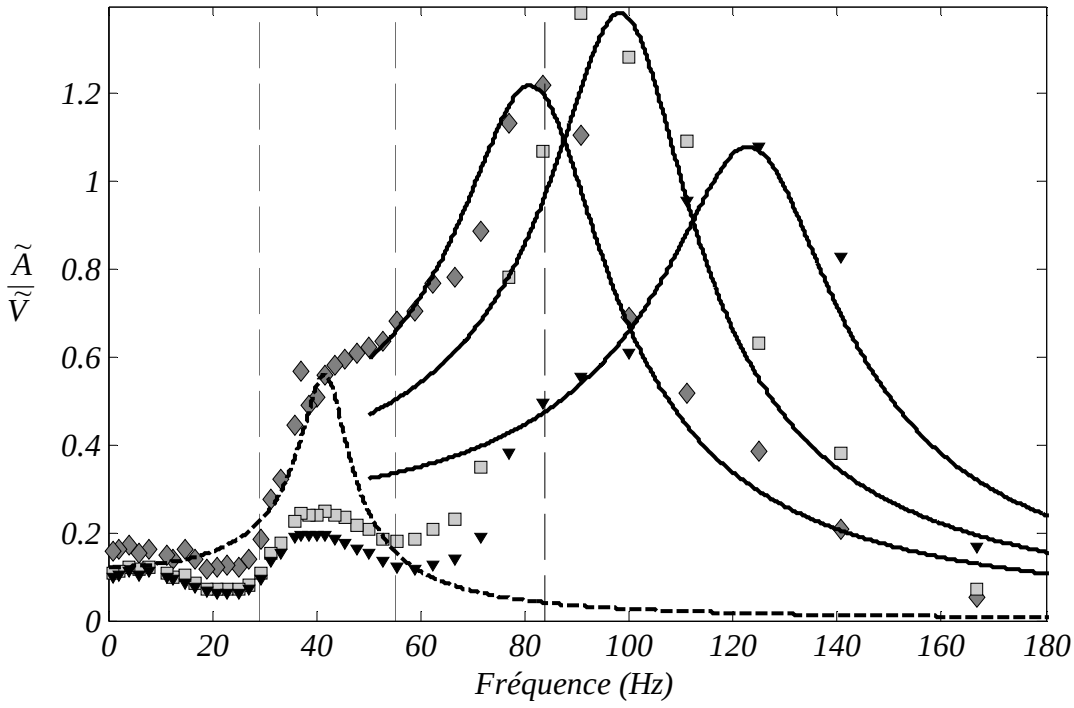

Figure 3.23 Amplitude normée des harmoniques sphériques $\tilde{A}_n/\tilde{V}$ en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). Les lignes continues correspondent au modèle de l'oscillateur harmonique forcé établi à l'aide des valeurs expérimentales (tableau 3.6). Interface de type 2B.

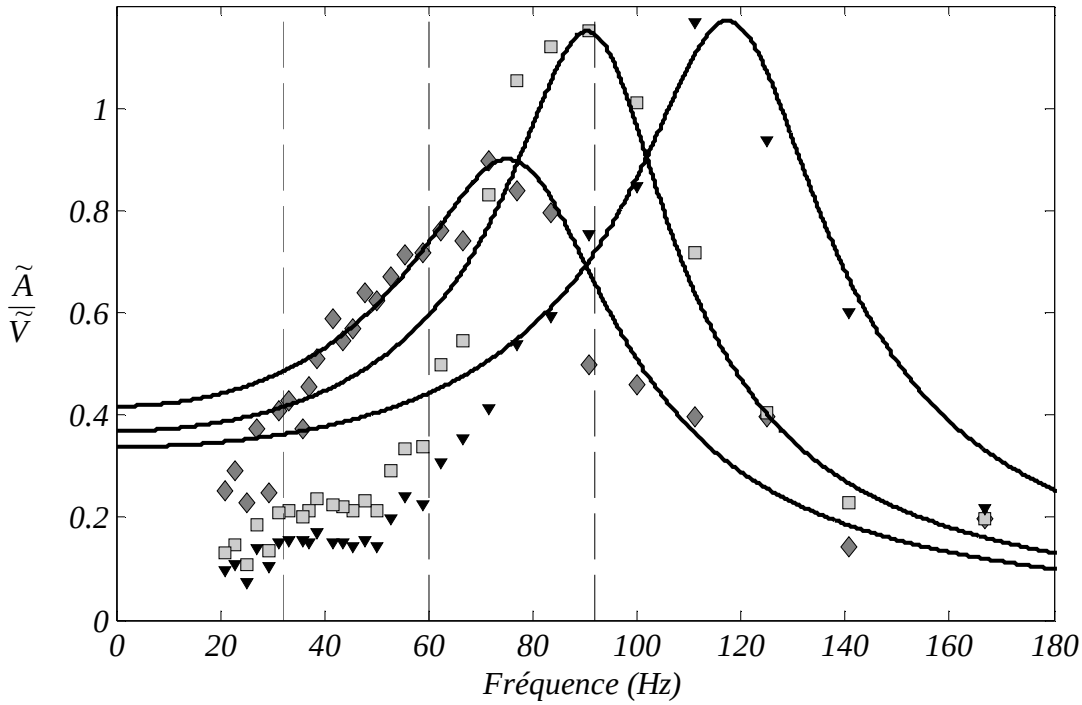

Figure 3.24 Amplitude normée des harmoniques sphériques $\tilde{A}_n/\tilde{V}$, en fonction de la fréquence imposée. n=2 (◆), n=3 (■) et n=4 (▼). Les lignes continues correspondent au modèle de l'oscillateur harmonique forcé établi à l'aide des valeurs expérimentales (tableau 3.7). Interface de type 2A.

- **Comportement dans le domaine des basses et moyennes fréquences (interface 2B)**

Le domaine des basses et moyennes fréquences ($f \leq 60Hz$) de la Figure 3.23 comporte un mode d'oscillation supplémentaire, pour une fréquence de résonance de 42Hz. Ce mode se projette principalement sur l'harmonique sphérique Y_2^0, avec une contribution de plus faible amplitude des harmoniques Y_3^0 et Y_4^0 qui se manifeste par la présence de pics ou plutôt de bandes secondaires. La fréquence de résonance de ce mode se situe entre les fréquences théoriques des modes 2 et 3 (pour une goutte non attachée). Il s'agit donc d'un mode d'oscillation dont la force de rappel provient de la tension interfaciale. Il semble donc que, pour des valeurs moyennes de la fréquence, l'interface est toujours maîtrisée par la tension interfaciale, tandis qu'à des fréquences plus élevées, elle se comporte comme une membrane solide élastique. Cela se traduit par la présence, pour une même interface de deux types de modes, ceux régis par la tension interfaciale et ceux régis par une élasticité solide. La

présence de deux pics de résonance distincts pour un même harmonique sphérique, et donc vraisemblablement pour un même mode, suggère que les paramètres dynamiques de l'interface dépendent de la fréquence du forçage. A fréquence modérée, la tension interfaciale semble encore dominer la dynamique et régit donc la valeur de la fréquence propre de la goutte. En revanche, à fréquence élevée l'interface se rigidifie et la fréquence propre est imposée par une élasticité analogue à celle d'un matériau solide.

Notons que parmi les modes régis par la tension interfaciale, seul le premier est visible ici. Les modes d'ordre supérieur résonnent à des fréquences plus élevées pour lesquelles le réseau interfacial se comporte déjà comme un solide élastique. Il est donc impossible de les observer. Considérons à titre d'exemple le mode 3, régi par la tension interfaciale. La résonance de ce mode devrait se situer autour de 50 Hz (2ème ligne verticale Figure 3.23). Or à partir de cette fréquence nous assistons à l'apparition du mode 2 régi par l'élasticité solide. Par suite, à des fréquences supérieures à 50 Hz, le réseau interfacial se comporte comme un solide élastique, et le mode 3 régi par la tension interfaciale ne peut être observé

5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une étude exploratoire de la dynamique des oscillations de gouttes en présence de surfactants. Deux types d'interface sont caractérisés. L'interface de type 1 est peu vieillie (20 min de contact entre les phases). Les asphaltènes qui y sont adsorbées lui confèrent des propriétés viscoélastiques. Ces dernières n'ont pas d'effet significatif sur les fréquences de résonance, la force de rappel de la goutte-oscillateur provient de la tension interfaciale, comme dans le cas d'une interface non contaminée. Cependant, le comportement viscoélastique de l'interface conduit à une augmentation de la vorticité dans les écoulements de couche limite. Cela se traduit par une plus forte dissipation qui conduit à des taux d'amortissement plus élevés. On remarque aussi que les courbes de résonances sont dissymétriques, ce qui signifie les paramètres des modes propres dépendent de l'échelle de temps à laquelle l'interface est excitée.

Dans le cas de l'interface de type 2, la goutte a été comprimée afin de simuler un vieillissement prolongé et de forcer la constitution, par les agrégats d'asphaltènes, d'un réseau interfacial élastique. Les courbes de résonance des oscillations de surface ont permis de mettre en évidence la présence de ce réseau. En effet, les fréquences de résonance mesurées

sont très élevées par rapport aux fréquences théoriques, calculées à partir de la tension interfaciale de la goutte au repos. Les modes d'oscillation principaux détectés ne sont donc plus régis par la tension interfaciale, mais par l'élasticité du réseau qui se forme à l'interface.

Au cours de ce travail, nous avons été confrontés à deux types de difficultés. La première concerne l'absence d'une boucle de régulation automatique du volume de la goutte ; elle a rendu impossible la réalisation d'un vrai vieillissement de l'interface. Bien qu'elle conduise à la mise en évidence de la formation d'un réseau élastique à l'interface, la compression de l'interface que nous avons effectuée, ne permet pas de rendre compte des conditions de formation dudit réseau. La maîtrise du vieillissement de l'interface pourrait répondre à certaines interrogations, comme celle de savoir à partir de quel âge d'interface se forme le réseau, et de vérifier si les deux types de modes (tension interfaciale et élasticité de réseau) peuvent réellement coexister, par exemple pour des temps de vieillissement modérés. La seconde difficulté provient de la nature même de l'interface. Les modes d'oscillation observés sont fortement amortis, les courbes de résonance présentent des zones de chevauchement importantes et ne sont plus symétriques. On observe même deux pics de résonance distincts pour un harmonique donné dans le cas de l'interface artificiellement vieillie. Même en supposant que les modes restent indépendants, on ne peut plus les décrire les interfaces contaminées à l'aide d'oscillateurs à coefficients constants. Les résultats obtenus ne sont pas suffisants pour établir un modèle de cette évolution des paramètres avec la fréquence de forçage. Nous avons néanmoins été en mesure de proposer des estimations des fréquences propres et des taux d'amortissement qui, étant très fortement contrastées entre les différents cas étudiés, nous ont permis de tirer des conclusions claires concernant les effets majeurs des surfactant contenus dans le brut de pétrole.

Nous avons mis en évidence l'existence de deux types d'interfaces. Le premier type est correspond à une interface d'âge modéré, dont la dynamique est maîtrisée par la tension interfaciale. Ce type d'interface manifeste des effets viscoélastiques qui provoquent une augmentation de l'amortissement par modification des écoulements des couches limites. Le deuxième type est celui d'interfaces suffisamment âgées pour qu'un réseau s'y développe. Le comportement dynamique de ce réseau dépend de la fréquence d'oscillation. A des fréquences modérées, ce comportement est celui d'une interface viscoélastique régie par la tension interfaciale et s'apparente à celui d'interfaces du premier type tandis qu'à haute fréquence, la dynamique des interfaces du second type est maîtrisée par une élasticité solide et se traduit par l'apparition de modes résonnant à des fréquence plus élevées.

La méthode de caractérisation que nous présentons permet ainsi de décrire la dynamique interfaciale de tout système liquide-liquide en présence de surfactants, même lorsque les propriétés physicochimiques ne sont pas connues.

Enfin, cette étude fournit des éléments nouveaux en ce qui concerne l'analyse dynamique de la déformation et la rupture en écoulement turbulent. En effet, les modèles dynamiques de rupture associent à chaque goutte une unique fréquence d'oscillation ainsi qu'un unique taux d'amortissement, en général ceux du mode 2 qui est le moins amorti (Risso et Fabre, 1998, Galinat et al 2006). Cette approche est pertinente lorsque les courbes de résonances des modes propres présentent des pics étroits et se chevauchent très peu les unes avec les autres, comme celles observées dans le chapitre précédent. Cependant, en présence de surfactants, nous avons constaté que plusieurs modes d'oscillation coexistent sur une large gamme de fréquences. Pour ces gouttes-là, le modèle de rupture ne pourra pas se contenter du seul mode 2, mais devra au moins considérer les modes 2, 3 et 4. Enfin, puisque la déformation n'est plus dominée par le mode 2, mais fait apparaître des modes d'ordres supérieurs, nous nous attendons à ce que la goutte déformée adopte des formes plus complexes. Cela devrait se traduire par une augmentation du nombre de fragments et de la polydispersité de la distribution des tailles des gouttes-filles.

4 Oscillations libres de gouttes en ascension dans une phase continue stagnante

1 Introduction

Nous avons présenté, dans les chapitres précédents, une méthode de caractérisation de la dynamique interfaciale à haute fréquence d'une goutte pendante oscillante pour différents systèmes liquide-liquide. Cette méthode a permis d'identifier les principaux modes d'oscillation des gouttes et d'en déterminer les fréquences d'oscillation et les taux d'amortissement. Lors de ces mesures, la goutte restait attachée au capillaire à travers lequel était transmise la sollicitation, sous la forme d'une variation sinusoïdale du volume. Le mouvement d'ensemble de la goutte par rapport au fluide externe pouvait être négligé étant donné que le mouvement de translation du centre de la goutte était nul en moyenne et de faible amplitude (de l'ordre de 2.5% du diamètre de la goutte).

Cependant, les masses volumiques des phases continue et dispersée dans les écoulements liquide-liquide sont souvent différentes, ce qui conduit par flottabilité à l'apparition d'un mouvement relatif des gouttes par rapport à la phase continue. Il est donc important de caractériser l'incidence de ce mouvement relatif sur la dynamique des oscillations des gouttes.

Nous avons choisi d'étudier les oscillations d'une goutte en ascension libre dans une phase externe au repos. Il s'agit dans ce cas d'oscillations libres consécutives à la déformation initiale de la goutte lors de sa formation.

Cette campagne expérimentale a été réalisée à l'*Institute of Chemical Processes Fundamentals* à Prague, en collaboration avec Jiří Vejražka.

2 Système de phases

Comme pour l'étude des oscillations de gouttes pendantes, le système heptane/eau a été choisi. La phase externe est constituée d'eau ultrapure (Watrex Ultrapure system) tandis que la phase interne est constituée d'heptane de grade p.a.

Tableau 4.1. Propriétés physiques des fluides constituant le système de phases, à 20°C

	Eau	n-heptane
Masse Volumique $\rho(kg.m^{-3})$ (handbook of chemistry and physics)	998.21	684
Viscosité dynamique $\mu(Pa.s)$ (handbook of chemistry and physics)	$1\cdot10^{-3}$	$0.4\cdot10^{-3}$
Tension interfaciale $\sigma(N.m^{-1})$	$49\cdot10^{-3}$	

La tension interfaciale est mesurée par la méthode de l'anneau de du Noüy (tensiomètre Krüss K11) à 20°C, température à laquelle a été réalisée l'étude des oscillations libres

3 Dispositif expérimental et mode opératoire

Un système de génération de gouttes, développé à l'*Institute of Chemical Processes Fundamentals* à Prague permet de former des gouttes de taille maîtrisée et de les libérer dans la phase continue. Ce système, initialement conçu pour la génération de bulles (Vejrazka *et al,* 2008), a été adapté à l'étude de systèmes liquide-liquide. Il est constitué d'une cuve en verre et inox de 26cm de hauteur, ayant une section carrée de 11cm de côté. Le générateur de gouttes, situé au niveau de la base de la cuve, comprend un capillaire mobile relié par un tube en verre (utilisé en chromatographie et compatible avec l'heptane) à une seringue contenant la phase interne. Le diamètre interne du capillaire est de 0.25mm. Ce dernier est fixé sur une tige verticale qui peut être mise en mouvement par un système électromagnétique. Un soin particulier a été accordé au nettoyage du dispositif, afin de limiter la contamination des fluides. Entre les séries de mesures, l'eau constituant la phase continue est filtrée à l'aide d'un filtre à charbon actif, afin d'éliminer les particules de poussière, qui possèdent une activité de surface relativement élevée.

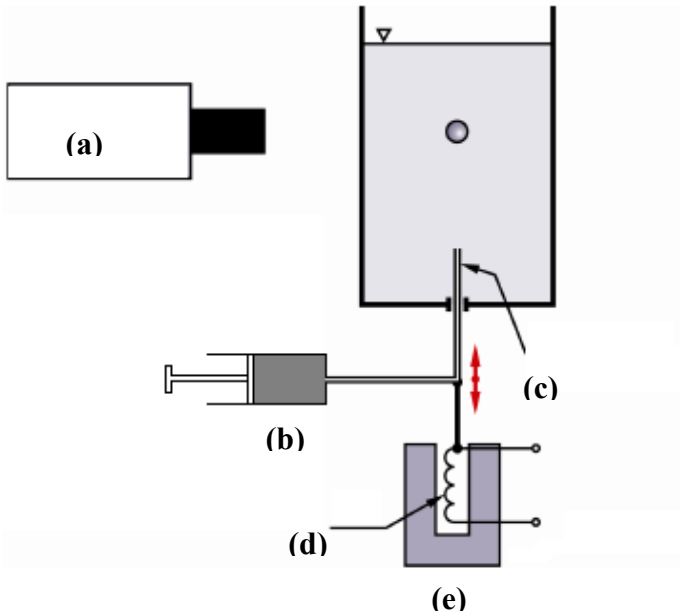

Figure 4.1 Schéma du dispositif expérimental (Vejrazka et al, 2009). (a) Caméra rapide, (b) Seringue d'alimentation, (c) Capillaire mobile, (d) Bobine, (e) Aimant.

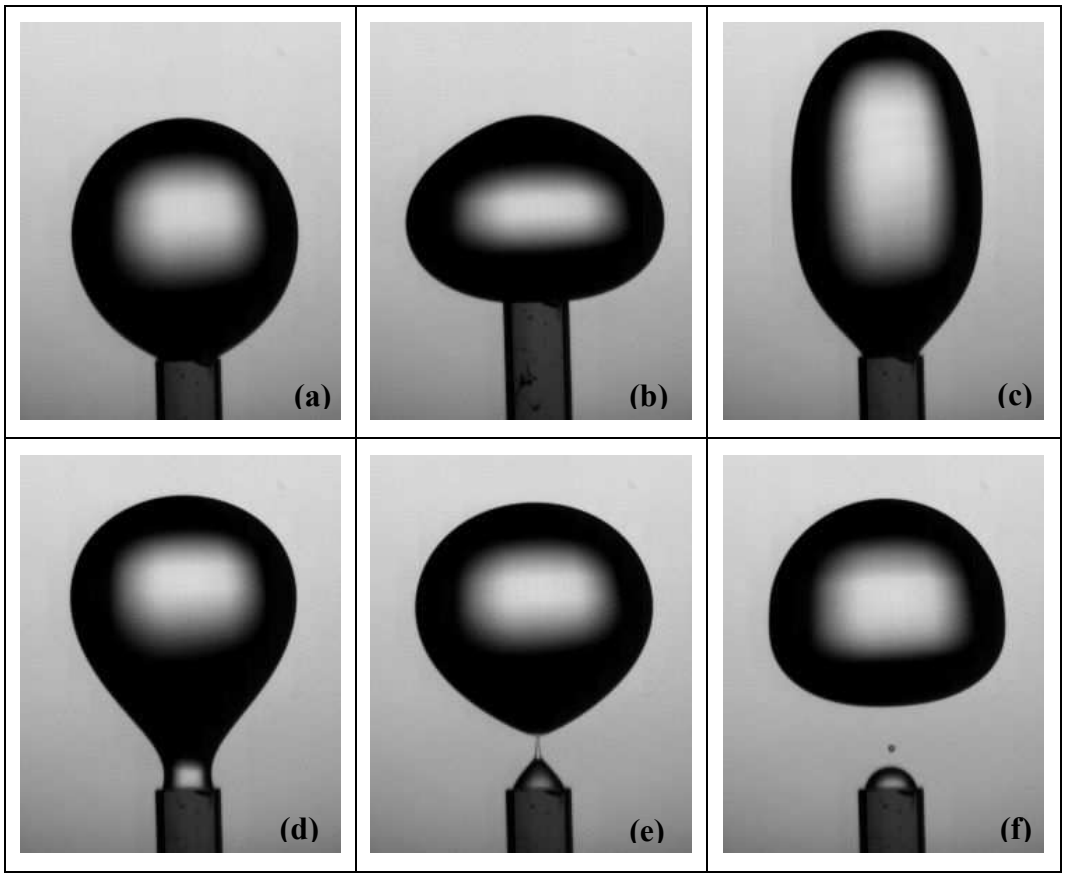

Figure 4.2 Séquence d'images: Production d'une goutte. (a) Formation de taille donnée (instant t), (b) Déplacement axial du capillaire (t + 11ms), (c) Retrait du capillaire (t + 19ms) (d) Rétrécissement du cou (t + 26ms), (e) Détachement (t + 28.5ms), (f) Ascension (t + 31ms).

Une goutte est formée à l'extrémité du capillaire à l'aide de la seringue. Lorsque la goutte formée atteint la taille désirée, un déplacement axial du capillaire, sous la forme d'une impulsion, permet le détachement de la goutte. L'amplitude et l'accélération du mouvement du capillaire sont choisies de façon à provoquer le détachement, qui se fait par rétrécissement du cou de raccordement entre la goutte et le capillaire (Figure 4.2).

Ainsi, la goutte est soumise à une déformation initiale lors de sa formation (Figure 4.2c). Dès qu'elle est libérée dans la phase externe, des oscillations de forme apparaissent, dues à des échanges périodiques entre l'énergie cinétique et l'énergie de surface. Ces oscillations s'amortissent au fur et à mesure que la goutte traverse la phase externe.

Le système d'acquisition d'images rapide est similaire à celui présenté dans le chapitre 2. Il est constitué d'une caméra à haute vitesse d'acquisition (Photron SA.1.1) munie d'un objectif à focale variable. La vitesse d'acquisition est de 10000 images/s, avec un temps d'exposition de 1/20000s, pour une première série de mesures. Elle est ensuite fixée à 18000 images/s (temps d'exposition de 1/35000s) pour la seconde série de mesures. La résolution des images est de 320x864 pixels. Le facteur de grandissement est adapté à la taille de la goutte étudiée.

Les images acquises sont traitées à l'aide du code présenté dans le chapitre 2. Le traitement des images permet de détecter le contour des gouttes, d'en déterminer la taille (diamètre de la sphère équivalente) et la position. La goutte étant axisymétrique, sa forme est décrite à l'aide d'une combinaison linéaire d'harmoniques sphériques Y_n^0 $(0 \le n \le 15)$:

$$r = a\left(1 + \sum_{n=0}^{15} A_n(t) \cdot Y_n^0(\theta)\right) \qquad (4.1)$$

Ainsi, à partir de chaque image, nous pouvons extraire la position du centre de la goutte, son facteur de forme ainsi que les amplitudes des harmoniques sphériques qui décrivent l'interface.

4 Signaux temporels

Nous présentons dans ce paragraphe l'évolution temporelle de la vitesse d'ascension, du facteur de forme ainsi que l'amplitude des harmoniques sphériques $\tilde{A}_n$ $(2 \le n \le 5)$, pour 2 gouttes de diamètres différents (3.52 et 0.59mm), choisies parmi les 34 gouttes étudiées.

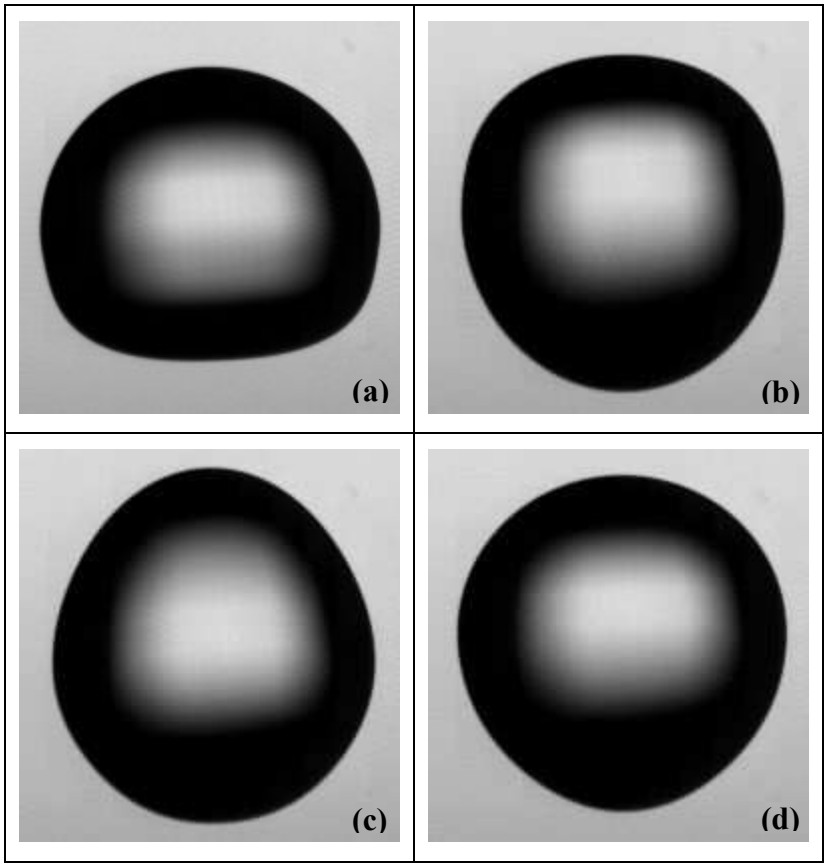

Figure 4.3 Séquence d'images: Oscillations d'une goutte
(a) Instant t, (b) t+6 ms, (c) t+2.5 ms (d) t +4 ms.

La Figure 4.4 présente l'évolution de la vitesse d'ascension pour une goutte de 3.52mm de diamètre. Nous observons que cette vitesse tend asymptotiquement vers une valeur terminale sans toutefois l'atteindre. C'est le cas de toutes les gouttes de diamètre supérieur à 1.31mm. L'évolution temporelle du facteur de forme est représentée sur la Figure 4.5. Nous pouvons remarquer que le facteur de forme moyen n'est pas égal à 1, mais varie entre 1.05 et 1.12. Cela signifie que la goutte n'oscille pas autour d'une forme sphérique, mais autour d'une forme de plus en plus aplatie, due à l'écoulement généré par l'ascension. L'effet de l'ascension se traduit également sur les signaux des amplitudes des harmoniques sphériques représentés sur la Figure 4.6. Les amplitudes des harmoniques sphériques varient autour d'une valeur moyenne, qui elle aussi dépend du temps. Ainsi les signaux représentés sur la Figure 4.6 peuvent être décrits par l'expression suivante

$$A_n(t) = A_{n,0}(t) + \widetilde{A}_n \sin(\omega_n t + \varphi_n) \qquad (4.2)$$

où $A_{n,0}(t)$ est l'évolution lente de l'amplitude due à la forme moyenne. $A_{n,0}(t)$ est évaluée en calculant, à chaque instant *t*, une moyenne mobile sur une période du signal $A_n(t)$. $\Delta A_n(t) = \tilde{A}_n \sin(\omega_n t + \varphi_n)$, l'évolution temporelle centrée de l'amplitude de l'harmonique sphérique Y_n^0 est obtenue par soustraction de l'évolution lente $A_{n,0}(t)$ du signal brut $A_n(t)$, et représentée sur la Figure 4.8. A partir de ce signal, nous pouvons déterminer des fréquences d'oscillation $f_n = \omega_n / 2\pi$ des modes propres étudiés, à l'aide d'une fonction d'autocorrélation. La résolution fréquentielle $\Delta f / f$ est égale à l'inverse de la vitesse d'acquisition de la caméra. Elle est donc de 1/10000 pour une série de mesures et de 1/18000 pour une autre série de mesures.

Le signal sur la Figure 4.8 correspond à des oscillations amorties. Par suite, pour chaque mode *n*, l'amplitude $\tilde{A}_n$ peut s'écrire sous la forme $\tilde{A}_n(t) = \tilde{A}_n(t_0)\exp(-\beta_n t)$

$$\tilde{A}_n(t) = \tilde{A}_n(t_0)\exp(-\beta_n t) \qquad (4.3)$$

où β_n est le taux d'amortissement du mode *n*. β_n est déterminé en ajustant l'expression (4.3) aux maxima, minima et amplitudes crête-à-crête du signal (Figure 4.9), à l'aide d'une régression linéaire. Nous constatons que l'amortissement est presque constant au cours du temps. L'incertitude de mesure du taux d'amortissement est obtenue à l'aide de l'intervalle de confiance de la régression linéaire. Les valeurs des taux d'amortissement des 4 premiers modes et les incertitudes correspondantes sont présentées dans le Tableau 4.2.

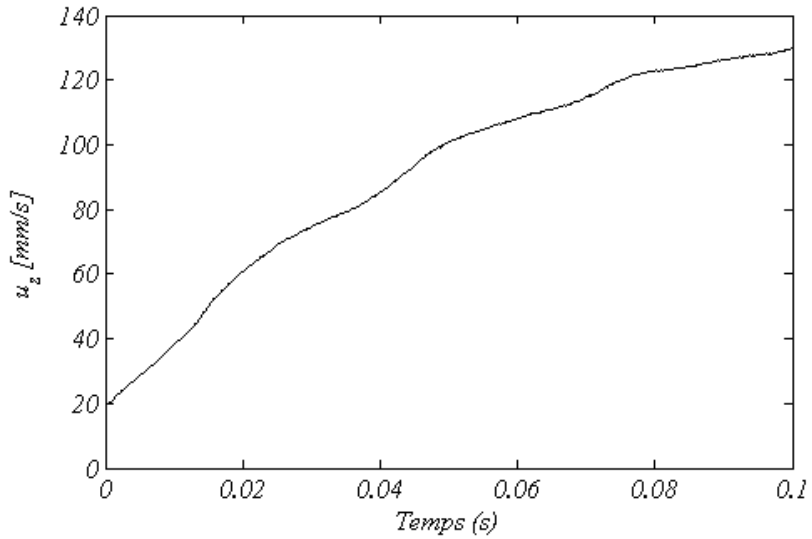

Figure 4.4 Evolution temporelle de la vitesse d'ascension. d=3.52mm.

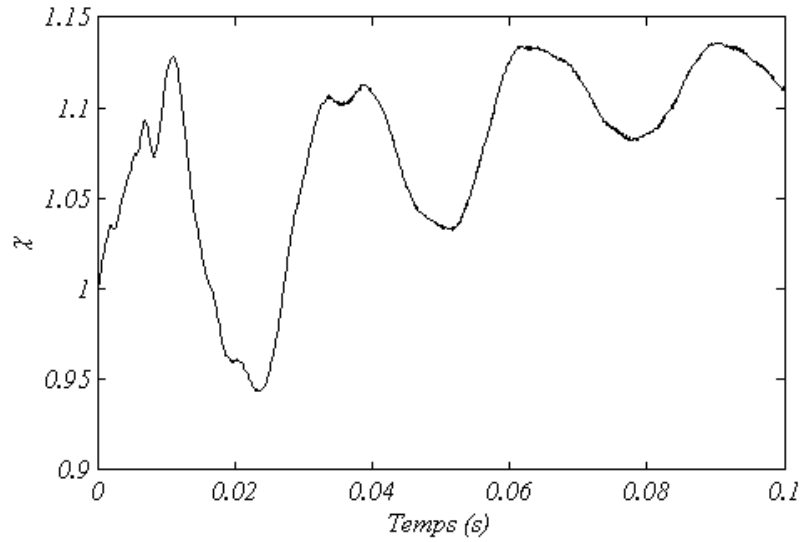

Figure 4.5 Evolution temporelle de la déformation. d=3.52mm.

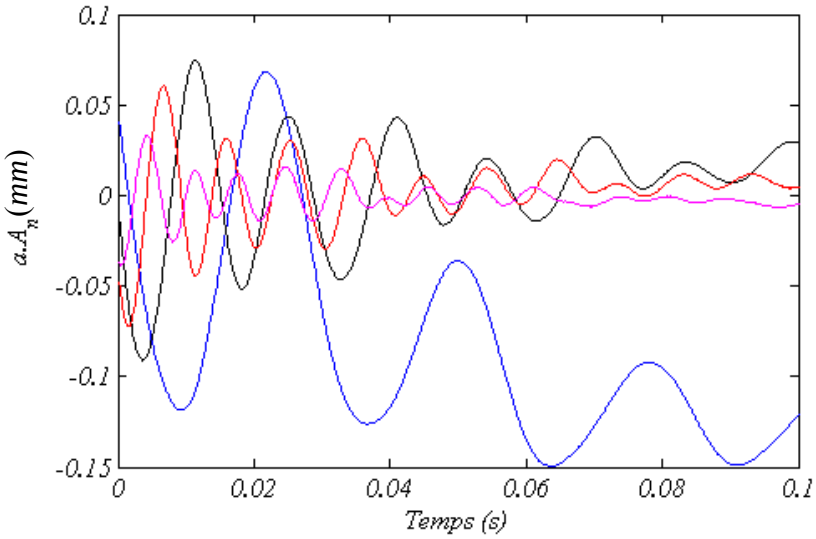

Figure 4.6 Evolution temporelle de l'amplitude dimensionnelle des harmoniques sphériques. n=2 (bleu), n=3 (noir), n=4 (rouge) et n=5 (violet). d=3.52mm

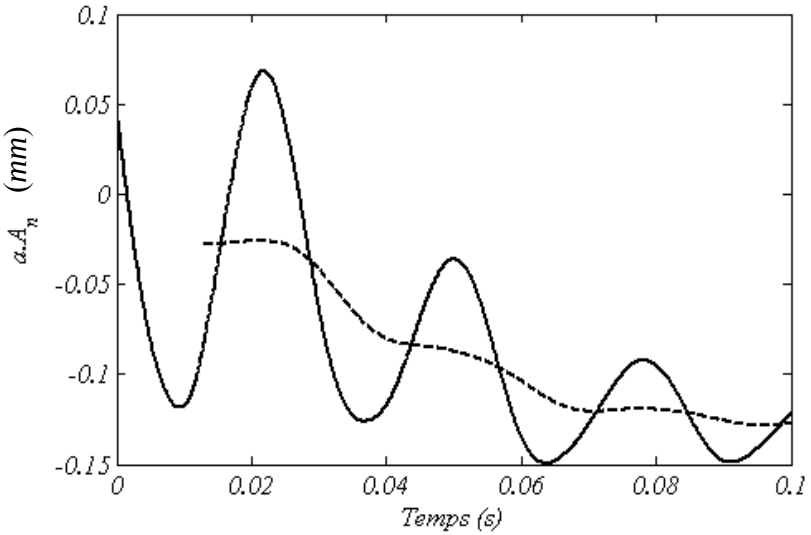

Figure 4.7. Evolution temporelle de l'amplitude dimensionnelle de l'harmonique sphérique 2 (—). Evolution de la moyenne, sur une période, de l'harmonique sphérique 2 (--)

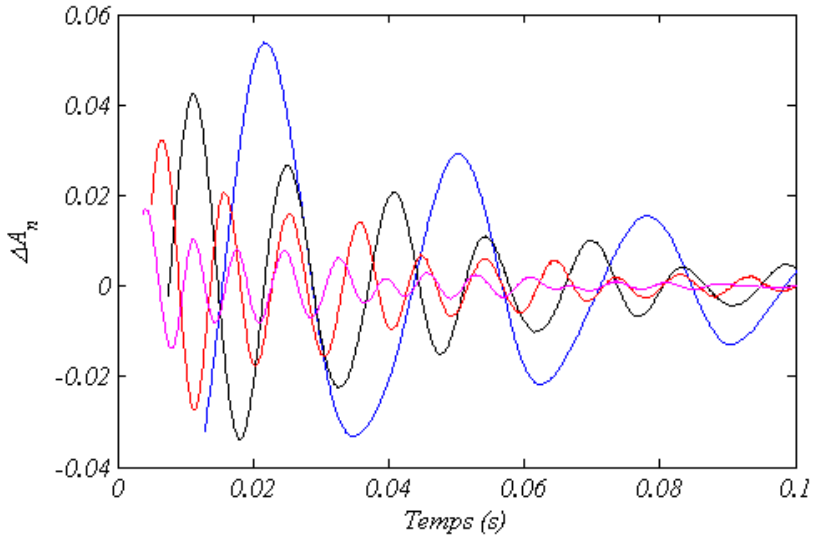

Figure 4.8. Evolution temporelle de l'amplitude adimensionnelle des harmoniques sphériques après soustraction de la moyenne mobile (signal centré). n=2 (bleu), n=3 (noir), n=4 (rouge) et n=5 (violet). d=3.52mm.

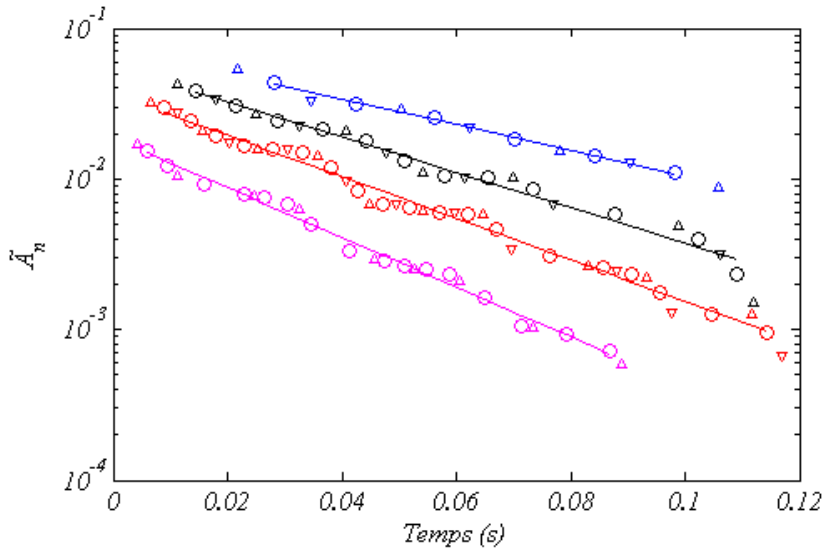

Figure 4.9 Représentation (échelle logarithmique) des maxima (△), minima (▽) et des amplitudes crête-à-crête (x0.5), (o). Lignes continues: décroissance exponentielle $\beta_2 = 20 s^{-1}$. *n=2 (bleu), n=3 (noir), n=4 (rouge) et n=5 (violet). d=3.52mm.*

Nous constatons, dans le cas d'une goutte de 0.59mm de diamètre, que la vitesse terminale d'ascension est atteinte avant la fin de la séquence d'enregistrement (Figure 4.10). Il en est de même pour les autres gouttes de diamètre inférieur ou égal à 1.31 mm. Le facteur de forme (Figure 4.11) varie autour d'une valeur moyenne de 1 environ. La goutte oscille donc autour d'une forme moyenne sphérique et les signaux $A_n(t)$ sont centrés (Figure 4.12).

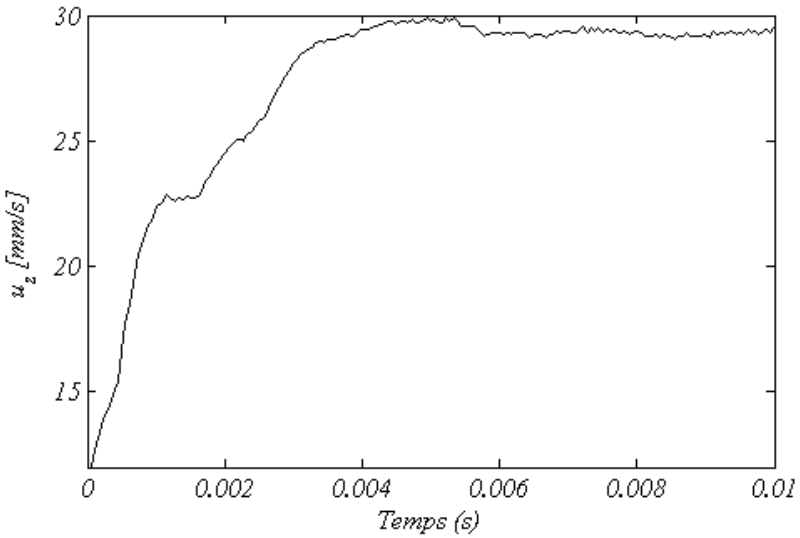

Figure 4.10 Evolution temporelle de la vitesse d'ascension. d=0.59mm

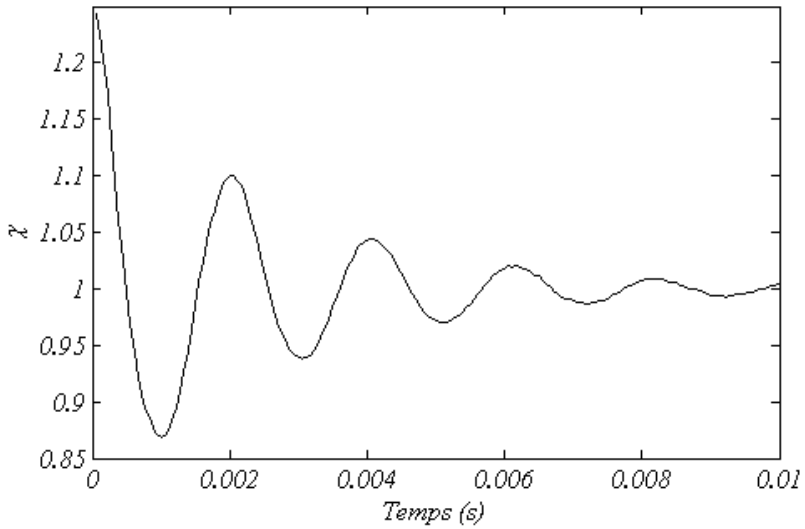

Figure 4.11 Evolution temporelle de la déformation. d=0.59mm.

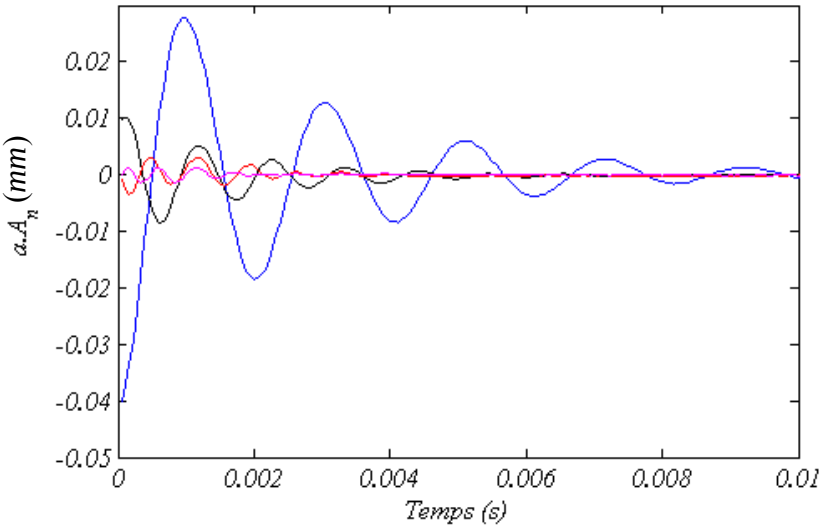

Figure 4.12 Evolution temporelle de l'amplitude dimensionnelle des harmoniques sphériques. n=2 (bleu), n=3 (noir), n=4 (rouge) et n=5 (violet). d=0.59mm.

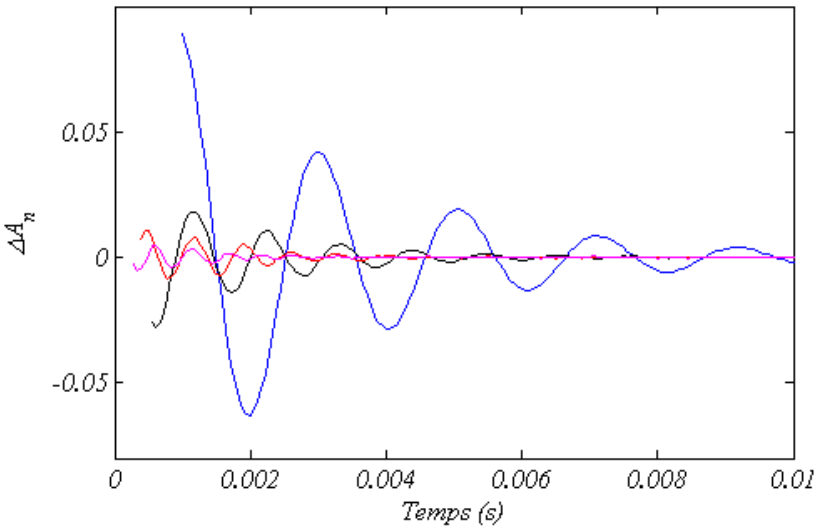

Figure 4.13 Evolution temporelle de l'amplitude adimensionnelle des harmoniques sphériques après soustraction de la moyenne mobile (signal centré). n=2 (bleu), n=3 (noir), n=4 (rouge) et n=5 (violet). d=0.59mm.

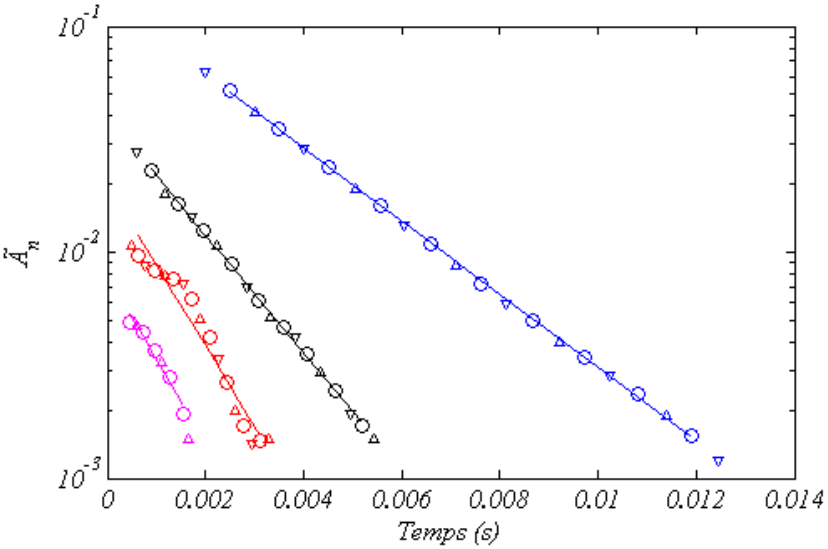

Figure 4.14. Représentation (échelle logarithmique) des maxima (△), minima(▽) et des amplitudes crête à crête (x0.5), (o). Lignes continues: décroissance exponentielle, $\beta_2 = 370 s^{-1}$. n=2 (bleu), n=3 (noir), n=4 (rouge) et n=5 (violet). d=0.59mm.

Tableau 4.2 Taux d'amortissement et incertitudes de mesure des 4 premiers modes, pour deux gouttes de diamètre 3.52 et 0.59 mm

	d=3.52 mm	d=0.59 mm
n	β_n (s^{-1})	β_n (s^{-1})
2	20 ± 1	373 ± 5
3	27 ± 2	600 ± 14
4	32 ± 1	800 ± 160
5	38 ± 2	850 ± 140

A chaque goutte produite, sont donc associés un diamètre, une vitesse maximale d'ascension, un facteur de forme moyen maximal, ainsi qu'une fréquence d'oscillation et un taux d'amortissement pour chacun des 4 premiers modes ($2 \le n \le 5$). Notons que la vitesse maximale d'ascension et la déformation maximale sont obtenues à la fin de la séquence d'acquisition et non pas lorsque la vitesse terminale est atteinte.

5 Etude des paramètres de la goutte-oscillateur pour différentes valeurs du diamètre.

Nous avons étudié la relation entre les paramètres de la goutte-oscillateur – fréquence d'oscillation et taux d'amortissement – et le diamètre, pour les 4 premiers modes. Les résultats expérimentaux ont été comparés avec les prédictions théoriques (Lamb, 1932, Lu et Apfel, 1991). La Figure 4.15 montre l'évolution du nombre de Reynolds d'ascension, défini à l'aide de l'équation

$$\mathrm{Re}_a = \frac{\rho_c u d}{\mu_c}, \qquad (4.4)$$

où ρ_c et μ_c sont respectivement la masse volumique et la viscosité dynamique de la phase continue, d le diamètre de la goutte non déformée, et u la vitesse maximale atteinte par la goutte en ascension. La vitesse u est égale à la vitesse terminale d'ascension pour les gouttes dont le diamètre est inférieur ou égal à 1.31 mm et en est proche pour les gouttes de diamètre supérieur. Le Reynolds d'ascension est compris entre 17 et 480. Un second nombre de Reynolds permet de comparer le temps caractéristique de la dissipation visqueuse à celui des

oscillations. Il s'agit du Reynolds d'oscillation, défini à l'aide de la masse volumique et la viscosité de la masse continue, il s'écrit :

$$\mathrm{Re}_{osc} = \frac{\rho_c \omega_n d^2}{2\mu_c}. \qquad (4.5)$$

Re_{osc} est proportionnel à la pulsation ω_n et dépend donc de l'ordre du mode *n*. L'évolution de Re_{osc} en fonction du diamètre des gouttes, pour $n = 2$, est représentée sur la Figure 4.15.

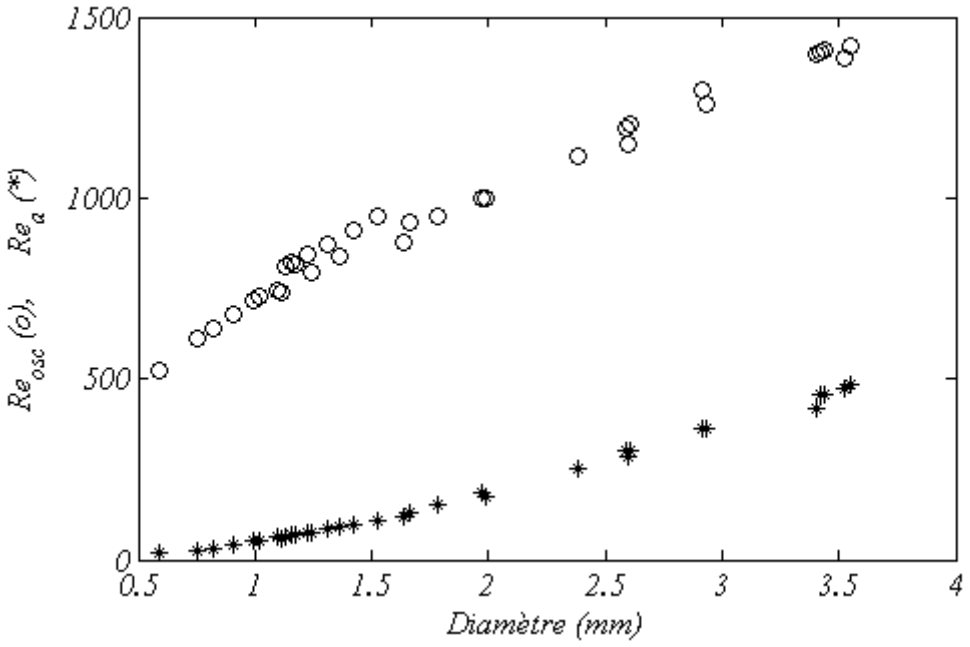

Figure 4.15 Nombre de Reynolds d'ascension (*) et nombre de Reynolds d'oscillation du mode 2 (o) en fonction du diamètre de la goutte non déformée

Il est également intéressant de comparer le temps caractéristique des oscillations avec celui de l'ascension. Pour cela, nous avons calculé le nombre de Strouhal défini par l'équation (4.6) :

$$St = \frac{\omega_n d}{2u} = \frac{\mathrm{Re}_{osc}}{\mathrm{Re}_a}. \qquad (4.6)$$

Le nombre de Strouhal pour $n = 2$ est représenté, en fonction du diamètre de la goutte, sur la Figure 4.16. La Figure 4.17 présente l'évolution de la déformation moyenne mesurée à la fin de la séquence d'acquisition, en fonction du diamètre de la goutte non déformée.

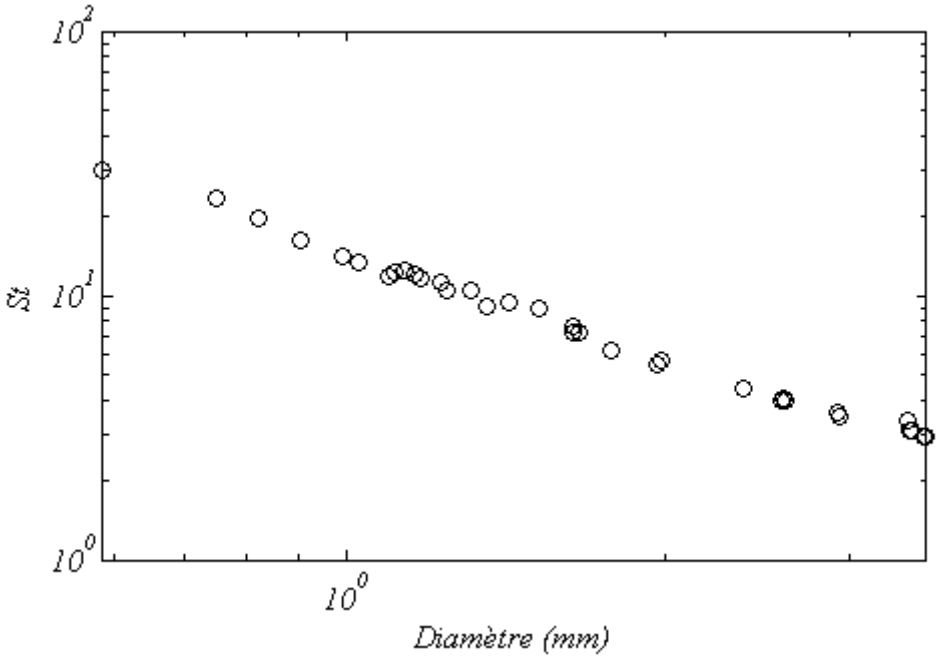

Figure 4.16 Nombre de Strouhal pour le mode 2 en fonction du diamètre de la goutte non déformée

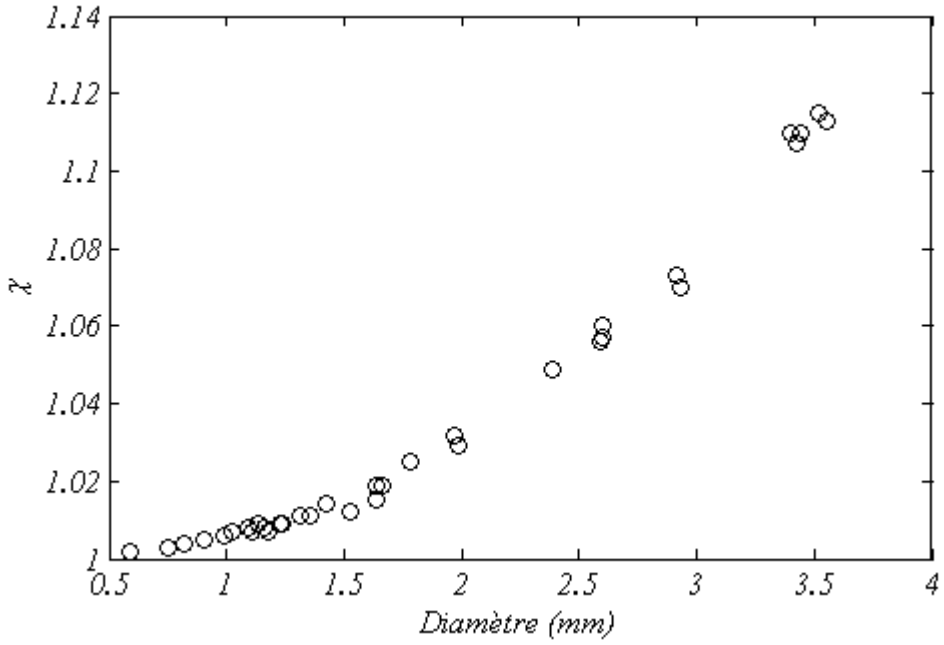

Figure 4.17 Facteur de forme moyen mesuré en fin d'acquisition, en fonction du diamètre de la goutte non déformée

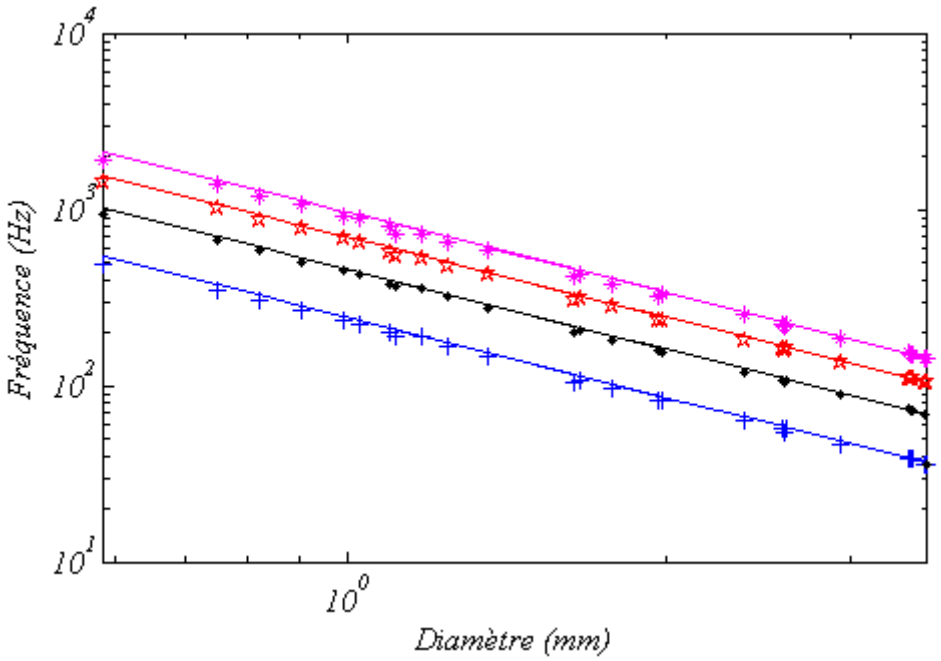

Figure 4.18 Fréquence d'oscillation en fonction du diamètre de la goutte. n=2 (+), n=3 (♦), 4 (☆) et 5 (*). Les lignes continues représentent les valeurs théoriques calculées par Lamb.

L'évolution de la fréquence d'oscillation des 4 premiers modes en fonction du diamètre de la goutte est tracée sur la Figure 4.18. Nous pouvons constater la concordance des valeurs expérimentales avec les valeurs prédites par la théorie de Rayleigh-Lamb (équation (4.7)).

$$f_n^* = \frac{\omega_n^*}{2\pi} = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{(n-1)n(n+1)(n+2)}{\rho_d(n+1)+\rho_c(n)}\frac{\sigma}{a^3}} \qquad (4.7)$$

Ce résultat est en accord avec ceux obtenus, pour la fréquence d'oscillation, dans le cas de la goutte attachée. L'écart moyen entre les valeurs expérimentales et théoriques est de 5 %. Cet écart pourrait provenir d'une éventuelle contamination de l'interface, qui provoque un léger abaissement de la tension interfaciale par rapport à la valeur mesurée au début des expériences. Notons que cet écart est inférieur à celui observé pour le même système de phases, dans le cas de la goutte attachée (Chapitre 2). La mise en mouvement de la goutte n'a donc pas d'incidence sur les fréquences des modes propres.

L'évolution du taux d'amortissement du mode 2 en fonction du diamètre de la goutte est représentée sur la Figure 4.19. Nous y avons également représenté les valeurs du taux d'amortissement calculé par Lu et Apfel (1991), dont les expressions sont rappelées ci-dessous.

$$\beta_n = \frac{\mu_d}{\rho_d a^2}\left[F\sqrt{\mathrm{Re}_d} - 2F^2 + G\right] \tag{4.8}$$

avec

$$F = \frac{(2n+1)^2(\hat{\rho}\hat{\mu})^{\frac{1}{2}}}{2\sqrt{2}[n\hat{\rho}+n+1][1+(\hat{\rho}\hat{\mu})^{\frac{1}{2}}]} \tag{4.9}$$

et

$$G = \frac{(2n+1)[2(n^2-1)+(n+2)\hat{\mu}-(n-1)\hat{\rho}\hat{\mu}+2n(n+2)\hat{\rho}\hat{\mu}^2]}{2[n\hat{\rho}+n+1][1+(\hat{\rho}\hat{\mu})^{\frac{1}{2}}]^2} \tag{4.10}$$

ρ_c, ρ_d étant respectivement les masse volumiques des phases externe et interne, μ_c, μ_d les viscosités, a le rayon de la goutte non déformée et ω_n^* la pulsation de Rayleigh-Lamb (équation (4.7)), $\hat{\rho} = \rho_c/\rho_d$ et $\hat{\mu} = \mu_c/\mu_d$. Re_d est ici le nombre de Reynolds des oscillations, établi cette fois à l'aide de la masse volumique et de la densité de la phase dispersée et du rayon de la goutte a, il s'écrit:

$$\mathrm{Re}_d = \frac{\hat{\mu}}{2\hat{\rho}}\mathrm{Re}_{osc} \tag{4.11}$$

Dans l'expression de l'amortissement (4.8), le terme proportionnel à $\sqrt{\mathrm{Re}_d}$, qui correspond à la dissipation dans l'écoulement de couche limite, est prédominant.

La Figure 4.19 montre que l'amortissement est largement sous-estimé par la théorie de Lu et Apfel, contrairement au cas de la goutte attachée, où l'écart entre les valeurs expérimentales et théoriques de l'amortissement était inférieur à 30%. Cela signifie qu'un amortissement supplémentaire apparaît lorsque la goutte est mise en mouvement. Nous constatons également que cet amortissement supplémentaire est proportionnel à la racine carré du nombre de Reynolds d'oscillation et provient donc d'une augmentation de la dissipation dans l'écoulement de couche limite. En conséquence, nous avons modélisé les points expérimentaux de la Figure 4.19 à l'aide de l'équation:

$$\beta_n = \frac{\mu_d}{\rho_d a^2}\left[K \cdot F\sqrt{\mathrm{Re}_d} - 2F^2 + G\right] \tag{4.12}$$

L'équation (4.12) est obtenue en modifiant l'expression de Lu et Apfel (4.8) par l'introduction d'un coefficient K_n devant le terme proportionnel à $\sqrt{\mathrm{Re}_d}$. Dans le cas du mode 2, le coefficient K_2 est égal à 2.4.

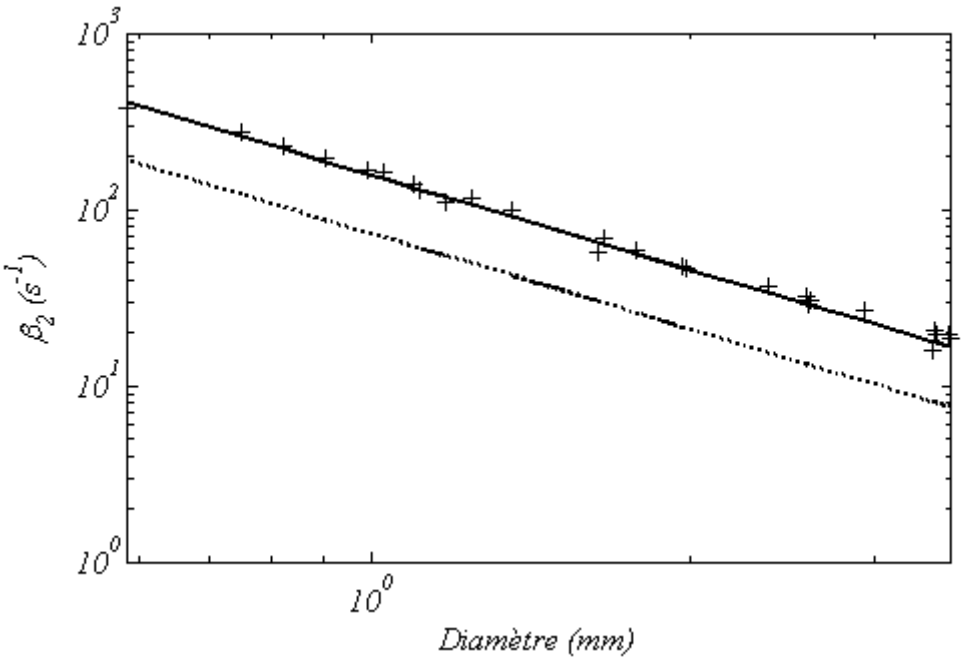

Figure 4.19 Taux d'amortissement en fonction du diamètre de la goutte. n=2. Valeurs expérimentales (+), Valeurs calculées: Lu et Apfel (…), équation (4.12) (-). K_2=2.4

Nous nous interrogeons sur les raisons pour lesquelles une augmentation de l'amortissement est observée dans le cas de la goutte en ascension.

La première hypothèse concerne la présence d'une vitesse relative non nulle entre la goutte et la phase externe. L'écoulement engendré par l'ascension de la goutte aurait donc pour effet l'augmentation de la dissipation, notamment au niveau des couches limites. Si cette dissipation supplémentaire était due à l'écoulement, elle dépendrait de la vitesse d'ascension. Observons la Figure 4.4. Nous constatons que pour une même goutte, la vitesse d'ascension varie entre $20 \cdot 10^{-3}$ et$130 \cdot 10^{-3}\, m \cdot s^{-1}$. Or le taux d'amortissement mesuré est constant sur toute la durée de la série d'oscillations considérée (Figure 4.9). Il ne peut donc pas dépendre de la vitesse d'ascension. En outre, le coefficient *K* introduit dans l'expression (4.12) est constant dans toute la plage de diamètres étudiés, tandis que la vitesse d'ascension en dépend. Cette première hypothèse ne peut donc pas être retenue.

L'amortissement supplémentaire pourrait provenir de la déformation moyenne de la goutte durant son ascension. Or comme pour la vitesse, le facteur de forme moyen varie au cours d'une même série d'oscillations, tandis que le taux d'amortissement reste constant. L'hypothèse de la déformation moyenne est alors à son tour réfutée.

La contamination de l'interface peut être à l'origine de l'augmentation du taux d'amortissement. En effet, au cours des campagnes de mesures, nous avons pris soin de réduire, autant que possible, la présence de contaminants dans des fluides. Bien que cette présence ait été considérablement limitée, son élimination complète s'avère quasiment impossible. Afin d'évaluer la contamination de l'interface, nous avons tracé le coefficient de traînée des différentes gouttes en fonction du nombre de Reynolds d'ascension. La Figure 4.20 permet de comparer les valeurs expérimentales du coefficient de traînée avec des valeurs obtenues par simulation numérique directe (Oliver et al, 1987), pour $\mathrm{Re}_a = 20$ et $\mathrm{Re}_a = 50$. En l'absence de contamination interfaciale, le coefficient de traînée d'une goutte est d'autant plus élevé que le rapport des viscosités μ_d / μ_c est grand. Lorsque ce dernier tend vers l'infini, le coefficient de traînée tend vers une valeur limite qui correspond au cas d'une sphère rigide. Toujours en l'absence de contamination à l'interface, les coefficients de traînée expérimentaux pour le système de phases étudié ici ($\mu_d / \mu_c = 0.41$) seraient situés entre les symboles (*) et (★) sur la Figure 4.20. Il est également connu qu'en cas de contamination, l'interface est rendue immobile par un effet Marangoni et le coefficient de traînée de la goutte se rapproche de celui d'une sphère rigide même pour un faible rapport μ_d / μ_c. Nous constatons que les coefficients de trainée mesurés sont presque égaux aux coefficients calculés dans le cas d'une sphère solide. Ce résultat suggère la présence de contaminants à l'interface. Pour $\mathrm{Re}_a < 80$, les points expérimentaux sont bien modélisés par la corrélation de Schiller et Nauman (Clift et al, 1978, p. 111), valable pour une sphère solide. Au-delà de cette valeur de Reynolds d'ascension, le coefficient de traînée mesuré est supérieur à celui d'une sphère solide. Cet écart peut avoir deux explications. D'une part, la vitesse terminale d'ascension n'est pas atteinte pour les gouttes de diamètre supérieur à 1.31 mm, qui correspond à $\mathrm{Re}_a > 84$. Pour ces gouttes, le coefficient de traînée expérimental est calculé avec la valeur maximale de la vitesse d'ascension. Cette valeur étant inférieure à celle de la vitesse terminale, le coefficient de traînée est donc surestimé. D'autre part, comme le montre la Figure 4.22, la limite du domaine linéaire de la déformation moyenne se situe autour de $\mathrm{Re}_a = 100$. Il se peut qu'au-delà de cette valeur, la déformation ait un effet non négligeable sur le coefficient de traînée.

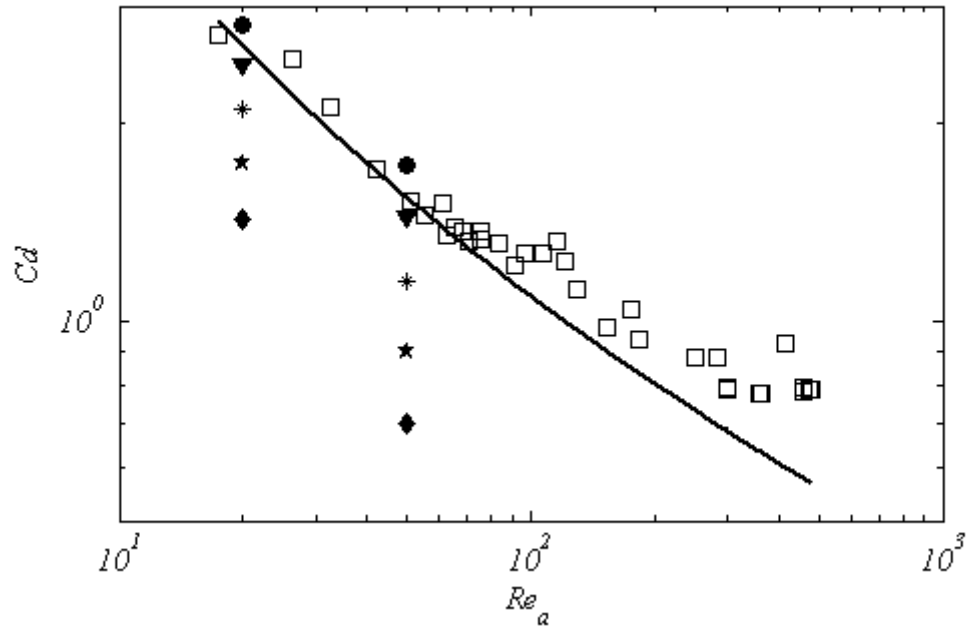

Figure 4.20 Coefficient de traînée en fonction du nombre de Reynolds d'ascension. Valeurs expérimentales (□), Corrélation de Schiller et Nauman (___), Simulations numériques directes de Oliver et al, pour $\mu_d/\mu_c = 0$ (♦), $\mu_d/\mu_c = 0.33$ (★), $\mu_d/\mu_c = 1$ (*), $\mu_d/\mu_c = 3$ (▼) et pour une sphère solide (●).

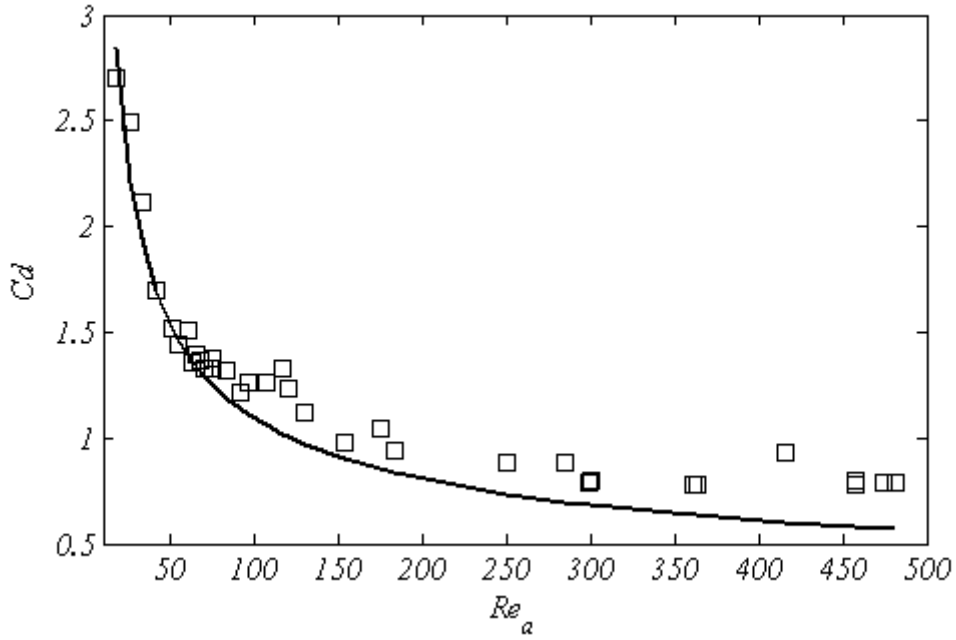

Figure 4.21 Coefficient de traînée en fonction du nombre de Reynolds d'ascension. Valeurs expérimentales (□), Corrélation de Schiller et Nauman (___)

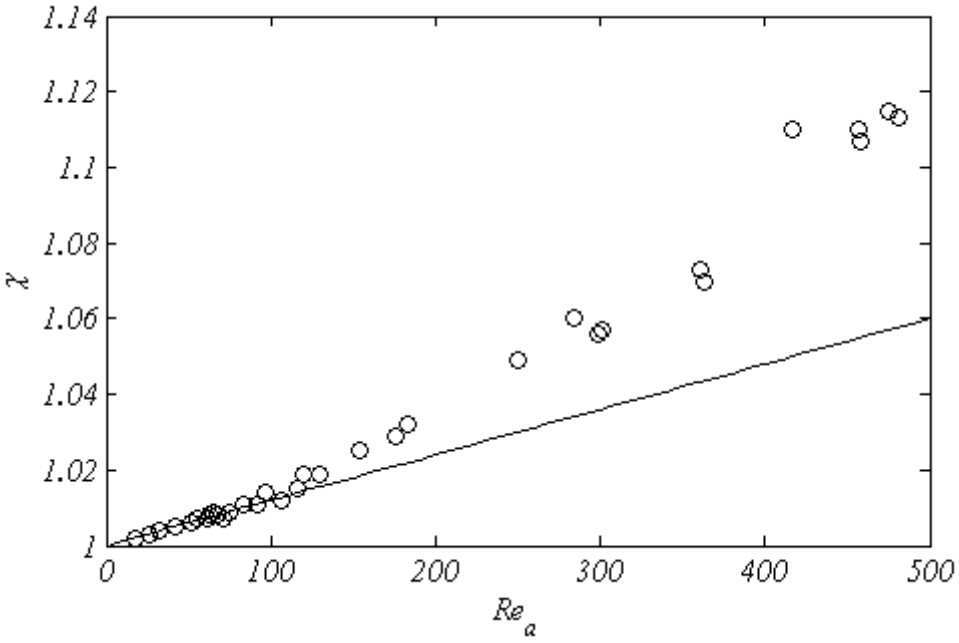

Figure 4.22 Facteur de forme des gouttes, atteint à la fin de l'ascension, en fonction du nombre de Reynolds (o). $\chi = 1.2 \cdot 10^{-4} \cdot \mathrm{Re}_a + 1$ *(___)*

Afin de vérifier que l'augmentation de l'amortissement est réellement due à la contamination de l'interface, nous avons interrompu les mesures et procédé à un nettoyage supplémentaire de la cellule et des conduites. Les points expérimentaux obtenus après le nettoyage sont indiqués par des cercles sur la Figure 4.23, qui montre l'évolution du taux d'amortissement du mode 2 en fonction du diamètre de la goutte. Nous remarquons que les taux d'amortissement mesurés après le nettoyage supplémentaire se rapprochent des valeurs théoriques de Lu et Apfel. Le premier β_2 mesuré après le nettoyage (disque noir sur la Figure 4.23) est presque égal à l'amortissement théorique.

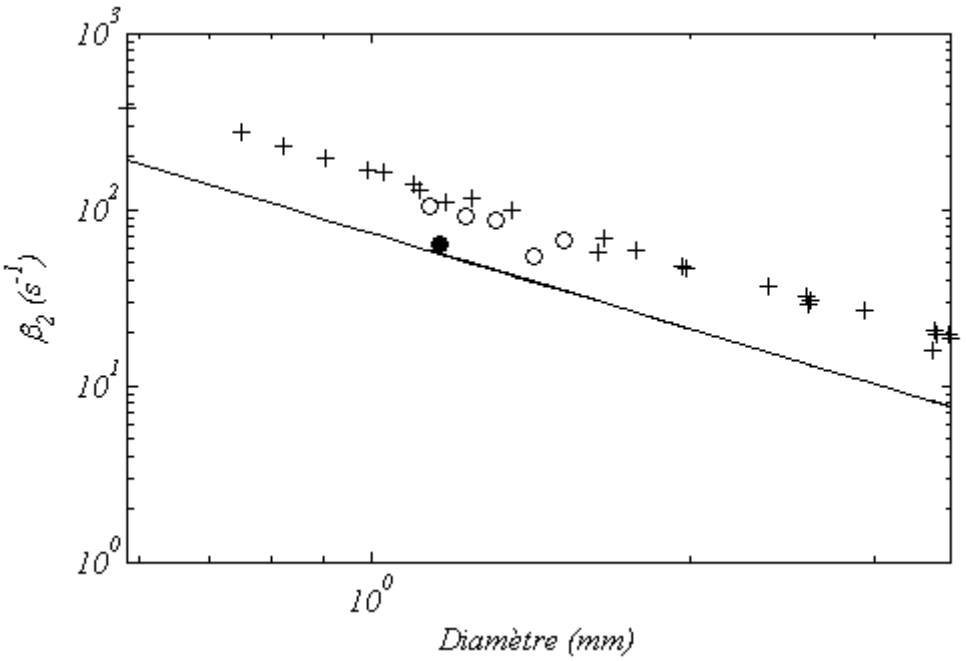

Figure 4.23 Taux d'amortissement en fonction du diamètre de la goutte. n=2. Valeurs expérimentales (+), Valeurs expérimentales après nettoyage supplémentaire (o), Valeurs calculées: Lu et Apfel (-)

Cependant, la contamination des fluides, pourtant présente dans le cas des expériences sur les gouttes pendantes d'heptane (les précautions prises dans ce travail et celui présenté dans le chapitre 2 sont comparables), n'entraîne pas de modification aussi drastique du taux d'amortissement par rapport à la théorie. Nous assistons donc ici à un effet combiné entre le déplacement de la goutte d'une part, et la présence, à l'interface, d'espèces adsorbées très peu concentrées. L'écoulement généré par l'ascension de la goutte entraîne la convection des espèces adsorbées à l'interface, et par suite l'apparition de gradients de tension interfaciale par effet Marangoni. L'apparition de ces gradients conduit à l'augmentation de la vorticité dans les couches limites et donc à l'augmentation de la dissipation.

Nous admettons que les contaminants sont constitués principalement de particules de poussière. Si l'on estime l'ordre de grandeur du coefficient de diffusion *D*, de ces contaminants, *à* $10^{-9}\ m^2 s^{-1}$, on peut estimer leur nombre de Péclet:

$$Pe = \frac{u \cdot d}{D}. \tag{4.13}$$

Pour des gouttes millimétriques ($d \approx 10^{-3}\, m$), et pour $D = 10^{-9}\ m^2 s^{-1}$, on a alors

$$Pe = 10^6 \cdot u. \tag{4.14}$$

Ce nombre est très élevé, même pour des vitesses très faibles, et l'effet de la convection est dominant quelle que soit la vitesse de déplacement de la goutte, du moment que celle-ci n'est pas nulle. Par suite, la valeur de la vitesse de déplacement n'a aucune incidence sur l'amortissement, comme nous pouvons l'observer dans le cadre de cette étude. La transition entre un état de la goutte immobile et celui où elle est en mouvement est quasi-inexistant.

- **Effet de l'ordre du mode**

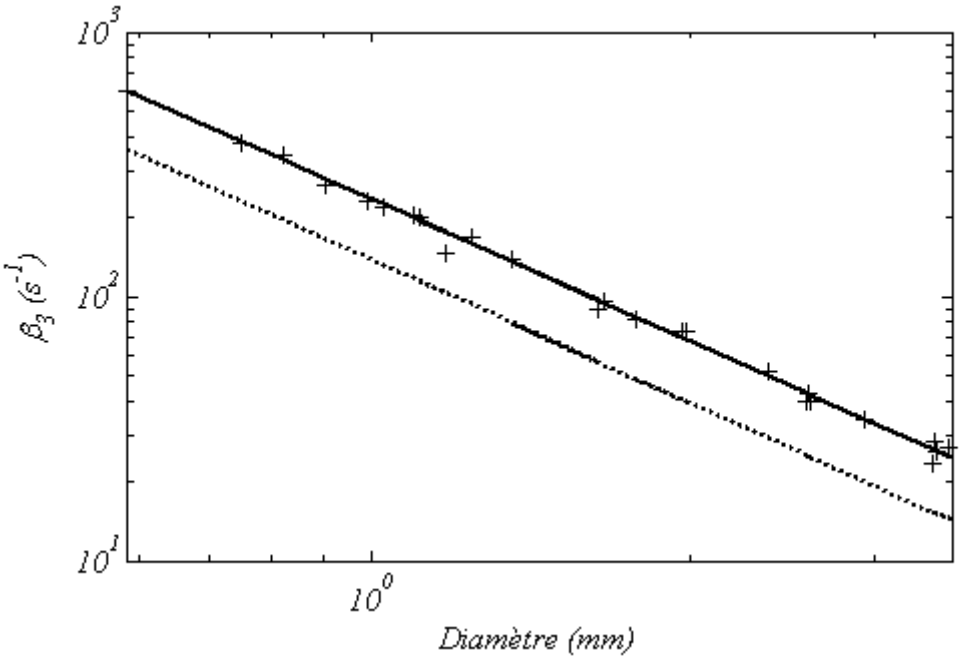

Figure 4.24 Taux d'amortissement en fonction du diamètre de la goutte. n=3. Valeurs expérimentales (+), Valeurs calculées: Lu et Apfel (…), équation (4.12) (-). K_3=1.85

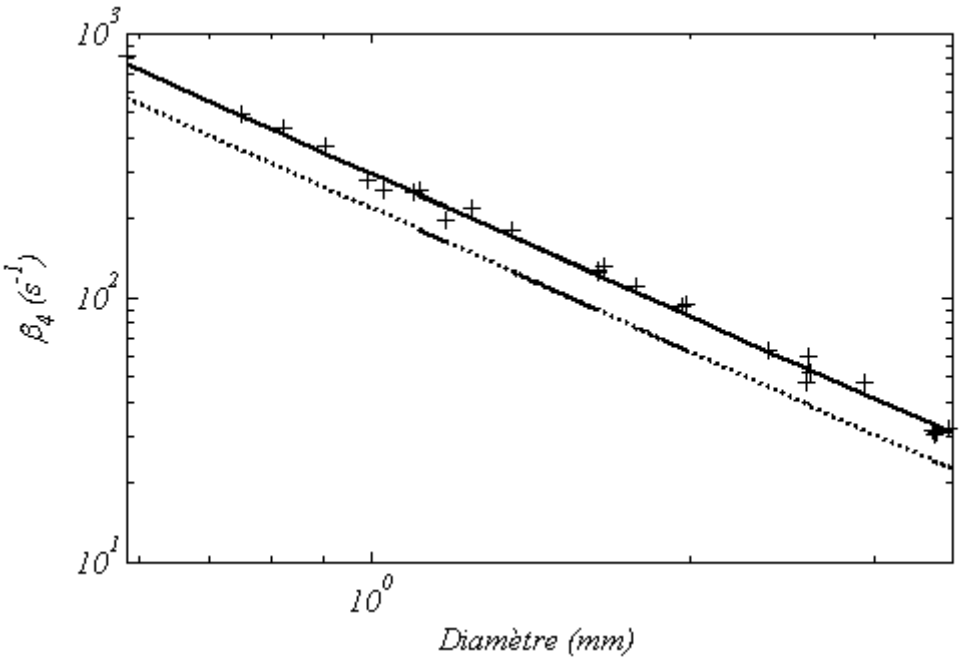

Figure 4.25 Taux d'amortissement en fonction du diamètre de la goutte. n=4. Valeurs expérimentales (+), Valeurs calculées : Lu et Apfel (…), équation (4.12) (-). K_4=1.43

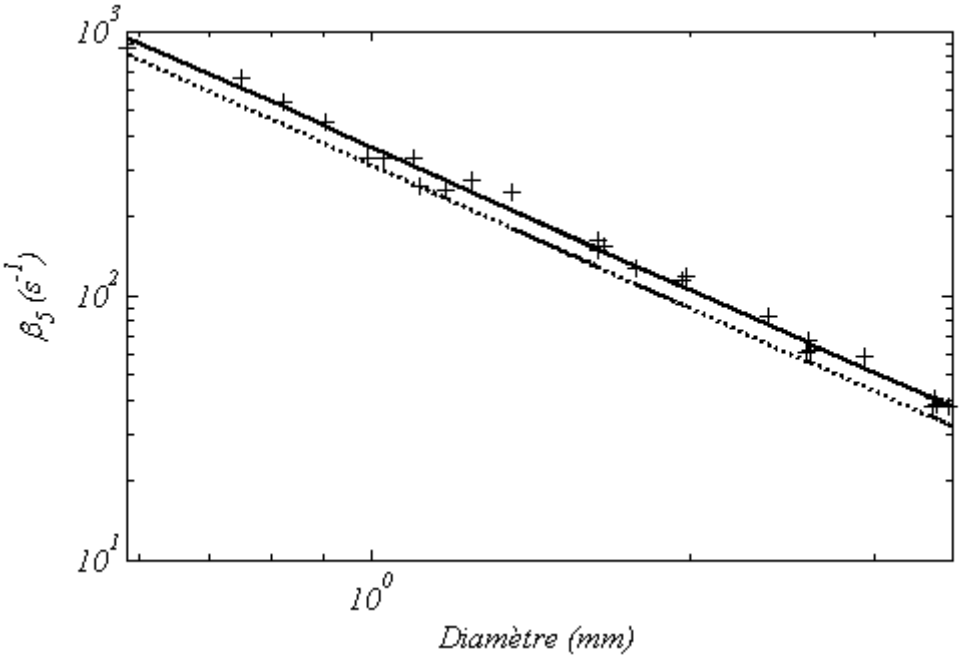

Figure 4.26 Taux d'amortissement en fonction du diamètre de la goutte. n=5. Valeurs expérimentales (+), Valeurs calculées : Lu et Apfel (…), équation (4.12) (-). K_5=1.21

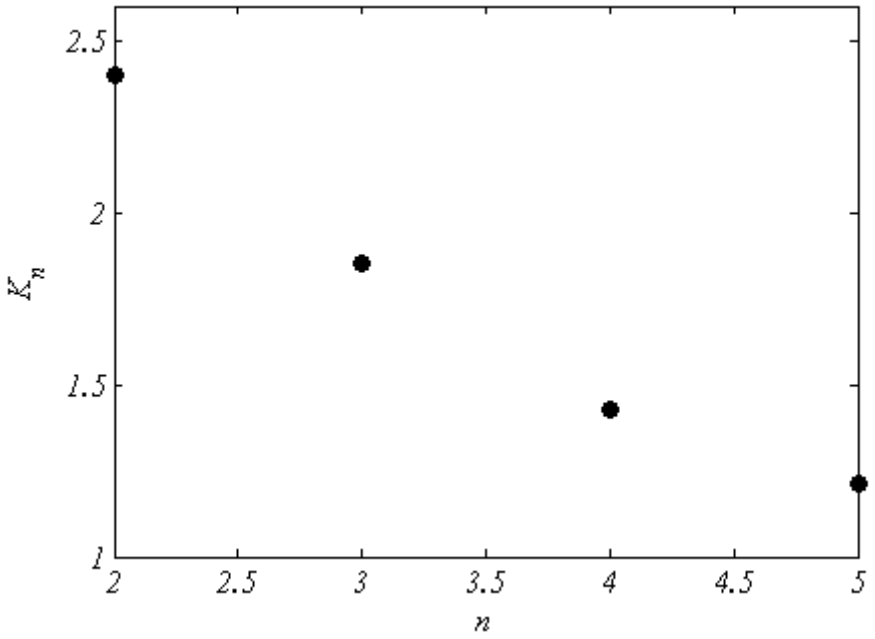

Figure 4.27 Coefficient K_n de l'équation (4.12) en fonction de l'ordre du mode

Les figures ci-dessus présentent l'évolution des taux d'amortissement pour les modes d'ordre 3 (Figure 4.24), 4 (Figure 4.25) et 5 (Figure 4.26). Nous constatons que plus l'ordre du mode est élevé, plus l'écart entre les valeurs mesurées du taux d'amortissement et les valeurs calculées par Lu et Apfel (pour une interface non contaminée) est faible. Le facteur de correction K_n (équation 4.12) diminue donc lorsque n augmente, comme nous pouvons l'observer sur la Figure 4.27. Il semble alors que les gradients de tension interfaciale sont de moins en moins contraignants lorsque l'ordre du mode est de plus en plus élevé. En effet, dans le cas de gouttes sphériques, l'ordre d'un mode de surface est le rapport entre le périmètre de la section mediane de la goutte et la longueur d'onde de l'onde de surface correspondante. Ainsi, pour le mode 2, la déformation fait intervenir l'ensemble de la surface, les ventres de l'onde stationnaire correspondante se situant aux pôles et à l'équateur de la goutte. Plus n est élevé, plus l'onde de surface fait apparaître un nombre élevé de ventres et de nœuds (Figure 4.28). La déformation de la goutte pourrait alors être considérée comme un ensemble de déformations localisées. D'autre part, les contraintes qui se développent à l'interface par effet Marangoni, pour une goutte ou une bulle en ascension, sont dans la plupart des cas, localisées dans une zone de faible superficie (Cuenot et al, 1997). Nous pouvons alors penser que ces contraintes ont une influence plus importante sur des modes

globaux que sur des modes localisés. Cela pourrait expliquer pourquoi le taux d'amortissement est d'autant plus proche de la valeur théorique que l'ordre du mode est élevé.

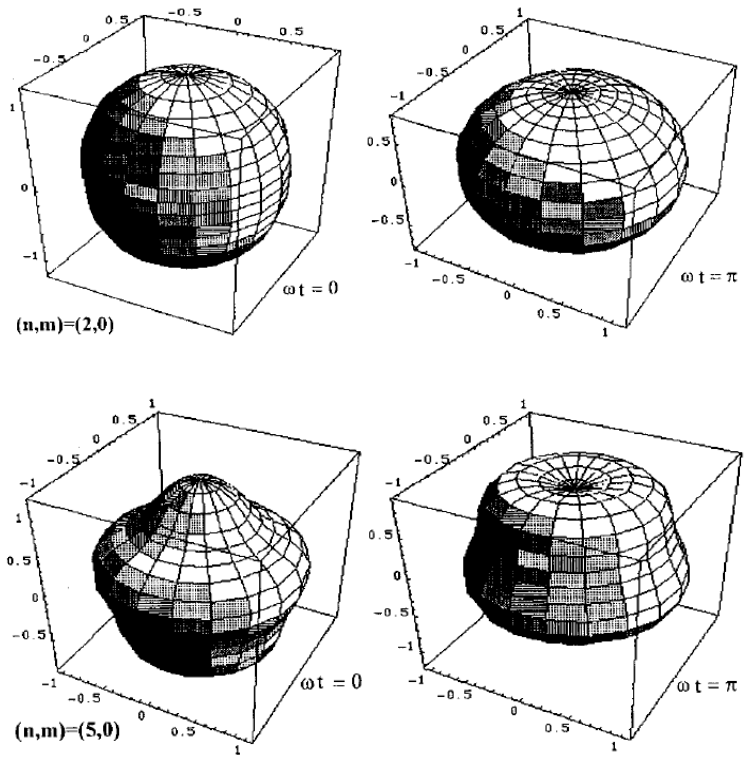

Figure 4.28 Formes de gouttes au maximum de déformation pour les modes axisymétriques n=2 et n=5 (Risso 2000)

6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié les oscillations libres d'une goutte en ascension dans une phase externe stagnante, pour un système liquide-liquide sans ajout de surfactants. Nous avons mesuré la fréquence d'oscillation et le taux d'amortissement pour des gouttes de diamètres différents, compris entre 0.59 et 3.55 mm.

Les valeurs mesurées de la fréquence d'oscillation des 4 premiers modes sont en accord avec la théorie de Rayleigh-Lamb. Cependant les valeurs mesurées du taux d'amortissement sont très élevés par rapport aux valeurs calculées par Lu et Apfel (1991) pour une interface non contaminée. Nous avons montré que cet écart est dû à un effet combiné d'une contamination résiduelle de l'interface et de la mise en mouvement de la goutte. En effet, l'écoulement engendré par l'ascension de la goutte entraîne la convection des espèces adsorbées à l'interface et par suite l'apparition d'un gradient de tension interfaciale par effet

Marangoni. Cela est corroboré par le fait que la vitesse d'ascension des gouttes correspond au cas d'une interface rigide. Le résultat original de cette étude réside dans le fait que l'amortissement des oscillations d'une goutte est augmenté par effet Marangoni à travers un terme proportionnel à la racine carrée du Reynolds d'oscillation. En effet le gradient de tension interfaciale provoque une augmentation du frottement dans les écoulements de couche limite qui conduit à l'augmentation du taux d'amortissement. Cette augmentation est indépendante de la vitesse d'ascension ainsi que de la forme de la goutte. Ainsi l'amortissement mesuré est 2.4 fois plus élevé que celui d'une interface non contaminée dans le cas des oscillations du second mode. Cet écart est de moins en moins élevé lorsque l'ordre du mode augmente, et devient négligeable pour les modes d'ordre supérieur à 5.

L'analyse présentée dans ce chapitre a permis de mettre en évidence l'extrême sensibilité de la dynamique interfaciale d'une goutte oscillante à la présence de contaminants même à très faible concentration, dès lors que la vitesse relative entre la phase interne et externe est non nulle. Ainsi, une même interface peut être considérée comme étant propre dans le cas d'une goutte oscillante attachée, et comme étant contaminée lorsque cette goutte effectue un mouvement (ascension ou chute) au sein de la phase continue.

Conclusion Générale

Ce travail a été consacré à l'étude de la dynamique interfaciale de gouttes oscillantes dans une plage étendue de fréquences, en particulier dans le domaine des hautes fréquences. Nous avons développé une méthode de caractérisation de la dynamique des oscillations de gouttes, en présence d'un forçage externe imposé, sous la forme de variations de volume périodiques de faible amplitude. Cette méthode permet d'identifier les modes d'oscillation des gouttes et d'en mesurer les fréquences et les taux d'amortissement. Cette méthode a été appliquée à différents systèmes liquide-liquide, en l'absence ou en présence de surfactants. Dans ce dernier cas, elle permet d'évaluer l'effet du comportement viscoélastique des interfaces sur la dynamique des oscillations.

Une étude préliminaire a été réalisée afin de choisir un système liquide-liquide dont l'interface présente un comportement viscoélastique significatif. Nous avons choisi comme phase dispersée un mélange de pétrole brut et d'heptane. L'interface a été caractérisée à l'aide d'une méthode classique de rhéologie interfaciale par dilatation. La formation d'un gel bidimensionnel à l'interface a été mise en évidence, pour un vieillissement supérieur ou égal à 15 minutes. Cette étude met aussi en évidence la dépendance des paramètres rhéologiques interfaciaux vis-à-vis de la fréquence d'oscillation d'où la nécessité de développer des méthodes de caractérisation interfaciales à haute fréquence.

La méthode de caractérisation de la dynamique interfaciale à haute fréquence est d'abord appliquée à un système liquide-liquide, en l'absence de surfactants. Les trois premiers modes d'oscillations sont analysés. Chaque mode est composé de plusieurs harmoniques sphériques dont une est largement dominante. La fréquence d'oscillation de chaque mode correspond à la fréquence propre de l'harmonique dominante prédite par la théorie potentielle de Rayleigh-Lamb. Les taux d'amortissement sont proches des valeurs prédites par Miller et Scriven (1968), Marston (1980) et Lu et Apfel (1991). Il provient majoritairement de la dissipation visqueuse de l'écoulement de couche limite de part et d'autre de l'interface. Enfin, une attention particulière doit être apportée à la forme d'équilibre de la goutte considérée. Lorsque la goutte est suffisamment grosse, c'est-à-dire lorsque le nombre de Bond excède une

valeur seuil, un pont liquide se forme entre le corps de la goutte et le capillaire, dont l'effet est de découpler les oscillations de formes de la condition de raccordement de l'interface sur le tube rigide. Aussi, plus la goutte est grande, plus les modes propres de la goutte attachée se rapprochent des modes de la goutte libre, représentés chacun par une harmonique sphérique unique.

La méthode de caractérisation que nous avons développée permet de décrire la dynamique interfaciale de tout système liquide-liquide en présence de surfactants, même lorsque les propriétés physicochimiques ne sont pas connues. Nous l'avons appliquée à un système où la phase interne est constituée de pétrole brut dilué dans l'heptane. Nous avons pu ainsi identifier deux types d'interfaces. Le premier type est celui d'une interface d'âge modéré, dont la dynamique est maîtrisée par la tension interfaciale. Ce type d'interface manifeste des effets viscoélastiques qui provoquent une augmentation de l'amortissement par modification des écoulements de couches limite. Le deuxième type est celui d'interfaces suffisamment âgées pour qu'un réseau dense s'y développe. Le comportement dynamique de ce réseau dépend de la fréquence d'oscillation. A des fréquences modérées, ce comportement est celui d'une interface viscoélastique régie par la tension interfaciale et s'apparente à celui d'interfaces du premier type. En revanche, à haute fréquence, la dynamique des interfaces du second type est maîtrisée par une élasticité solide, et se traduit par l'apparition de modes propres ayant des fréquences plus élevées. Dans tous les cas, du fait de l'amortissement élevé, les courbes de résonance sont larges et se chevauchent sur de larges domaines de fréquence. Par conséquent, les modèles de rupture pour ces types de gouttes ne peuvent pas se contenter d'un seul mode d'oscillation, mais doivent en intégrer au moins 3. La contribution de modes d'ordre supérieur devrait se traduire par l'apparition de formes plus complexes et conduire à une augmentation du nombre de fragments et de la polydispersité de la distribution des tailles des gouttes-filles.

Enfin, nous avons étudié les oscillations libres d'une goutte en ascension dans une phase externe stagnante, pour un système liquide-liquide sans ajout de surfactants. Les valeurs mesurées de la fréquence d'oscillation des 4 premiers modes sont en adéquation avec la théorie de Rayleigh-Lamb. Cependant les valeurs mesurées du taux d'amortissement sont très élevées par rapport aux valeurs calculées par Lu et Apfel (1991) pour une interface non contaminée. Nous avons montré que cet écart est dû à la convection des espèces adsorbées à l'interface qui sont la cause de l'apparition d'un gradient de tension interfaciale par effet Marangoni. La production de vorticité dans les couches limites devient alors plus intense du

fait des contraintes interfaciales induites par l'effet Marangoni, ce qui conduit à l'augmentation de l'amortissement des oscillations à travers un terme proportionnel à la racine carrée du Reynolds d'oscillation. Cette augmentation de l'amortissement est cependant indépendante de la vitesse d'ascension ainsi que de la forme de la goutte. Ainsi l'amortissement mesuré est 2.4 fois plus élevé que celui d'une interface non contaminée pour ce qui concerne le mode n=2. Cet écart est de moins en moins élevé lorsque l'ordre du mode augmente, et devient négligeable à partir de n=5. Ce résultat met en évidence l'extrême sensibilité de la dynamique interfaciale d'une goutte oscillante à la présence de contaminants lorsque la vitesse relative entre la phase interne et externe est non nulle. Une même interface peut ainsi se comporter comme une interface propre dans le cas d'une goutte oscillante immobile (attachée ou en flottaison neutre), et comme une interface contaminée lorsque cette goutte est en translation par rapport à la phase continue.

A l'issue de ce travail, plusieurs aspects mériteront d'être approfondis. Tout d'abord, une automatisation de la formation des gouttes accompagnée d'une régulation du volume, apportera une amélioration significative au niveau de la précision en fréquence des courbes de résonance. Lors de l'étude du système pétrole brut/eau, la régulation du volume permettra d'opérer un vieillissement maîtrisé de l'interface par mise en contact prolongé des deux phases. il sera alors possible de déterminer la cinétique de formation et de consolidation du réseau interfacial et d'analyser la dynamique de la goutte pour des interfaces d'âges contrastés.

Une étude systématique de l'effet de la forme d'équilibre sur la décomposition spectrale des modes propres de la goutte attachée s'inscrit aussi dans la suite logique de ce travail. Cela permettra de fixer un seuil pour le nombre de Bond, au-delà duquel les modes propres sont représentés chacun par une harmonique sphérique majoritaire.

La modélisation des paramètres des gouttes attachées oscillantes, en particulier du taux d'amortissement, s'est appuyée sur une théorie développée pour une goutte sphérique libre. Une interprétation plus précise des résultats expérimentaux nécessite alors le développement d'une théorie qui tienne compte de l'attachement. Cela est envisageable par simulation numérique des oscillations de gouttes déformables.

Il serait enfin intéressant de conduire l'étude des oscillations de gouttes, libres et forcées, en présence de surfactants dont les propriétés physicochimiques (masse molaire, concentration, coefficient de diffusion…) seraient connues, afin de comprendre le lien entre

ces propriétés et le comportement dynamique des interfaces, notamment en ce qui concerne la dissipation dans les couches limites.

Références Bibliographiques

Benjamins J., Cagna A., Lucassen-Reynders E.H. (1996), Viscoelastic properties of triacylglycerol/water interfaces covered by proteins. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* **114**, 245-254

Bouriat P., El Kerri N., Garcia A., Lachaise J. (2004), Stability of water/crude oil emulsions based on interfacial dilatational rheology. *Langmuir* **20** , 7459-7464

Brochette. P (1999) Émulsification : élaboration et étude des émulsions, *Techniques de l'Ingénieur* [J 2 150]

Chambon F. Winter H.H. (1987), Linear Viscoelasticity at the Gel Point of a Crosslinking PDMS with Imbalanced Stoichiometry, *Journal of Rheology* **31**, 683

Clift R., Grace J.R., Weber M.E. (1978), *Bubbles, Drops and Particles*, Academic Press, New York

Cuenot B., Magnaudet J., Spennato B. (1997), The effects of slightly soluble surfactants on the flow around a spherical bubble. *J. Fluid Mech*. **339**, 25

Dicharry, C., Arla, D., Sinquin, A., Graciaa, A., Bouriat, P., Stability of Water/Crude Oil Emulsions based on Interfacial Dilatational Rheology. *Journal of Colloid and Interface Science* (2006), **297**, 785-791

Galinat S. (2005), Étude expérimentale de la rupture de gouttes dans un écoulement turbulent. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Toulouse.

Galinat S., Masbernat O., Guiraud P., Dalmazzone C., Noïk C (2005), Drop break-up in turbulent pipe flow downstream of a restriction. *Chem. Eng. Sci.* **60**, 6511-6528

Galinat, S., Risso, F., Masbernat, O., Guiraud, P. (2007) Dynamics of drop breakup in inhomogeneous turbulence at various volume fractions. *J. Fluid Mech.* **578** , 85 - 94

Hinze J. (1955), Fondamentals of the hydrodynamics of splitting dispersion processes. *AICHE J.* **1**, 289-295

Ivanov I.B., Danov K.D., Ananthapadmanabhan K.P., Lips A. (2005) Interfacial rheology of adsorbed layers with surface reaction : On the origin of the dilatational surface viscosity. *Advances in Colloid and Interface Science* **114-115**, 61-92

Janssen J.J.M., Boon A., Agterof W.G.M. (1994), Influence of dynamic interfacial properties on droplet breakup in simple shear flow. *AIChE J*., **40**, 1929-1939

Jeribi M., Almir-Assad B., Langevin D., Hénaut I., Argillier J. F. (2002), Adsorption Kinetics of Asphaltenes at Liquid Interfaces, *Journal of Colloid and Interface Science*, **256,** 268-272

Langevin D.(2000), Influence of interfacial rheology on foam and emulsion properties, *Adv. Colloid Interface Sci.*, **88**, 209-222

Kolmogorov A.N. (1949), On the disintegration of drops in turbulent flow, *Doklady Akad. Nauk U.S.S.R.*, **66**, 825

Lamb (1932), Hydrodynamics, 6th edition, Dover press, New York

Lu, H. Apfel R.E. (1990), Quadrupole Oscillations of Drops for Studying Interfacial Properties, *J. Colloid Interface Sci.* **134**, 245-255

Lu, H. Apfel R.E. (1991), Shape oscillations of drops in the presence of Surfactants, *J. Fluid. Mech*, **222**, 351-368

Lucassen J., Van Den Tempel M. (1972) Dynamic measurments of dilational properties of a liquid interface. *Chemical Engineering Science* **27**, 1283-1291

Lucassen-Reynders E. H., Kuijpers K. A. (1992), The role of interfacial properties in emulsification, *Colloids and Surfaces*, **65**, 175-184

Marston P.L., Shape oscillation and static deformation of drops and bubbles driven by modulated radiation stress – Theory, *J. Acoust. Soc. Am*. **67**, 27-37

McLean J. D., Kilpatrick P. K. (1997), Effects of Asphaltene Aggregation in Model Heptane–Toluene Mixtures on Stability of Water-in-Oil Emulsions, *J. Colloid Interface Sci.* **196**, 23-34

McLean J. D., Kilpatrick P. K. (1997), Effects of Asphaltene Solvency on Stability of Water-in-Crude-Oil Emulsions, *J. Colloid Interface Sci.* **189**, 242-253

Miliken W. J., Stone H.A., Leal L.G. (1993), The effect of surfactant on transient motion of Newtonian drops, *Phys. Fluids A*, **5** (1), 69-79

Miller C.A., Scriven L.E. (1968), The oscillations of a fluid droplet immersed in another fluid, *J. Fluid Mech*., **32**, 417-435

Oliver D.L.R., Chung J.N.(1987), Flow about a fluid sphere at low to moderate Reynolds numbers *J. Fluid. Mech*, **177**, 1-18

Pawar Y., Stebe K.J. (1996), Marangoni effects on drop deformation in an extensional flow: the role of surfactant phyiscal chemistry. I. Insoluble surfactants, *Phys. Fluids* **8** (7), 1738-1751

Prins A. (1999), Stagnant surface behaviour and its effect on foam and film stability. *Colloids and surfaces A*, **149**, 467-473

Quintero C. (2008), *Comportement rhéologique et propriétés interfaciales des systèmes émulsionnés d'intérêt industriel. Cas des émulsions pétrolières E/H*, Thèse de l'université Paris-Sud 11

Rayleigh Lord (1879), On the capillary phenomena of jets, *Proc. Roy. Soc.*, **A 138**, 41-48

Risso F., Fabre J. (1998), Oscillation and breakup of a bubble immersed in a turbulent flow, *J. Fluid Mech*. **372**, 323-355

Risso F. (2000), The mechanismes of deformation and breakup of droplets and bubbles, Multiphase science and technology, **12**, 1-50

Sjöblom J., Aske N., Auflem I.H., Brandal Ø., Havre T.E., Sæther Ø, Westvik A., Einar Eng Johnsen E.E., Kallevik H. (2003), Our current understanding of water-in-crude oil emulsions. Recent characterization techniques and high pressure performance, *Adv. Colloid Interface Sci.*, **100-102**, 399-473

Stone H.A., Leal L.G. (1990), The effects of surfactants on drop deformation and breakup, *J. Fluid. Mech.*, **220**, 161-186

Taylor G.I. (1934), The formation of emulsions in definable fields of flow, *Proc. Roy. Soc.*, **A 138**, 41-48

Trinh E., Zwern A., Wang T.G. (1982), An experimental study of small-amplitude drop oscillations in immiscible liquid systems, *J. Fluid. Mech*, **115**, 453-474

Valentine R.S., Sather N.F., Heideger W.J. (1965), The Motion of Drops in Viscous Media, *Chem. Eng. Sci*. **20**, 719-728

Vejrazka, J., M. Fujasova, P. Stanovsky, M. C. Ruzicka and J. Drahos (2008), Bubbling controlled by needle movement. *Fluid Dynamics Research* **40,** 521-533

Williams A., Janssen J.J.M., Prins, A. (1997), Behaviour of droplets in simple shear flow in the presence of a protein emulsifier, *Colloids Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* **125**, 189-200

Winter H.H., Chambon F. (1986), Analysis of Linear Viscoelasticity of a Crosslinking Polymer at the Gel Point, *Journal of Rheology* **30**, 367

Annexe : Calcul de la dissipation à l'interface. Evaluation du taux d'amortissement interfacial.

Considérons une interface sur laquelle sont adsorbés des surfactants, et qui présente un comportement viscoélastique. Ce comportement se traduit par une variation de la tension interfaciale σ avec la déformation. Nous supposons que les surfactants restent distribués uniformément à l'interface. Nous considérons également des variations d'aire globale.

La déformation est définie comme étant une variation relative de l'aire interfaciale et s'écrit :

$$\alpha = \frac{\mathrm{A} - \mathrm{A}_0}{\mathrm{A}_0} \tag{15}$$

avec $\mathrm{A}_0 = 4\pi a^2$, l'aire de l'interface au repos, où *a* est le rayon de la goutte non déformée.

En supposant que le modèle rhéologique qui décrit l'interface est de type Maxwell-Voight, nous pouvons écrire :

$$\sigma = \sigma_0 + \varepsilon\alpha + \eta\dot{\alpha} \tag{16}$$

ε et η étant respectivement l'élasticité et la viscosité interfaciales dilatationnelles. D'autre part, à l'instant *t*, l'aire interfaciale s'écrit à l'aide de l'integrale :

$$\mathrm{A} = \iint d\mathrm{A} = \iint R^2 d\varpi \tag{17}$$

où R est le rayon local de l'interface et ϖ l'angle solide.

Pour une goutte oscillant selon le mode (*n,m*), l'équation de l'interface s'écrit :

$$R = a + aA_{n,m}Y_n^m \sin(\omega t) \tag{18}$$

Et par suite

$$R^2 = a^2 + 2a^2 A_{n,m}Y_n^m \sin(\omega t) + a^2 {A_{n,m}}^2 {Y_n^m}^2 \sin^2(\omega t) \tag{19}$$

L'aire interfaciale s'écrit alors

$$\mathrm{A} = 4\pi a^2 + 2a^2 A_{n,m}S_1 \sin(\omega t) + a^2 {A_{n,m}}^2 S_2 \sin^2(\omega t) \tag{20}$$

avec $S_1 = \iint Y_n^m d\varpi$ et $S_2 = \iint Y_n^{m^2} d\varpi$, les harmoniques de surface du premier et second ordre. S_1 étant identiquement nul, quelles que soient les valeurs de *n* et de *m*, l'expression de l'aire interfaciale devient :

$$\mathrm{A} = a^2 {A_{n,m}}^2 S_2 \sin^2(\omega t) \tag{21}$$

Et la dérivée temporelle de l'aire interfaciale :

$$\dot{\mathrm{A}} = 2a^2 {A_{n,m}}^2 S_2 \omega \sin(\omega t)\cos(\omega t) \tag{22}$$

La déformation α s'écrit :

$$\alpha = \frac{{A_n}^2 S_2}{4\pi} \sin^2(\omega t) \tag{23}$$

Et la vitesse de déformation :

$$\dot{\alpha} = \frac{{A_n}^2 S_2 \omega}{2\pi} \cos(\omega t)\sin(\omega t) \tag{24}$$

En remplançant α et $\dot{\alpha}$ dans l'équation (16), nous obtenons :

$$\sigma = \sigma_0 + \varepsilon \frac{{A_n}^2 S_2}{4\pi} \sin^2(\omega t) + \eta \frac{{A_n}^2 S_2 \omega}{2\pi} \cos(\omega t)\sin(\omega t) \tag{25}$$

La puissance développée par la tension interfaciale est égale au travail cette tension pour une variation d'aire dA par unité de temps :

$$P_S = \frac{\sigma d\mathrm{A}}{dt} = \sigma \dot{\mathrm{A}} \tag{26}$$

Par suite,

$$P_S = \begin{aligned} & 2\sigma_0 a^2 {A_{n,m}}^2 S_2 \omega \sin(\omega t)\cos(\omega t) \\ & + \frac{\varepsilon a^2 A_{n,m}^2 S_2^2 \omega}{2\pi} \sin^3(\omega t)\cos(\omega t) \\ & + \frac{\eta a^2 A_{n,m}^4 S_2^2 \omega^2}{2\pi} \sin^2(\omega t)\cos^2(\omega t) \end{aligned} \tag{27}$$

La puissance moyenne dissipée au cours d'une période est donnée par :

$$\overline{P_S} = \frac{1}{T}\int_0^T P_S(t) dt \tag{28}$$

Sachant que $\int_0^T \sin(\omega t)\cos(\omega t) = 0$, $\int_0^T \sin^3(\omega t)\cos(\omega t) = 0$ et $\int_0^T \sin^2(\omega t)\cos^2(\omega t) = \frac{T}{8}$, la puissance moyenne dissipée devient :

$$\overline{P_S} = \frac{\eta a^2 A_{n,m}^4 S_2^2 \omega^2}{8\pi} \tag{29}$$

Les écoulements de part et d'autre de l'interface sont considérés potentiels. Les potentiels de vitesse à l'intérieur (ϕ_d) et à l'extérieur (ϕ_c) de la goutte sont donnés par :

$$\phi_d = \phi_0 Y_n^m \frac{1}{n}\frac{r^n}{a^n}\cos(\omega t), \qquad \phi_c = -\phi_0 Y_n^m \frac{1}{n+1}\frac{a^{n+1}}{r^{n+1}}\cos(\omega t) \tag{30}$$

La vitesse radiale d'un point de l'interface s'écrit :

$$\frac{dR}{dt} = \frac{\partial \phi_d}{\partial r}\Big)_a = \frac{\partial \phi_c}{\partial r}\Big)_a = \frac{\phi_0}{a} Y_n^m \cos(\omega t) \tag{31}$$

Par suite,

$$R = Y_n^m \frac{\phi_0}{a\omega}\sin(\omega t) + a \tag{32}$$

En comparant les équations (18) et (32), nous pouvons déduire :

$$\phi_0 = \omega a^2 A_{n,m} \tag{33}$$

Par suite,

$$\phi_d = \omega a^2 A_{n,m} Y_n^m \frac{1}{n}\frac{r^n}{a^n}\cos(\omega t), \qquad \phi_c = -\omega a^2 A_{n,m} Y_n^m \frac{1}{n+1}\frac{a^{n+1}}{r^{n+1}}\cos(\omega t) \tag{34}$$

$$\frac{\partial \phi_d}{\partial r}\Big)_a = \frac{\partial \phi_c}{\partial r}\Big)_a = \omega a A_{n,m} Y_n^m \cos(\omega t) \tag{35}$$

L'énergie cinétique s'écrit

$$T_d = \frac{1}{2}\rho_d \iint \phi_c \frac{\partial \phi_c}{\partial r} d\mathrm{A}, \qquad T_c = -\frac{1}{2}\rho_c \iint \phi_c \frac{\partial \phi_c}{\partial r} d\mathrm{A} \tag{36}$$

Rappelons l'expression de l'élément de surface $d\mathrm{A} = a^2 d\varpi$; pour $R = a$ (approximation dans le cas des faibles déformations). Par suite,

$$T_d = \frac{1}{2}\rho_d a^2 \iint \phi_d \frac{\partial \phi_d}{\partial r} d\varpi, \qquad T_c = -\frac{1}{2}\rho_c a^2 \iint \phi_c \frac{\partial \phi_c}{\partial r} d\varpi \tag{37}$$

En remplaçant les potentiels de vitesses par leurs expressions (34), nous obtenons, pour $r = a$:

$$T_d = \frac{\rho_d a^5 A_{n,m}^2}{2n}\cos^2(\omega t)\iint (Y_n^m)^2 d\varpi, \qquad T_c = \frac{\rho_c \omega^2 a^5 A_{n,m}^2}{2(n+1)}\cos^2(\omega t)\iint (Y_n^m)^2 d\varpi \tag{38}$$

D'autre part l'énergie potentielle s'écrit

$$U_d = \frac{\rho_d a^5 A_{n,m}^2}{2n}\sin^2(\omega t)\iint (Y_n^m)^2 d\varpi\,, \qquad U_c = \frac{\rho_c \omega^2 a^5 A_{n,m}^2}{2(n+1)}\sin^2(\omega t)\iint (Y_n^m)^2 d\varpi \tag{39}$$

et l'énergie totale :

$$T_d + U_d = \frac{\rho_d \omega^2 a^5 A_{n,m}^2}{2n}\iint (Y_n^m)^2 d\varpi\,, \qquad T_c + U_c = \frac{\rho_c \omega^2 a^5 A_{n,m}^2}{2(n+1)}\iint (Y_n^m)^2 d\varpi \tag{40}$$

Calcul de l'amortissement :

$$\frac{d}{dt}(T_d + U_d + T_c + U_c) = -\overline{P_S} \tag{41}$$

Par suite,

$$\omega^2 a^5\left(\frac{\rho_d}{n} + \frac{\rho_c}{n+1}\right)\iint (Y_n^m)^2 d\varpi A_{n,m}\frac{dA_{n,m}}{dt} = -\frac{\eta a^2 A_{n,m}^4 S_2^2 \omega^2}{8\pi} \tag{42}$$

et

$$\frac{(n+1)\rho_d + n\rho_c}{n(n+1)}\frac{dA_{n,m}}{dt} = -\frac{\eta}{a^3}\frac{A_{n,m}^3 S_2}{8\pi} \tag{43}$$

$$\frac{dA_{n,m}}{A_{n,m}} = -\frac{n(n+1)}{(n+1)\rho_d + n\rho_c}\frac{\eta}{a^3}\frac{A_{n,m}^2 S_2}{8\pi}dt \tag{44}$$

En intégrant l'équation (44), nous obtenons

$$A_{n,m} = A_{n,m}(0)\exp(-\beta_S t) \tag{45}$$

Avec l'amortissement interfacial :

$$\beta_S = -\frac{n(n+1)}{(n+1)\rho_d + n\rho_c}\frac{\eta}{a^3}\frac{S_2}{8\pi}A_{n,m}^2 \tag{46}$$

Pour les modes axisymétriques (m=0),

$$\frac{S_2}{8\pi} = \frac{1}{2(2n+1)} \tag{47}$$

Par suite,

$$\beta_S = -\frac{n(n+1)}{2(2n+1)[(n+1)\rho_d + n\rho_c]}\frac{\eta}{a^3}A_{n,0}^2 \tag{48}$$

Nota : Ce calcul, présenté ici dans le cas où les écoulements de part et d'autre de l'interface sont potentiels, est valable pour des écoulements quelconques, étant donné que l'énergie totale ne dépend pas des écoulements, mais de la forme de l'interface (équation 26).